

Elektronové a magnetické vlastnosti magnetických materiálů a supermřížek

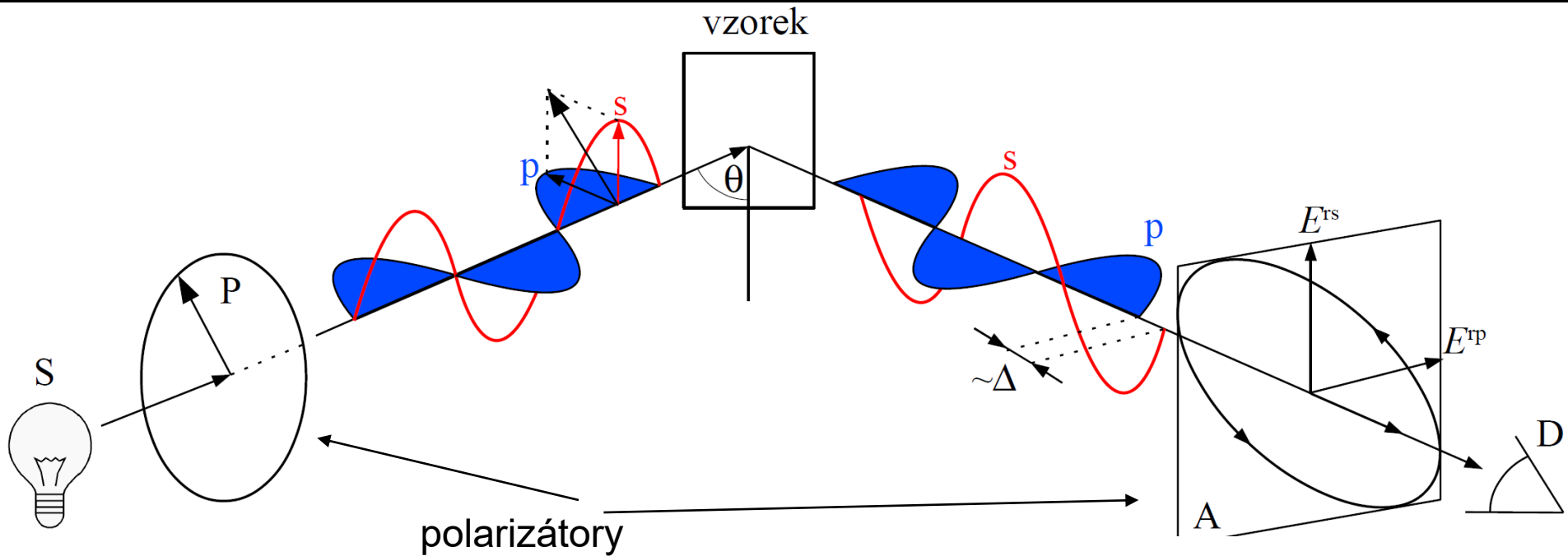
doc. A. Dubroka, PhD., dubroka@physics.muni.cz
Ústav fyziky kondenzovaných látek

- Spektroskopická elipsometrie a dielektrická funkce
- Studium feromagnetického stavu $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_3\text{CoO}_3$ pomocí elipsometrie
- Studium dimenzionálního přechodu v antiferomagnetických supermřížkách $\text{LaFeO}_3/\text{SrTiO}_3$ pomocí spinové rotace muonů

M U N I
S C I



Princip elipsometrie



- Elipsometrie je de facto interferenční experiment s komponentou elektrického pole rovnoběžnou (p) a kolmou (s) k rovině dopadu.

Měřené veličiny v elipsometrii:

- úhel pootočení elipsy Ψ
- elipticita Δ

\Rightarrow n,k nebo ϵ_1, ϵ_2
bez dalších předpokladů

Absorpce- reálná část optické vodivosti

Optická vodivost se vztahuje k dielektrické funkci jako $\sigma(\omega) = -i\omega\varepsilon_0(\varepsilon(\omega) - 1)$

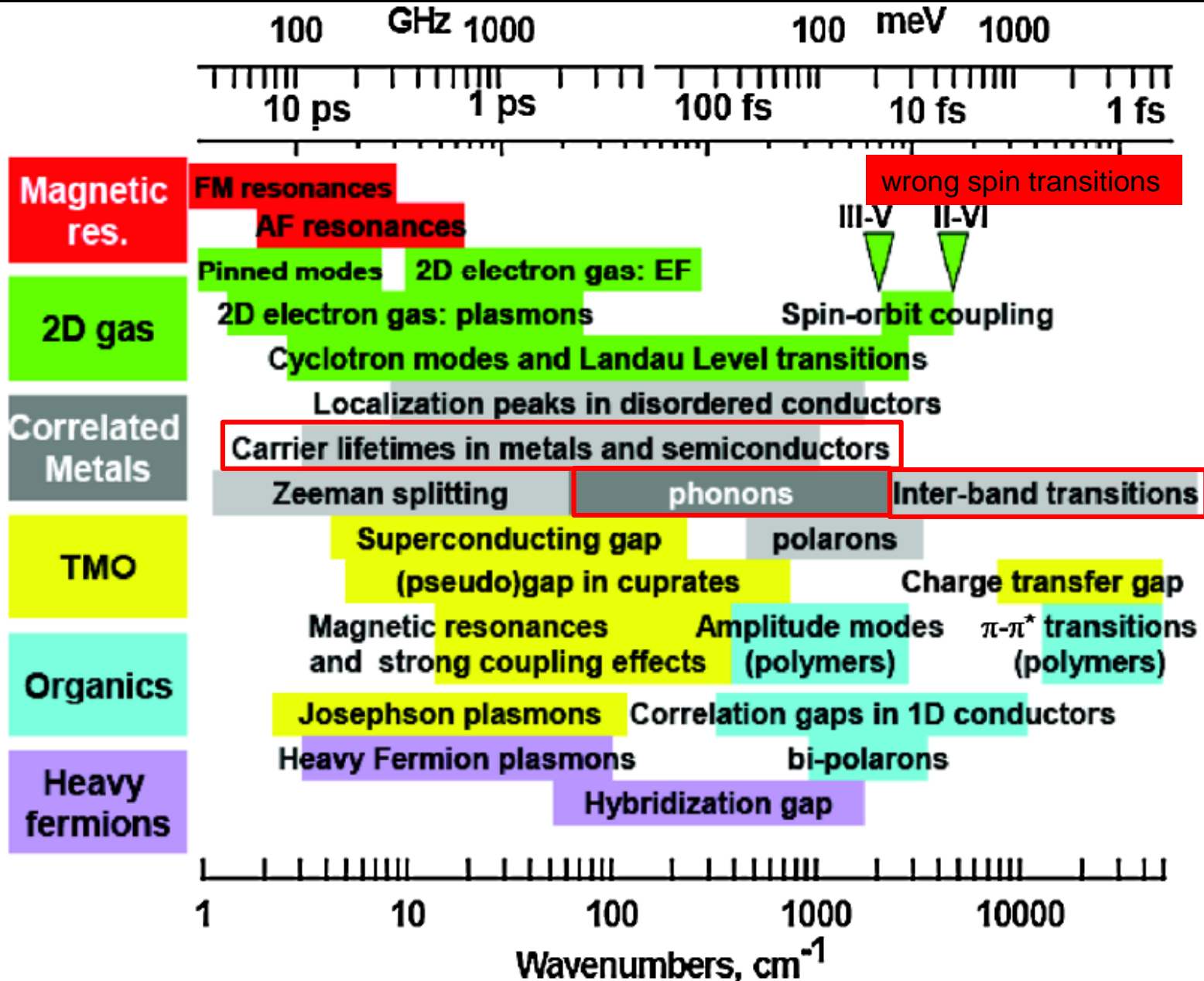
Je to komplexní funkce: $\sigma(\omega) = \sigma_1(\omega) + i\sigma_2(\omega)$

- Reálná část vodivosti $\sigma_1(\omega) = \omega\varepsilon_0\varepsilon_2(\omega)$, je úměrná absorpci elektromagnetické energie
- $\sigma_1(\omega=0) = \sigma_{DC}$

• σ_1 je vázaná sumačním pravidlem $\int_0^{\infty} \sigma_1(\omega) d\omega = \frac{\pi n q^2}{2\varepsilon_0 m} = \text{constant}$

- Integrál z $\sigma_1(\omega)$ přes široký frekvenční interval je proporční náboji který záření absorbuje.

