

Raport științific

privind implementarea proiectului PN-III-P4 -ID-PCE-2016-0534, contract 195/2017, în perioada August 2017 – Decembrie 2017.

Lista activităților prevăzute pentru etapa I este prezentată în figura din dreapta. Menționez că activități în direcția atingerii unora dintre obiectivele proiectului s-au derulat încă de la începutul anului 2017 astfel că unele rezultate preliminare au putut fi prezentate la „**The 14th International Conference on Muon Spin Rotation, Relaxation and Resonance 25-30th June, 2017, Sapporo, Hokkaido, Japan**” și vor apărea în [Journal of the Physical Society of Japan: Conference Proceedings \(JPS Conf. Proc.\)](#).

Raportul prezintă atât rezultate ale măsurătorilor efectuate asupra probelor menționate explicit în propunerea de proiect precum și a unor probe menționate în proiect prin formularea „alte probe de interes”.

Etapa / Activitate / Participant / Descriere	
Etapa 1	Etapa 1.
Activitate 1.1	Studiul efectului curentului electric asupra distribuției de câmp în faza "skyrmion" a MnSi
Participant	UNIVERSITATEA BABES BOLYAI
Activitate 1.2	Diagrama de faza a Na_xCoO_2 sintetizate prin reacție electrochimică.
Participant	UNIVERSITATEA BABES BOLYAI
Activitate 1.3	Studiul stării fundamentale a $\text{Li}_2\text{SdMo}_3\text{O}_8$ și $\text{Li}_2\text{InMo}_3\text{O}_8$
Participant	UNIVERSITATEA BABES BOLYAI
Activitate 1.4	Teste condiții producere RM2
Participant	UNIVERSITATEA BABES BOLYAI
Activitate 1.5	Pagina web a proiectului și raportul anual
Participant	UNIVERSITATEA BABES BOLYAI

Introducere.

Limba de prezentare a rezultatelor reflectă într-o oarecare măsură stadiul cercetării: limba română pentru descrierile generale; limba engleză pentru rezultate aflate în curs de publicare sau în discuție în vederea publicării. O variantă în limba română poate fi pusă la dispoziția referenților, la nevoie.

Toate experimentele μSR au fost efectuate la Institutul Paul Scherrer (PSI), Villigen-PSI, Elveția folosind, parțial, echipamentul și celulele de presiune proiectate de directorul acestui proiect [AN01 și bibliografia aferentă].

1. Metoda μSR este metoda experimentală cel mai des folosită pentru investigațiile propuse în acest proiect. Având în vedere că această metodă este mai puțin cunoscută în România, voi începe, tradițional, cu o scurtă prezentare a acesteia [AN01, KH16].

Într-un experiment μSR , un fascicul de mioni, particule elementare cu spin $1/2$ și 100% polarizate (i.e. spinul orientat în sens opus impulsului) sunt introduse în proba pe care dorim să o investigăm. În probă, mionii se opresc în anumite poziții cristalografice iar spinul lor execută o mișcare de precesie în jurul câmpului magnetic local B_{loc} până în momentul dezintegrării, timpul de viață mediu al mionului fiind de aproximativ $2.2 \mu\text{s}$. Pozitronul rezultat în urma dezintegrării mionului este emis preferențial pe direcția spinului mionului în momentul dezintegrării acestuia. Înregistrând, cu ajutorul

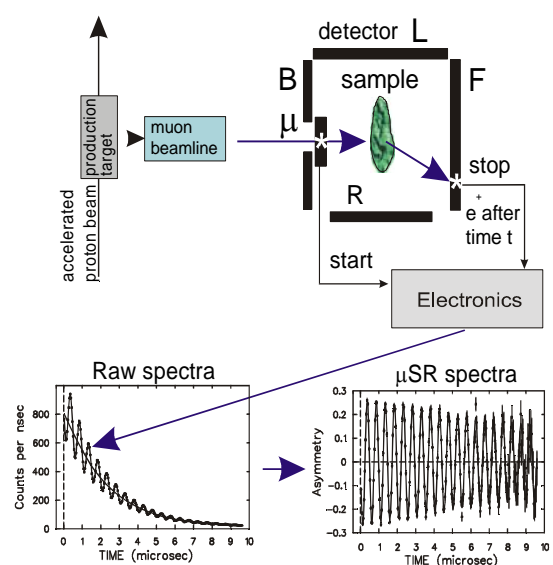


Figura 1. Schema înregistrării datelor într-un experiment μSR .