Opticky aktivní excitace mezi THz a ultrafialovým oborem



Equilibrium ellipsometry at CEITEC Nano



+



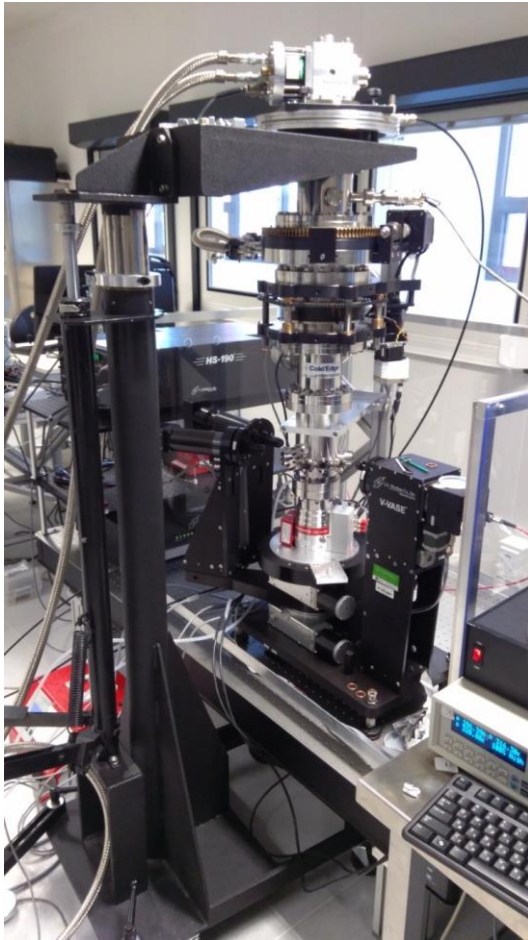
=



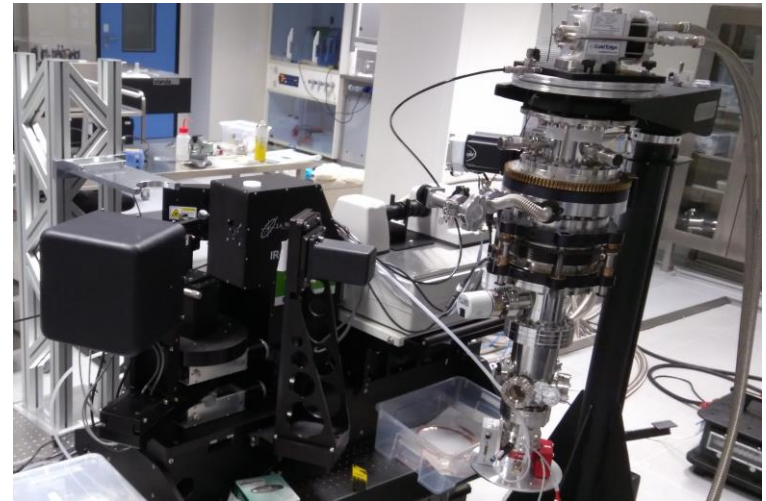
in



Woollam VASE, NIR-UV range
He closed-cycle cryostat 7-400 K



Woollam IR-VASE, mid infrared range

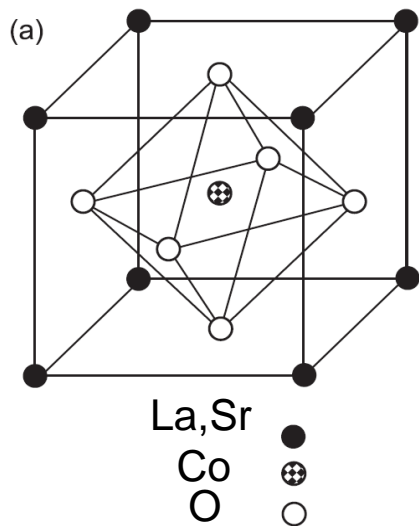


far-infrared (50-700 cm^{-1}) ellipsometer



Optická odezva feromagnetických kobaltátů

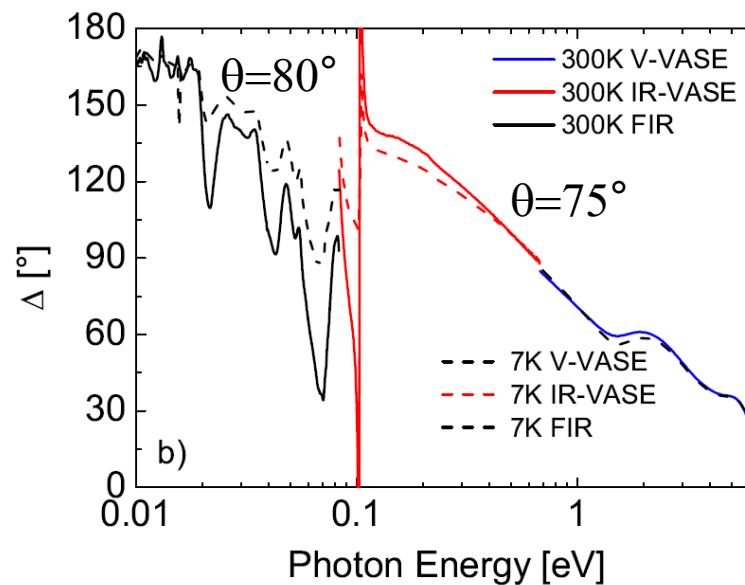
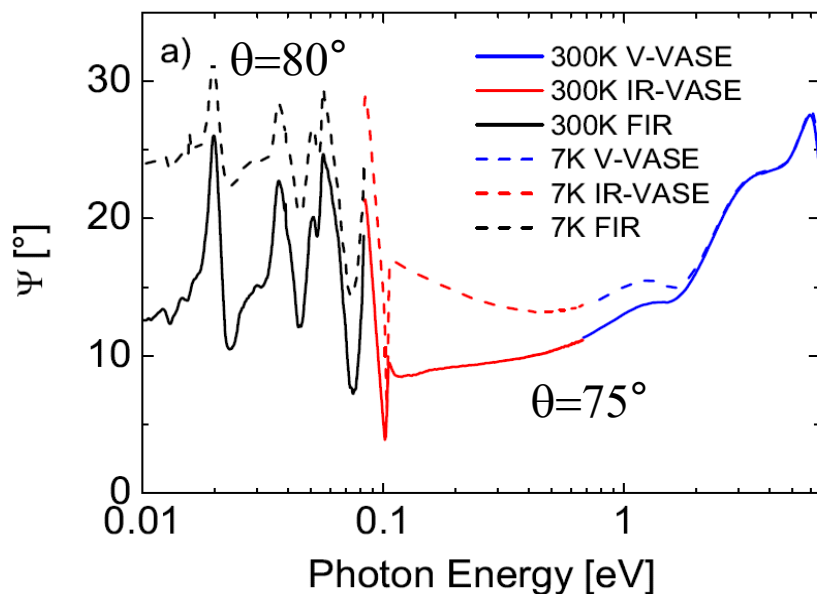
-hrubá data na 30nm vrstvách



- tenké vrstvy (30 nm) feromagnetického $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$ vypěstované na substrátu LSAT pomocí pulsní laserové depozice (Alineason Materials Technology)

- Curieova teplot $T_c \sim 205$ K

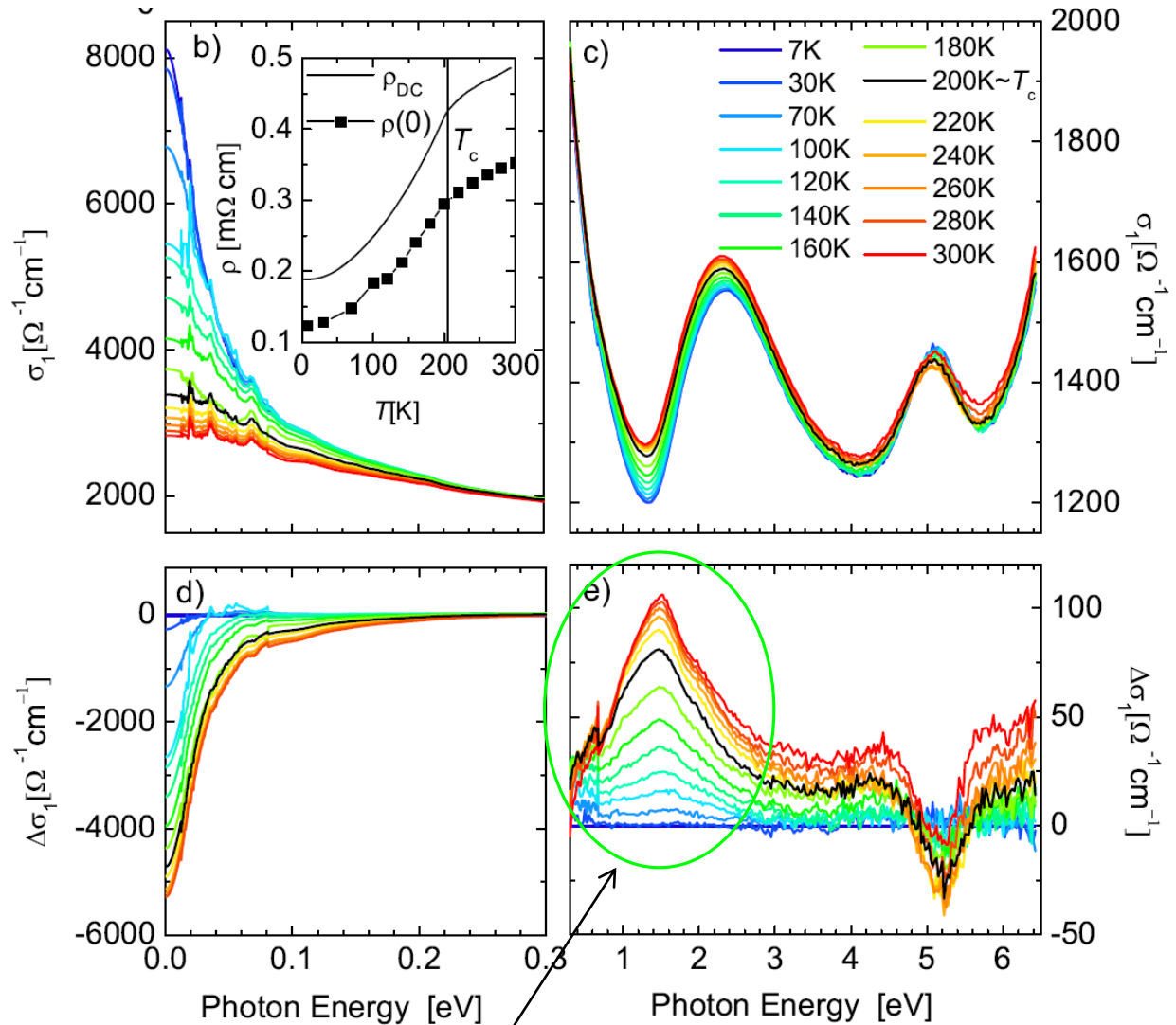
Hrubá data v podobě elipsometrických úhlů obsahují jak odezvu vrstvy tak substrátu



Optické projevy feromagnetického stavu

$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$,
 $T_c \sim 205 \text{ K}$

Absolutní optická
vodivost (absorpce)
 $\sigma_1(\omega) = \omega \epsilon_0 \epsilon_2(\omega)$



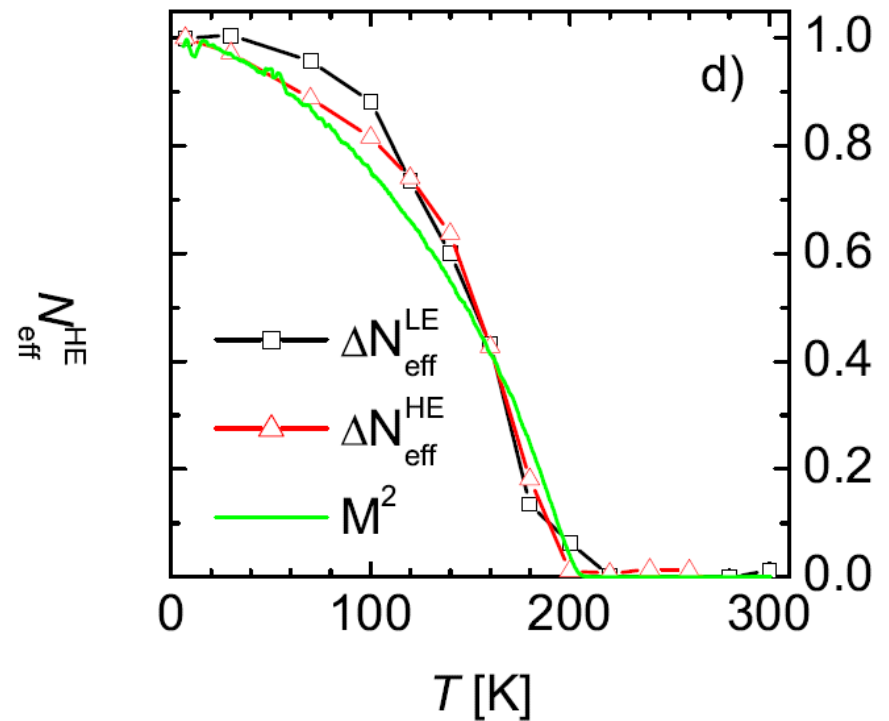
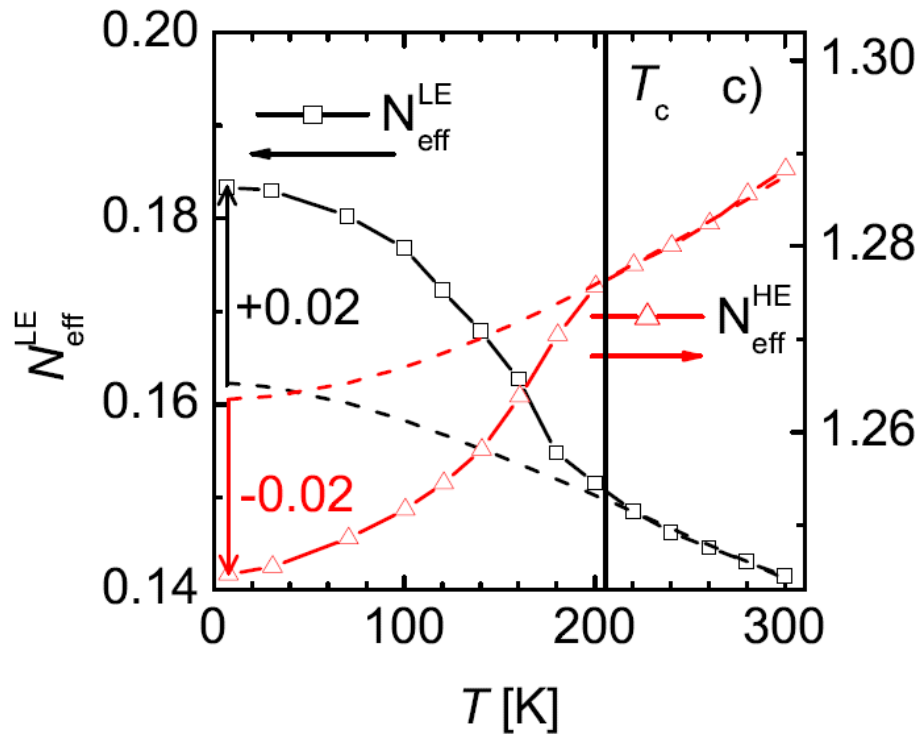
Relativní optická
vodivost
vzhledem k 7 K

Kandidát pro přechod „špatného spinu“ na 1.5 eV

Optické projevy feromagnetického stavu

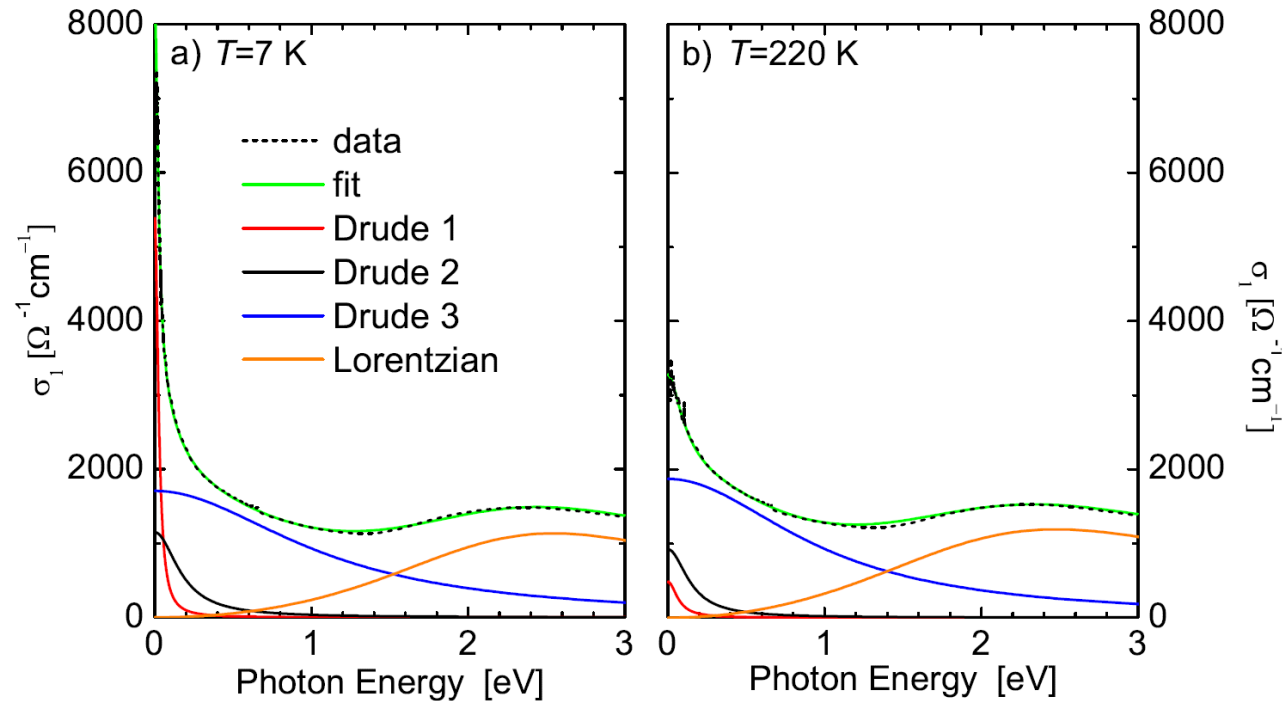
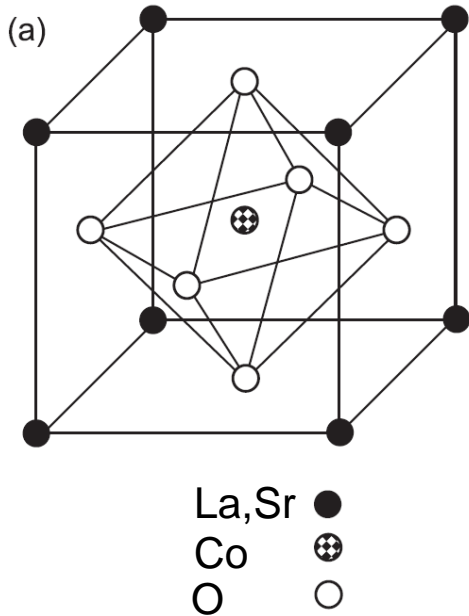
$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$, $T_c \sim 205$ K

- spektrální váhy (integrál z σ_1) Drudeho píku a pásu na 1.5 eV sledují vývoj magnetizace



Modelování spekter pomocí Drudeovy-Lorentzovy formule

$\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{CoO}_3$, $T_c \sim 205$ K



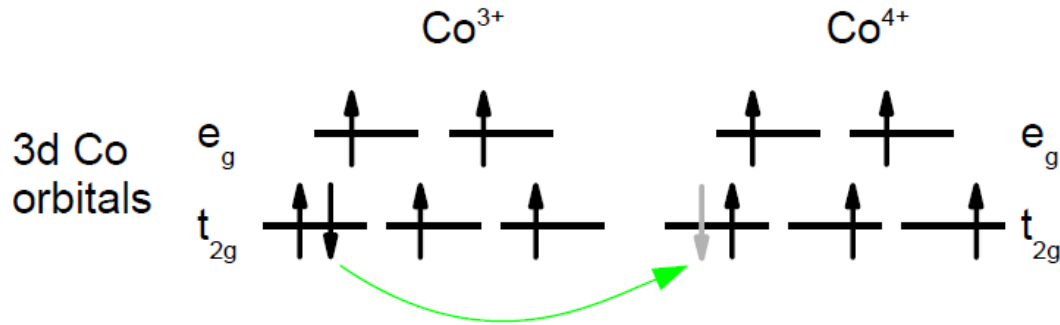
Modelování optických spekter pomocí Drudeovy-Lorentzovy formule

$$\epsilon(\omega) = 1 - \sum_j \frac{\omega_{D,j}^2}{\omega(\omega + i\gamma_{D,j})} + \sum_k \frac{\omega_{L,k}^2}{\omega_{0,k}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_{L,k}}$$

Vodivostní odezvu je nutné modelovat třemi Drudeho členy – typický znak interagujících vodivostních elektronů a/nebo přítomnosti několika vodivostních pásem