detectorilor plasați în jurul probei, distribuția spațială a pozitronilor emiși, se pot obține informații despre valoarea câmpului magnetic local, a distribuției acestui câmp magnetic și despre dinamica câmpului magnetic.

În Figura 1 este prezentată schema înregistrării datelor într-un experiment μ SR. Mionii intră în probă unul câte unul (în cazul surselor continue de mioni, cum este cea de la PSI). La intrarea mionului în zona de măsură, detectorul pornește un ceas care apoi va fi oprit după un timp t , atunci când un pozitron este detectat într-unul din detectorii care înconjoară proba. Evenimentul este înregistrat, pentru detectorul respectiv, într-o histogramă ($N(t)=N(t)+1$). Prin înregistrarea unui număr mare de evenimente (de ordinul a 2-4 milioane) se obține "spectrul" μ SR (Raw spectra, în Figura 1, nu e chiar un spectru, în sensul reprezentării în spațiul frecvențelor, e o histogramă, însă s-a încetățenit folosirea acestei denumiri și o voi folosi pe mai departe fără a mai adăuga ghilimelele). Se observă că spectrul μ SR este compus din dezintegrarea radioactivă a mionului, peste care se suprapune o componentă datorată anizotropiei acestei dezintegrări (reamintim că mionul se dezintegrează *PREFERENȚIAL* pe direcția pe care o avea spinul acestuia în momentul dezintegrării), modulată de evoluția temporală a polarizării fascicolului de mioni. Metoda are multe asemănări cu metoda NMR.

Rezultatele, pentru fiecare detector sunt apoi fitate folosind:

$N(t) = B + N_0 \exp(-t/\tau)[1 + A_0 P(t)]$, unde τ este timpul de viață medie al mionului, A_0 este așa-numita asimetrie inițială (între 0.24 și 0.28, depinde de geometria experimentului) iar $P(t)$ reflectă evoluția temporală a polarizării inițiale a fascicolului de mioni. Partea care conține informațiile de interes este $A_0 P(t)$ (vezi ultimul grafic din Figura 1. Forma funcției de fit $A_0 P(t)$ folosite pentru fitul datelor experimentale relevă informații despre magnetismul probei investigate.

În cazul în care proba supusă investigării conține două (sau mai multe) faze magnetice, atunci $A_0 P(t) = \sum_{i=1}^n A_i P_i(t)$, cu $A_0 = \sum_{i=1}^n A_i$, unde n este numărul de faze magnetice. Fiecare fază magnetică va putea fi identificată prin semnătura ei caracteristică în $P_i(t)$. Foarte important, metoda permite o evaluare cantitativă a fracțiilor din probă care au un comportament magnetic sau altul (de exemplu în cazul în care proba se află în interiorul unei celule de presiune sau în cazul în care avem separare de fază magnetică).

În cazul experimentelor μ SR **sub presiune**, proba se plasează în interiorul unei celule de presiune, vezi Figura 1.1 și Figura 1.2 [AN01]. Proba (albastră în versiunea on-line) este complet separată de compartimentul în care se aplică presiunea. În acest fel se evită



Figura 1.1. Părțile componente ale celulei de presiune.