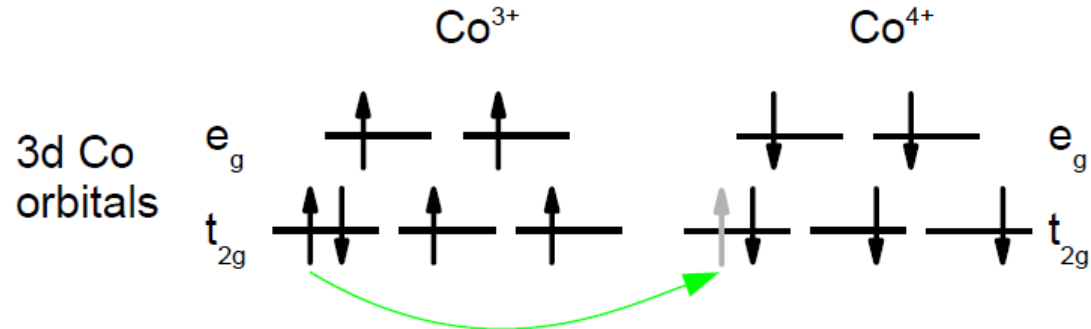
Přechody elektronů mezi ionty kobaltu

Feromagnetický stav



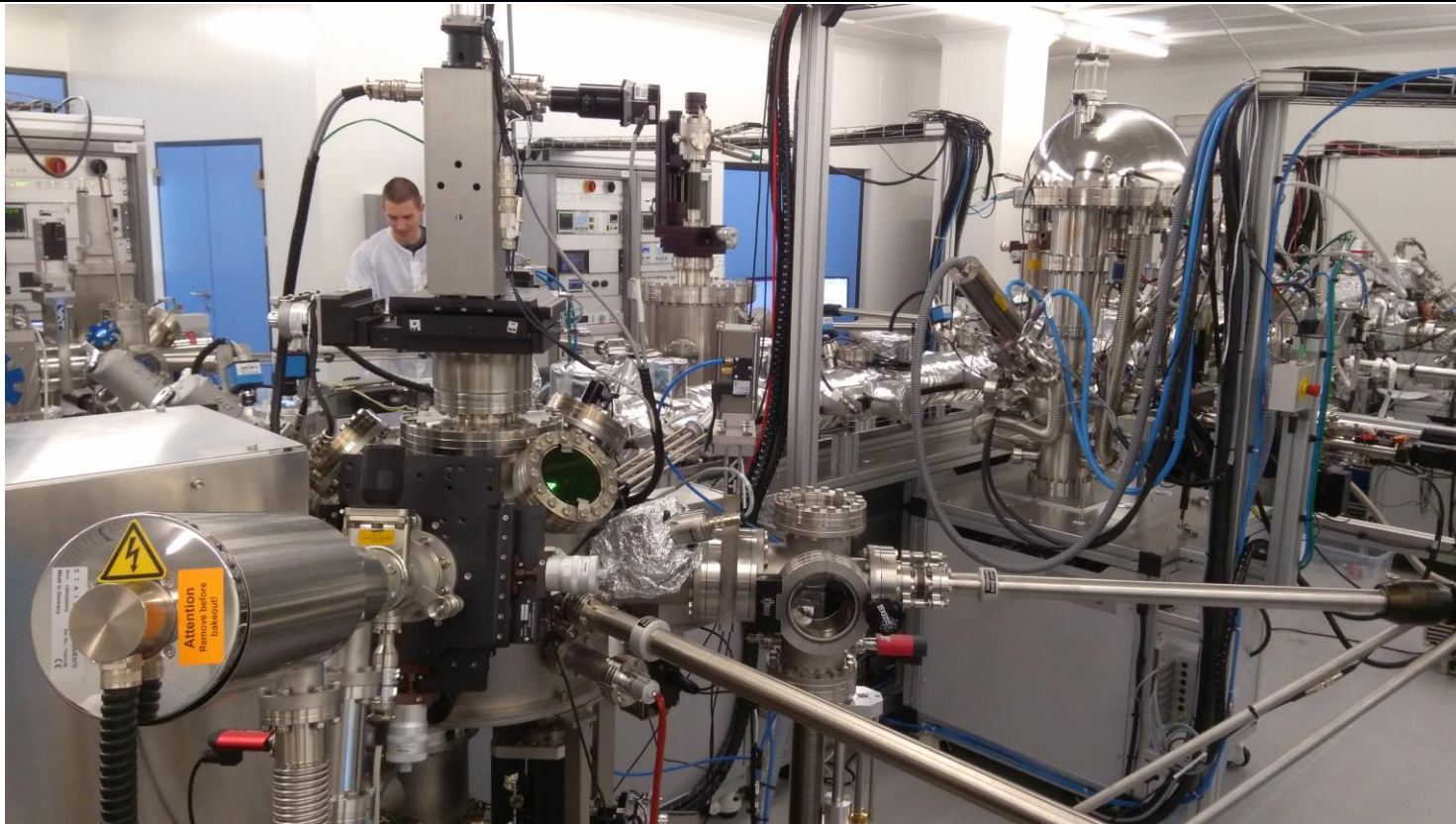
- dvojná výměnná interakce vedoucí k feromagnetismu
- delokalizace elektronů je hnací silou feromagnetického uspořádání
- vede k vodivým vlastnostem

Paramagnetický stav



- přechod mezi kobalty s antiparalelním uspořádáním spinů se nazývá přechod se „špatným spinem“ („wrong-spin-transition“)
- tento přechod porušuje Hundova pravidla, je na něho tedy potřeba určitou energii (~ 1.5 eV).

Pulsní laserová depozice (PLD)



- PLD vybavené špičkovou současnou technologií
- tlak 5×10^{-10} mbar
- kontrola růstu s RHEED
- in situ ozonová atmosféra
- ultra homogenní růst se skenováním laserového svazku
- připojené na UHV klastr s analytickými metodami (XPS, ARPES, LEEM, LEED, STM)

3D to 2D crossover in antiferromagnetic $\text{LaFeO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattices

- LaFeO_3 – G-type antiferromagnet with $T_N=740$ K
- SrTiO_3 – nonmagnetic insulator (semiconductor)
- substrate - SrTiO_3

Series of superlattices:

$[(\text{LaFeO}_3)_N + (\text{SrTiO}_3)_5] \times 10$

with $N = 3, 2, 1$

Grown by M. Kiaba using

PLD with in-situ RHEED monitoring



Atomically flat SrTiO_3

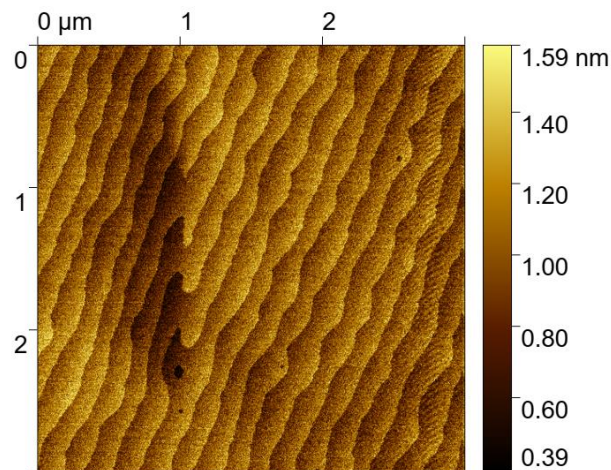
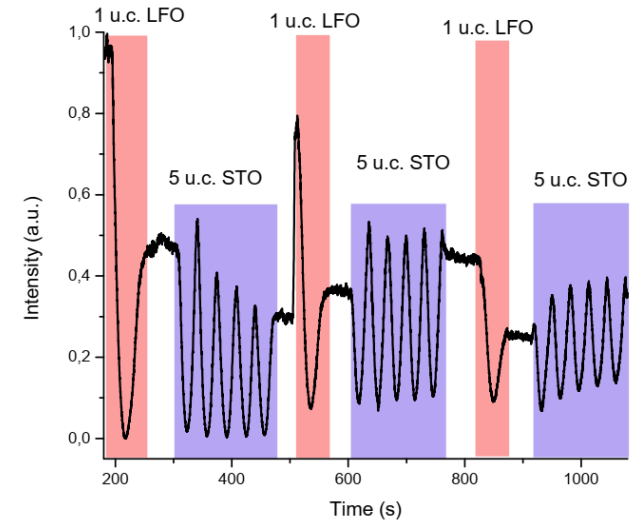


FIG. 5. Typical surface morphology of SrTiO_3 substrate made by AFM.

RHEED pattern during growth



Atomically flat superlattice

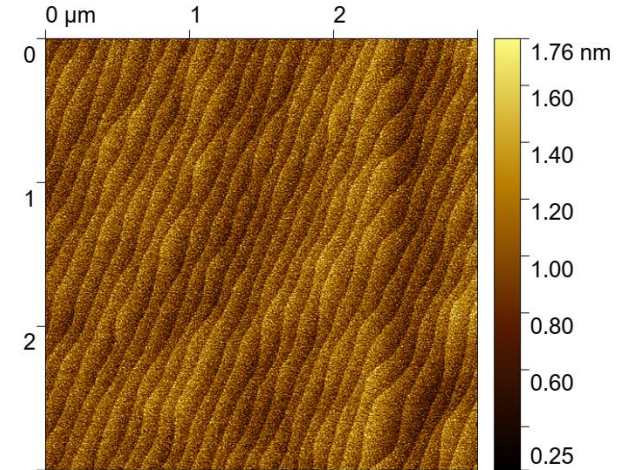
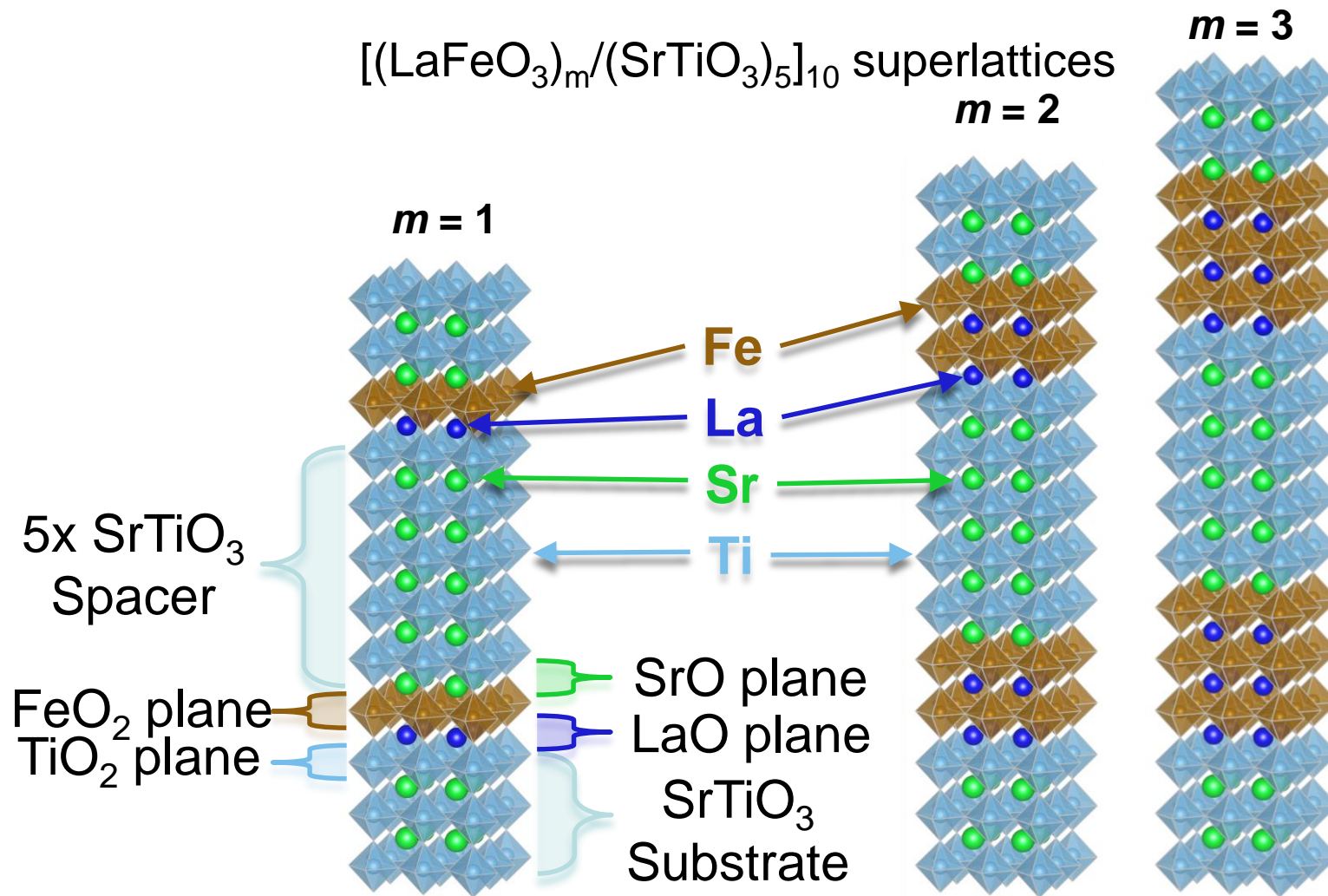