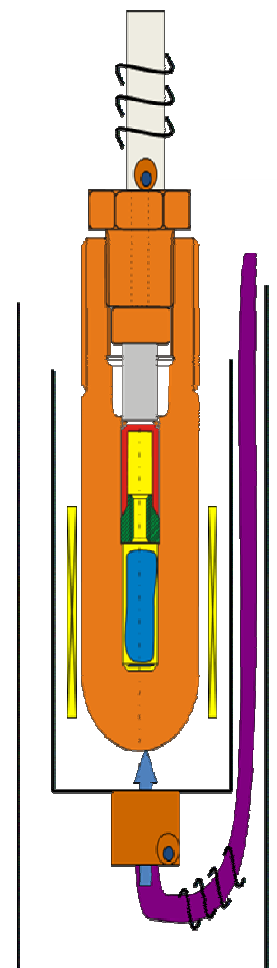


Figura 1.2. Celula de presiune montată în interiorul unui "flow cryostat".

pătrunderea de "corpuri străine" în fascicolul de muoni. Acest lucru este important pentru a evita introducerea de termeni suplimentari în funcția folosită la fitul datelor experimentale. Proba este imersată într-un fluid care asigură hidrostabilitatea presiunii aplicate (am folosit ulei DAPHNE sau un amestec 1:1 de isopropil-alcool și n-pentan). După închidere, celula de presiune a fost montată fie pe un "cold finger" de la un criostat OXFORD INSTRUMENTS (0.23 K - 300 K), fie într-un "flow cryostat" JANIS (2.8 K - 300 K). Intervalul de presiuni care poate fi folosit depinde de materialul din care sunt construite celulele de presiune și de diametrul interior al acestora (diametrul exterior este 24 mm, din considerente legate de geometria interioară a criostatelor folosite). Folosind MP35N pentru construcția celulelor de presiune și un diametru de 5 mm pentru probă, se pot obține presiuni de aprox 20-25 kbar la temperaturi joase. Presiunea la temperaturi joase se măsoară "in situ" măsurând, prin susceptibilitate AC (bobinele galbene din desenul din Figura 1.2), dependența de presiune a temperaturii de tranziție supraconductoare a unei bucăți mici de Indiu, plasate în celula de presiune imediat sub probă.

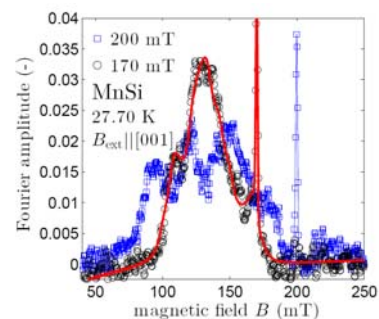
2. Rezultate/activități:

A.1.1. Studiul efectului curentului electric asupra distribuției de câmp în faza "skyrmion" a MnSi

Extras din propunerea de experimente μ SR: „Following the discovery of a skyrmion lattice phase in MnSi, and the potential use of skyrmions in magnetic memories, compounds of the MnSi family are intensively studied. Building on the experimental determination of the muon site in MnSi, and the resolution of the magnetic structure in the helical and conical phases obtained through the analysis of μ SR spectra, we have started the analysis of spectra recorded for the skyrmion lattice phase of MnSi. With this background, the step forward is to study the effect of the current-induced motion of the skyrmion lattice of MnSi. This is the subject of the present proposal.

The motion of skyrmions driven by an electric current was first evidenced for MnSi by SANS experiments: an ultra low current density on the order of 10^6 Am^{-2} triggers the rotation of the skyrmion lattice [JO-10]. In fact, a thermal gradient was applied to boost the rotation which is much easier to measure by SANS than a translation motion. Later on, Lorentz transmission electron microscopy revealed induced translational and rotational motion of the skyrmion lattice in a microdevice made of the helimagnet FeGe [YU-13]. A moving skyrmion is expected to induce an emergent electric field following Faraday's law of induction. Hall-effect measurements for MnSi have established the reality of the emergent electrodynamics [SC-12]. It confirms the depinning of skyrmions from impurities for current densities of the order of 10^6 Am^{-2} .”