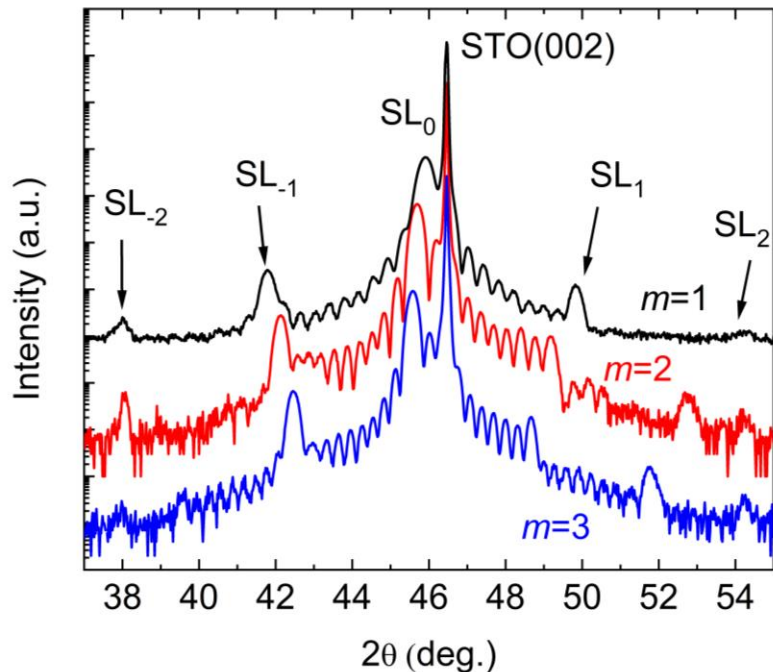
FIG. 4. Typical surface morphology of $(\text{LFO}_m/\text{STO}_5)_{10}$ made by AFM.

3D to 2D crossover in antiferromagnetic $\text{LaFeO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattices

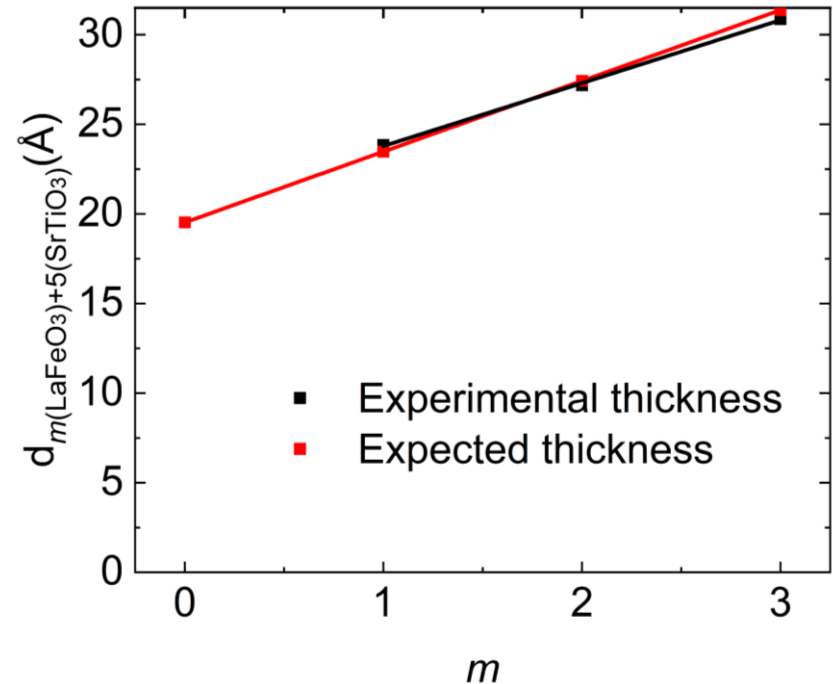


3D to 2D crossover in antiferromagnetic $\text{LaFeO}_3/\text{SrTiO}_3$ superlattices

Structural analysis

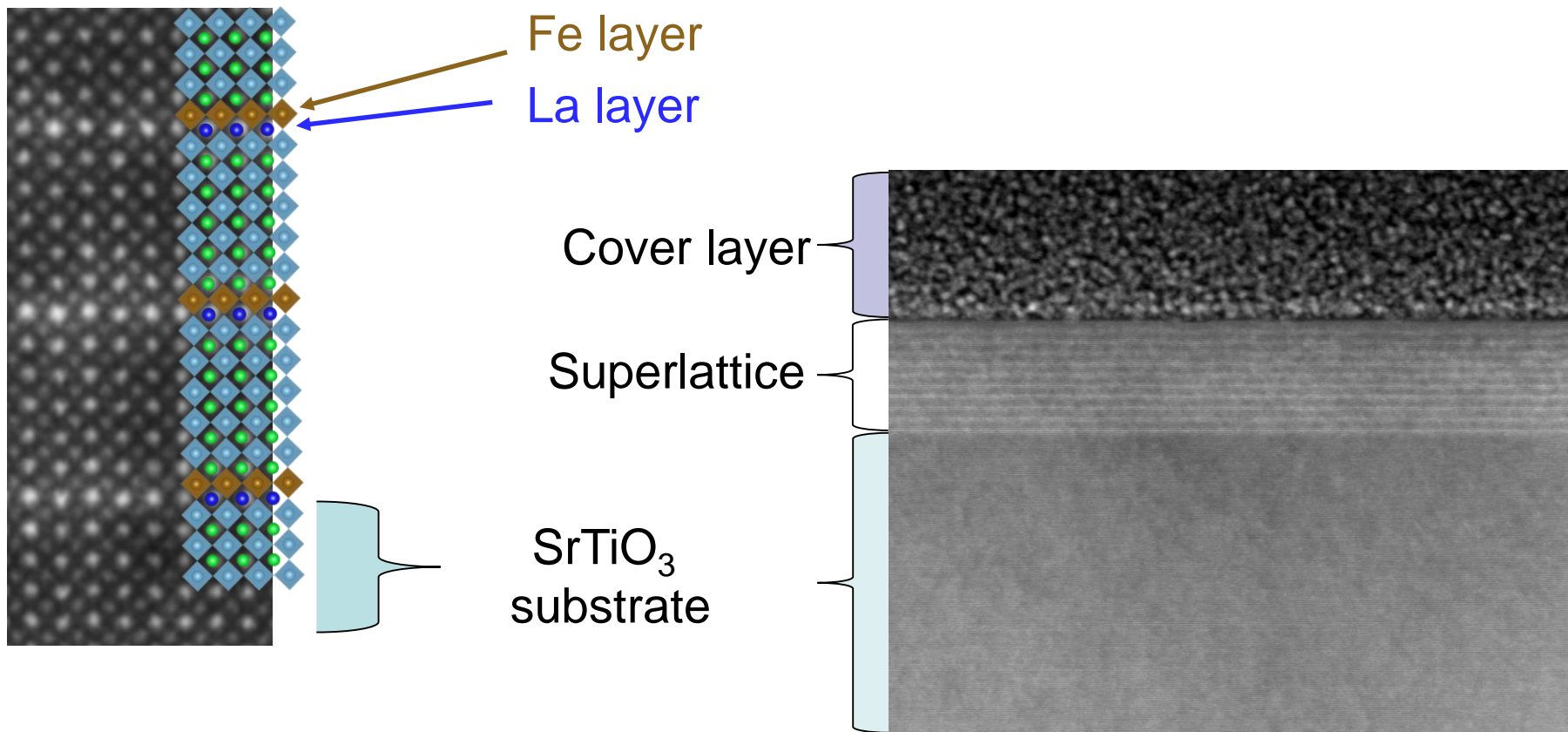


X-ray diffraction of $[\text{LaFeO}_m + \text{SrTiO}_5]_{10}$ superlattices for $m = 1, 2, 3$.

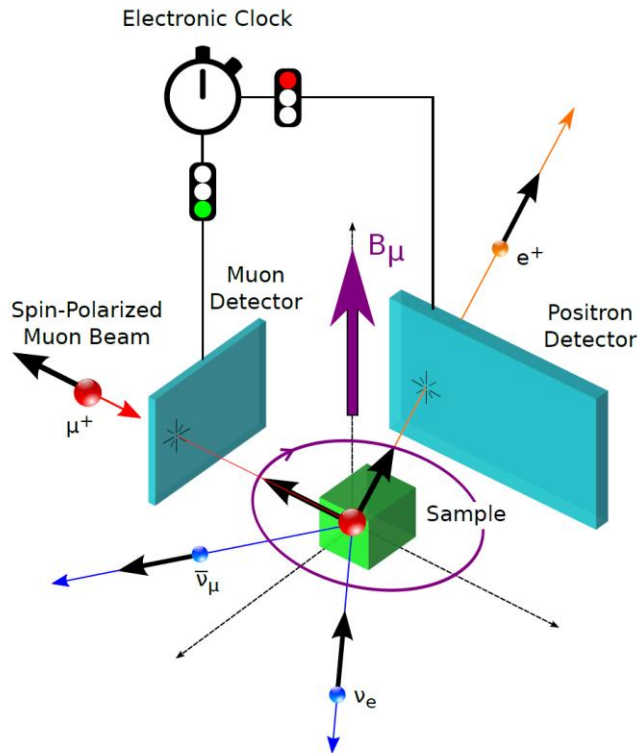


Graph show total thickness of superlattice calculated and measured by X-ray reflectivity show good agreement.

Transition electron microscope images of $[(\text{LaFeO}_3)_m/(\text{SrTiO}_3)_5]_{10}$ superlattice



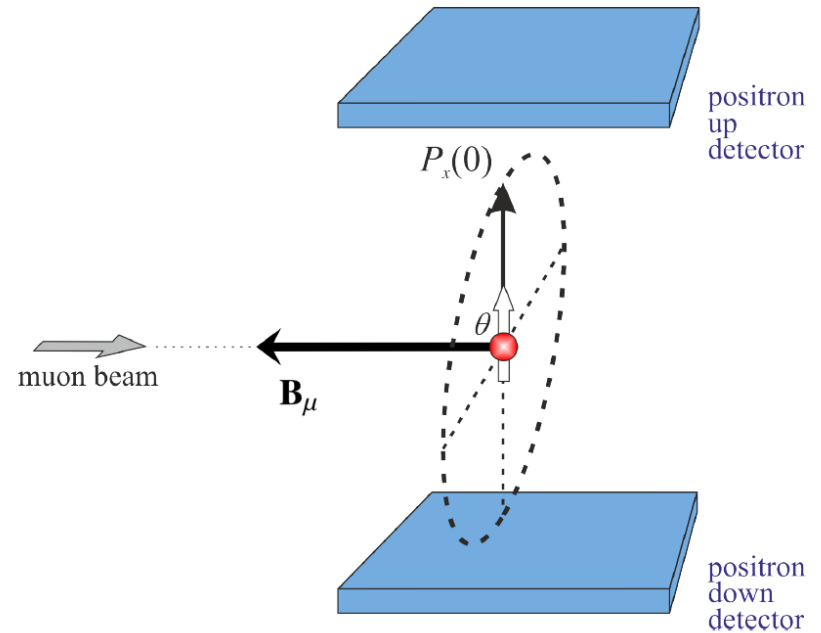
Muon spin rotation spectroscopy - μ SR



- Muon has spin $\frac{1}{2}$ and decay half-life of about $2.2 \mu\text{s}$
- At decay, positron is emitted preferentially to muon spin direction
- It is local magnetic probe - sense field at the stopping site
- Can detect small magnetic field – from nucleus
- Result is time dependence of asymmetry on time
- Asymmetry is difference between detectors (front-back, top-bottom)

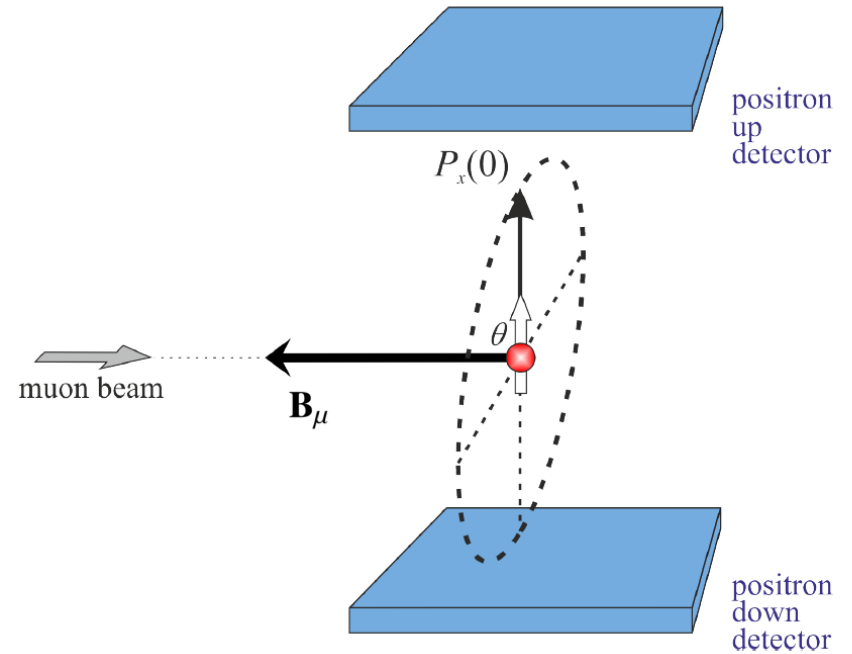
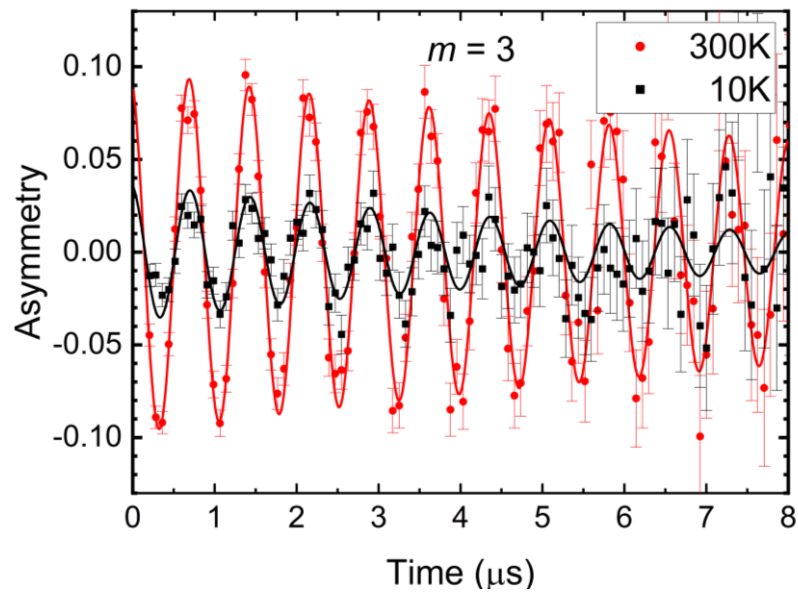
Weak Transverse Field

- An external magnetic field is applied to the sample perpendicular to the muon spin.
- In a purely para-/diamagnetic system the muon spin will just precess around B_{ext}
- In a magnetic system (ferro-, antiferro-, ferrimagnetic), the muon will precess around the superimposed field
- Typically it is used to detect phase transition of static magnetic order



Weak Transverse Field

$B = 10 \text{ mT}$



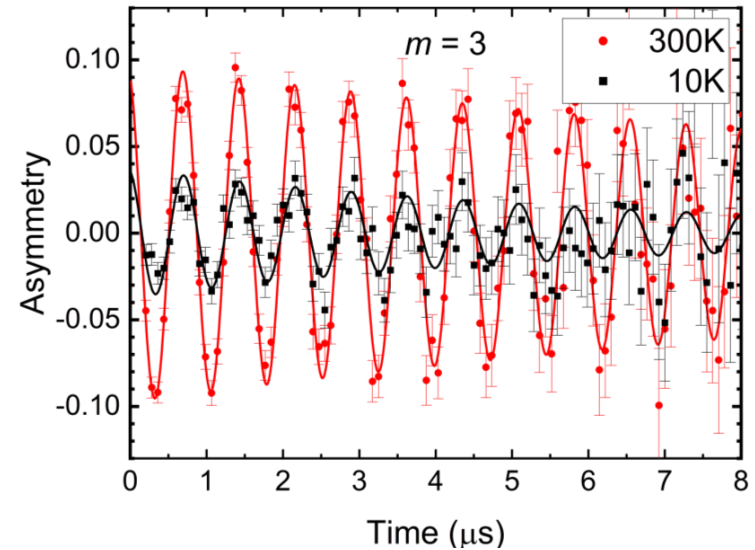
Asymmetry from wTF measurement from superlattice $m = 3$

Weak Transverse Field

Magnetic volume fraction

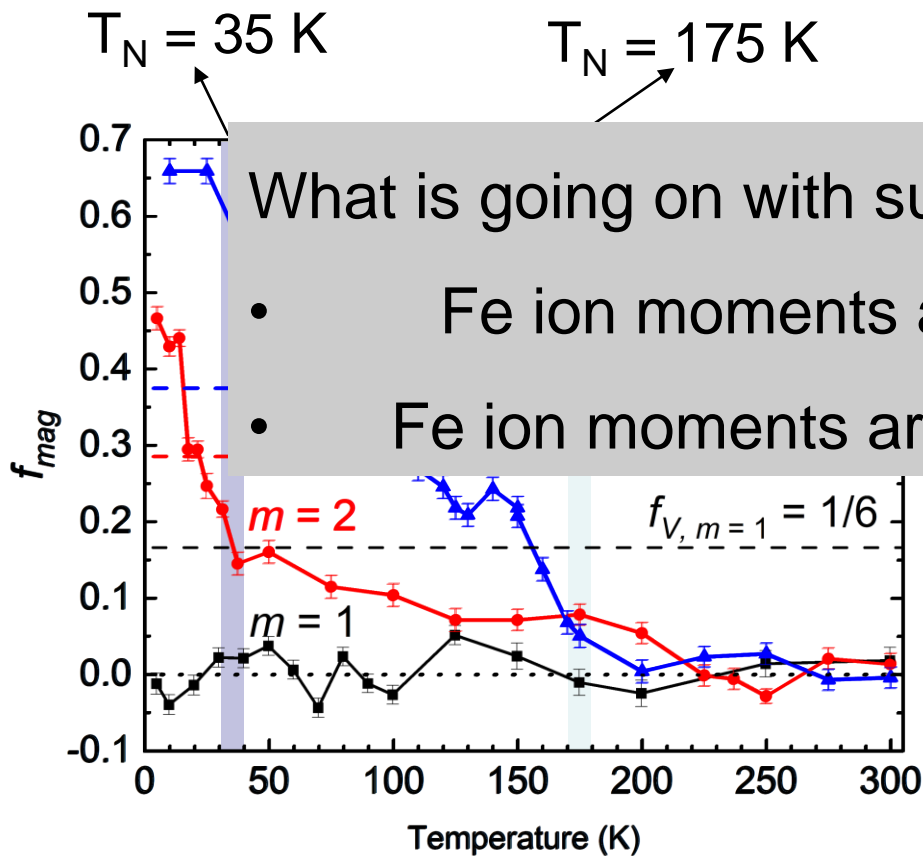
$$f_{mag}(T) = 1 - \frac{A(T)}{A_0}$$

- $f_{mag}(T)$ is the volume fraction of magnetic phase
- A_0 is asymmetry (amplitude) at high temperature in paramagnetic state
- $A(T)$ is asymmetry (amplitude) at any given lower temperature



Asymmetry from wTF measurement from superlattice $m = 3$

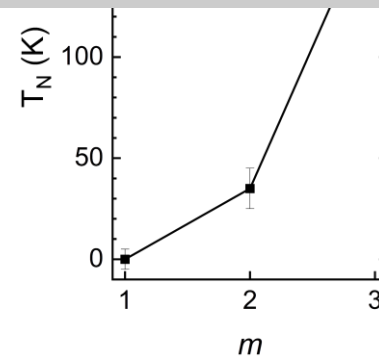
Weak Transverse Field



What is going on with superlattice with $m = 1$?

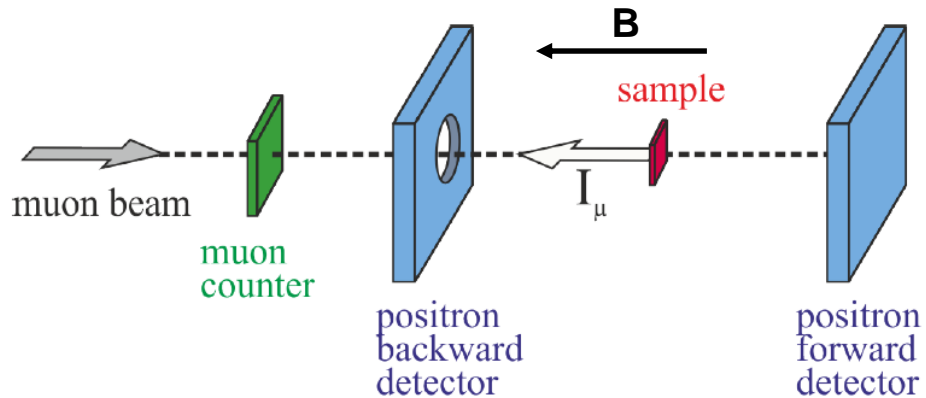
- Fe ion moments are randomly frozen?
- Fe ion moments are fluctuating?

- For $m = 3$ we see clear offset at 175 K
- For $m = 2$ we see clear offset at 35 K



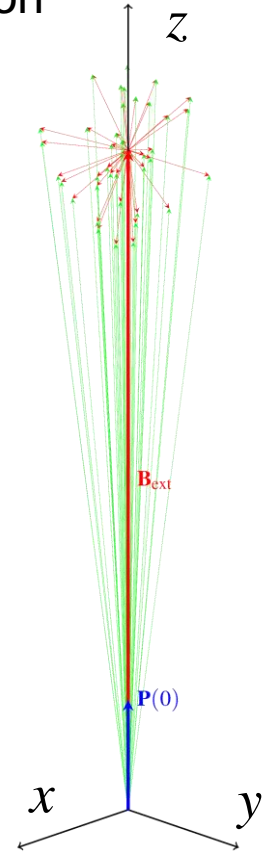
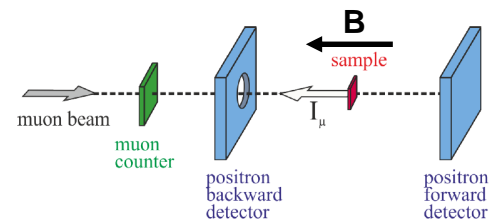
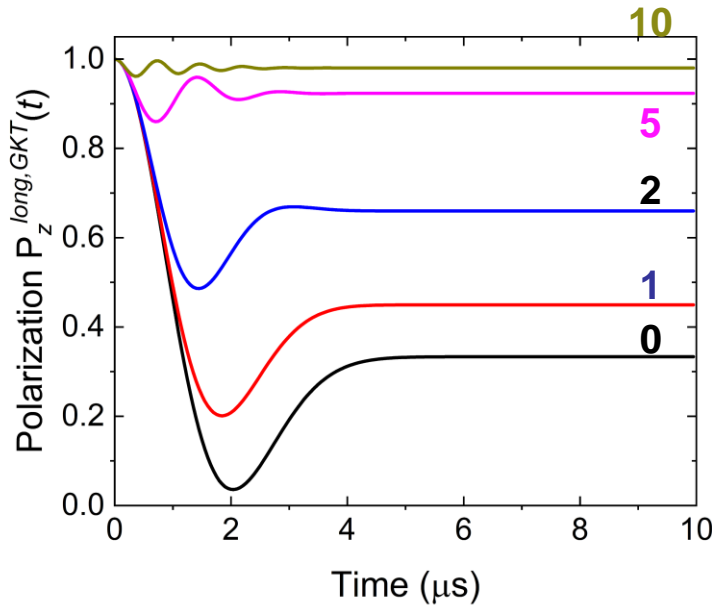
Longitudinal Field

- Arrangement same as in Zero field measurement
- Applied magnetic field in direction of muon beam
- Longitudinal field can unequivocally differentiate between static magnetism and dynamic fields



Longitudinal Field State moments with gaussian distribution

- At $B_{ext} = 0$ muons sense only distribution of internal magnetic fields.
- At $B_{ext} > 0$ muons sense final magnetic field composed of internal and external fields
- With increasing external field, angle between magnetic field and muon spin is lowering and decreasing depolarization

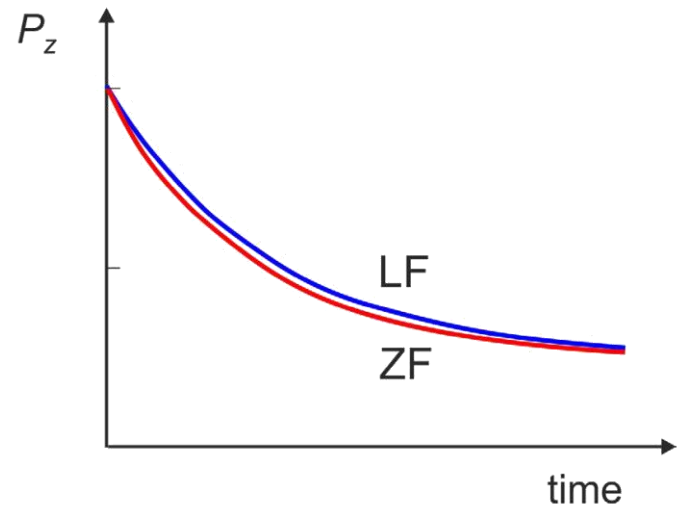
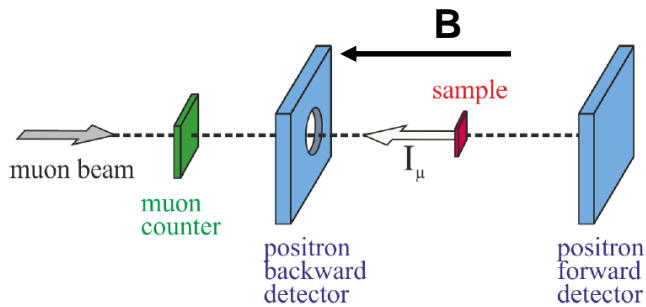


Fields sensed by muon ensemble

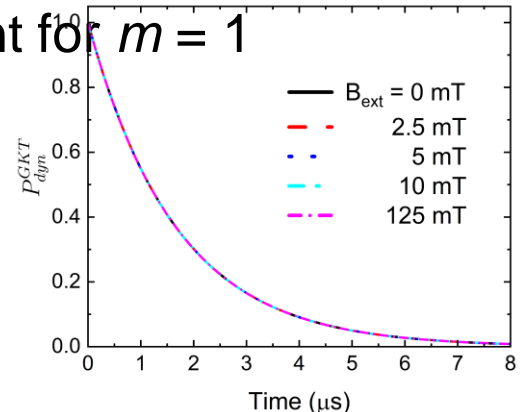
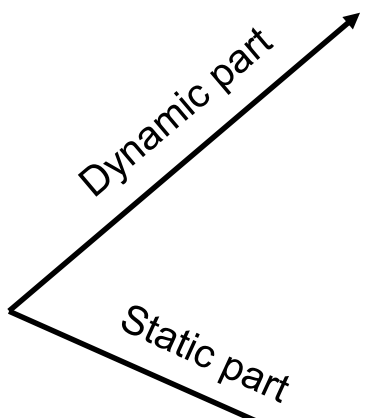
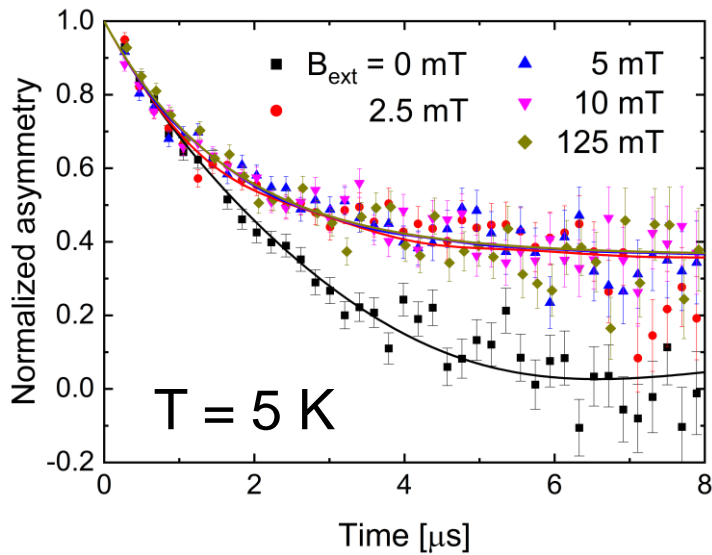
Longitudinal Field

Dynamic moments

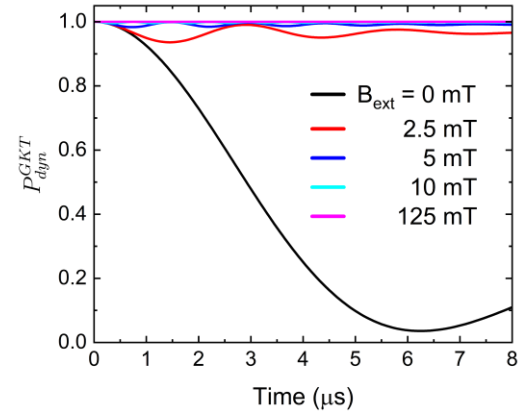
- If local fields are fluctuating and cause the muon spin –flip and cause the muon-spin depolarization even in the longitudinal field
- Longitudinal field can unequivocally differentiate between static magnetism and dynamic fields



Longitudinal field measurement for $m = 1$



P_{dyn}^{GKT}



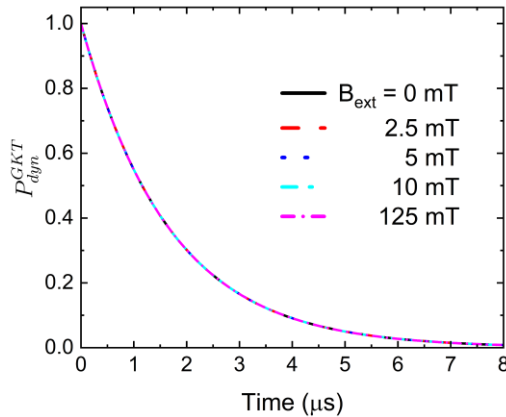
P_{stat}^{GKT}

Equation for Longitudinal field measurement :

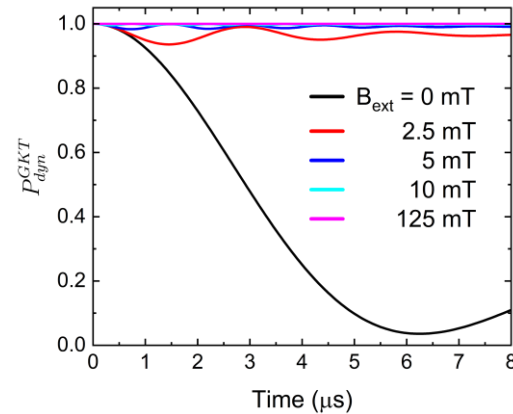
$$A_{LF}(t, B_{ext}) = (1 - c)P_{stat}^{GKT}(t, B_{ext}) + cP_{dyn}^{GKT}(t, B_{ext})$$

Longitudinal field measurement for $m = 1$

Dynamic part



Static part



- Correspond to **fluctuating Fe ions** spins with fields with fields about 100-300 mT and frequency in range of 150 GHz

- Correspond to **static nuclear moments** with magnetic field about 0.32 mT at the muon site

$$A_{LF}(t, B_{ext}) = (1 - c)P_{stat}^{GKT}(t, B_{ext}) + cP_{dyn}^{GKT}(t, B_{ext})$$

Summary

- We grow high quality superlattices from $\text{LaFeO}_3/\text{SrTiO}_3$
- LaFeO_3 superlattices with $m = 3$ and 2 are antiferromagnetic with Neel temperature of 175 K and 35 K respectively
- LaFeO_3 in superlattice with only one monolayer does not show transition down to the 5 K
- Longitudinal field measurement unequivocally show that Fe ions spins are fluctuating down to the 5 K and behave according Mermin-Wagner theorem

Děkuji za pozornost

základní rovnice elipsometrie

Definice elipsometrických úhlů Ψ a Δ : $\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi e^{i\Delta}$

Fresnelovy koeficienty:

$$r_p = \frac{N_2 \cos \theta_1 - N_1 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_2 + N_2 \cos \theta_1} \quad r_s = \frac{N_1 \cos \theta_1 - N_2 \cos \theta_2}{N_1 \cos \theta_1 + N_2 \cos \theta_2}$$

Snellův zákon: $N_1 \sin \theta_1 = N_2 \sin \theta_2$

Index lomu okolí: $N_1 = \sqrt{\epsilon_a}$ Index lomu vzorku: $N_2 = \sqrt{\epsilon_s}$

Inverzí výše uvedených rovnic obdržíme v případě polonekonečného izotropního vzorku explicitní analytický výraz pro dielektrickou funkci (jak její reálnou tak i imaginární část):

$$\epsilon_s(\Psi, \Delta) = \epsilon_a \sin^2 \theta_1 \left(1 + \tan^2 \theta_1 \left(\frac{1 - \rho(\Psi, \Delta)}{1 + \rho(\Psi, \Delta)} \right)^2 \right)$$

shrnutí: ze dvou měřených veličin Ψ a Δ určíme dvě veličiny ϵ_1 a ϵ_2

Lorentzův oscilátor

Newtonova rovnice harmonicky buzeného mechanického oscilátoru:

$$m \frac{d^2 x(t)}{dt^2} = -k x(t) - m\gamma \frac{dx(t)}{dt} + qE_0 e^{-i\omega t}$$

Řešení:

$$x_0(\omega) = \frac{F}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\omega\gamma}$$

$$\omega_0 = \sqrt{\frac{k}{m}}, \quad F = \frac{qE_0}{m}$$

polarizace je hustota dipólového momentu

$$P(\omega) = \sum_j n q x_{0,j}(\omega) \quad n: \text{koncentrace}$$

z definice dielektrické funkce:

$$\varepsilon(\omega) = 1 + \frac{P(\omega)}{\varepsilon_0 E(\omega)} = 1 + \sum_j \frac{\omega_{pl,j}^2}{\omega_{0,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$

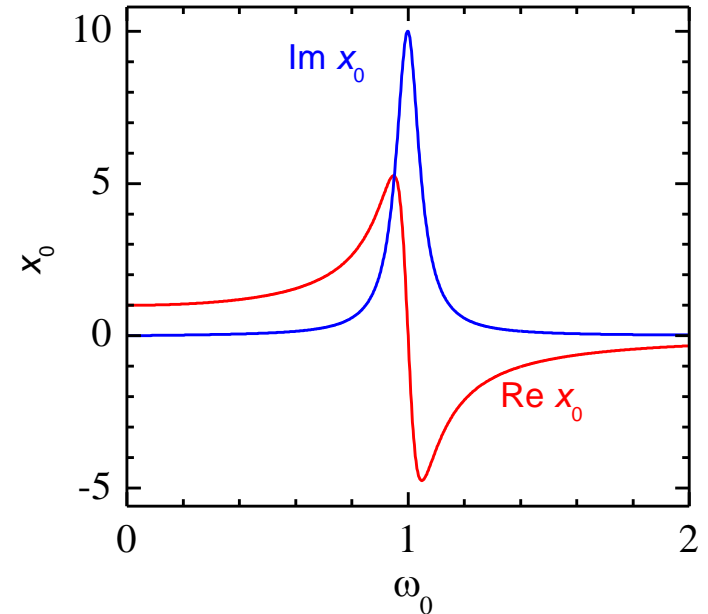
plasmová frekvence:

$$\omega_{pl,j} = \sqrt{\frac{q_j^2 n_j}{\varepsilon_0 m_j}}$$

příspěvek vysokofrekvenčních přechodů lze nejhruběji aproximovat konstantou:

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty + \sum_j \frac{\omega_{pl,j}^2}{\omega_{0,j}^2 - \omega^2 - i\omega\gamma_j}$$

- dielektrická funkce nezávislých Lorentzových oscilátorů. Typicky dobře funguje pro fonony. Drudeův model kovů dostaneme dosazením $\omega_0=0$



Drudeova formule

- odezvu volných nosičů náboje získáme pro $\omega_0=0$

$$\varepsilon(\omega) = \varepsilon_\infty - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega(\omega + i\gamma)}$$

plasmová frekvence $\omega_{pl} = \sqrt{\frac{q^2 n}{\varepsilon_0 m^*}}$

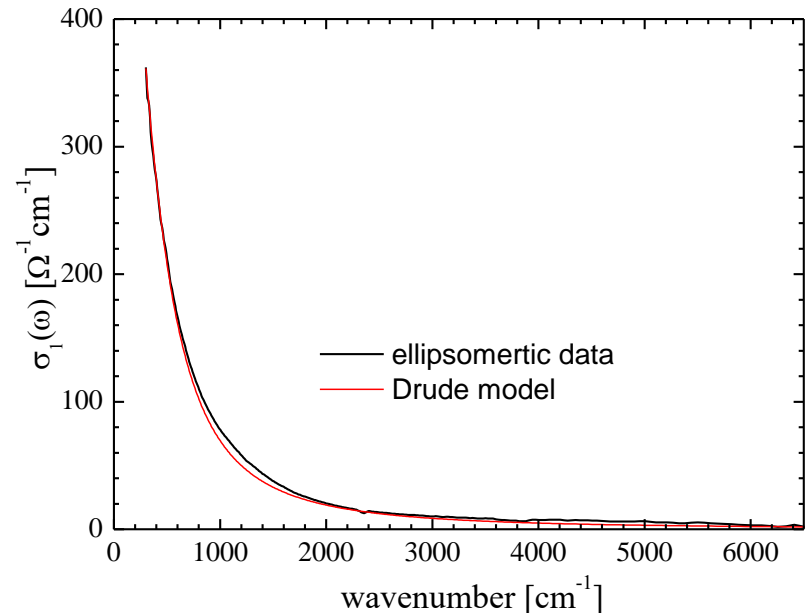
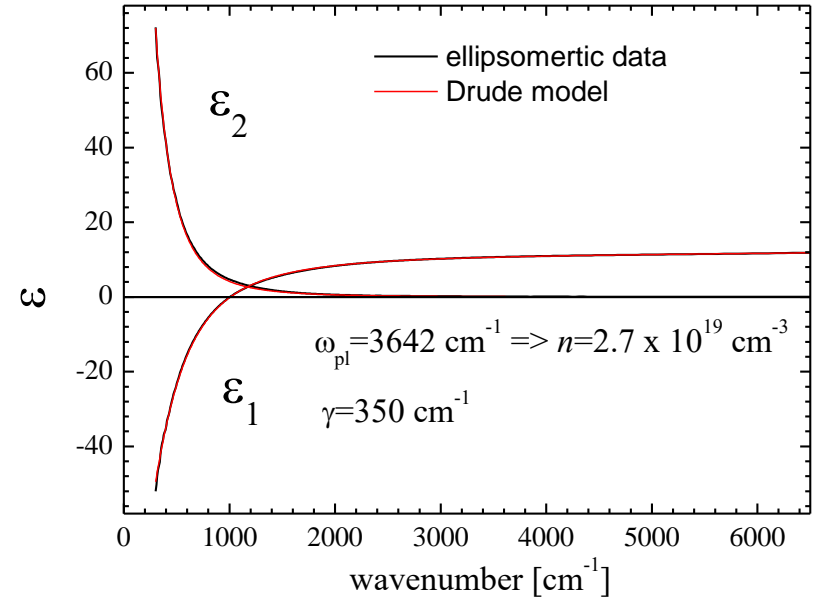
závisí na koncentraci nositelů n a na jejich efektivní hmotnosti m^*

ε_1 prochází nulou (pro $\gamma \sim 0$) pro

$$\omega = \frac{\omega_{pl}}{\sqrt{\varepsilon_\infty}}$$

pro $\varepsilon_\infty = 1$ je to přímo ω_{pl} . Na této frekvenci se v látce propaguje longitudinální plasmon, proto se této frekvenci říká plasmová.

Ukázka dielektrické funkce n-dopovaného křemíku



Elipsometr pro vzdálenou infračervenou oblast v CEITECu

- jen asi 4 přístroje podobného typu na světě
- kryostat s uzavřeným cyklem helia 7-400 K
- rozhraní s ultra-nízkými vibracemi pro ods stranění vlivu vibrací
- motorizovaný goniometr s rozlišením 0.01°
- automatizované měření ~15 teplot za 24 hodin
- detektor - 4.2K (a nově 1.6 K) bolometr

ANA - Analyzer
APT1,2 - Aperture
BMS - Beam Splitter
BOLO - Bolometer
FM1,3,4 - Parabolic Mirror
FM2 - Elliptical Mirror
GLB - Glow Bar
GON - Goniometer
HG - Mercury Lamp
LAS - Alignment Laser
PM1,2,3 - Plane Mirror
POLA - Polarizer
PSD - Position Detector
RM - Removable Mirror
SMP - Sample Holder
W - Tungsten Lamp