Investigarea diagramei de fază a MnSi a fost punctul de plecare pentru acest proiect, cu mai mulți ani în urmă: după ce am investigat dependența de presiune a magnetismului în MnSi și arătat ne-existența unei separări de fază în MnSi la presiuni înalte [AN-10], am demarat un proiect pentru investigarea structurilor magnetice ale MnSi: elicoidală – conică – skyrmion – conică – ... în funcție de valoarea câmpului magnetic, în apropierea temperaturii de tranziție (aprox 29 K). O ultimă etapă în acest proiect dorim să studiem efectul unui curent electric asupra rețelei de skyrmioni. Primele experimente le vom avea la Institutul Paul Scherrer între 15 și 18 Decembrie. Ideea de bază este încercarea de monitorizare a deplasării rețelei de skyrmioni sub efectul unui curent electric. Având în vedere că miunonii sunt poziționați în poziții cristalografice bine determinate (cel puțin pentru MnSi, AM-14) și că distribuția de câmp pentru faza elicoidală, conică (27.7 K și 170 mT, RE-16, RE-17) și skyrmion a fost deja



măsurată în experimente mSR, în absența unui curent electric, experimentele din Decembrie ar trebui să ne permită să observăm-caracterizăm mișcarea, indusă de câmp, a rețelei de skyrmioni. Această mișcare a fost deja evidențiată în MnSi prin experimente SANS (small angle neutron scattering): un curent de ordinul a 10^6 Am^{-2} declanșează rotația rețelei de skyrmioni.

A.1.2. Diagrama de faza a Na_xCoO_2 sintetizate prin reacție electrochimică.

Extras din propunerea de experimente μSR : "To complete our investigation of the magnetic phase diagram we will measure the $x = 1/3$, $x = 1/4$ and $x > 0.85$ samples. For each Na composition we will perform ZF and WTF $\mu^+\text{SR}$ measurements from $T = 2 \text{ K} - 100 \text{ K}$. We would like to perform the experiment at the GPS instrument because of its fast temperature control, even so the DOLLY instrument will also be suitable. Since the samples are sensitive to humidity, they will be mounted in silver envelopes sealed by Torr Seal (Low vapor pressure resin sealant) in a He-filled glove-box and fixed to the standard GPS/DOLLY sample holder with Ag tape. The sample size being of $7 - 10 \text{ mm}$ and 1 mm thick, we plan to use the low background insertion set-up together with the standard cryostat. To extract the internal magnetic fields, a reasonable statistic is needed. From our previous experiments we evaluated that two hours measurement is needed for each ZF temperature point and about 20 mins for the WTF ones. Adding the sample change and temperature control, we will need 24 hours (1 day) per sample meaning a total of 72 hours (3 days). Therefore, we kindly request 3 days of beamtime."

Experimentele au fost efectuate la sfârșitul sfârșitul lunii August. Datele experimentale sunt în curs de analizare în vederea publicării.

A.1.3. Studiul stării fundamentale a $\text{Li}_2\text{ScMo}_3\text{O}_8$ și $\text{Li}_2\text{InMo}_3\text{O}_8$

Extras din propunerea de experimente μSR : "We request a 8 days beam-time using HAL9500 for hTF- $\mu^+\text{SR}$ measurements of the two samples under the assumption that we need 120 minutes per temperature per field for measuring one hTF-spectrum. For $\text{Li}_2\text{InMo}_3\text{O}_8$, we want to measure K above and below T_N as a function of H in the H range between 0.01 and 8 T, namely, 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2, 0.5, 1, 2, 4, 5, 6, 7, and 8 T. The correct H values will be estimated by a calibration table, which will be made with an NMR probe prior to the hTF- $\mu^+\text{SR}$ experiment. Thus, we need 3 days for measuring the $K(H)$ curve at 4 and 20 K including sample change and temperature control. For $\text{Li}_2\text{ScMo}_3\text{O}_8$, on the other hand, we also want to measure $K(T)$ curve as a function of H below 3000 K, i.e., 0.01, 0.1, 1, and 8 T. Since we plan to measure 15 temperature points with each H , we need 1.3 days per one T scan, leading to 5 days for this sample. Here, we assume about 5 hours for sample change and cooling. Furthermore, in order to check the magnetic nature of the samples in ZF, we need to use either GPS or Dolly for 2 days. Therefore, our request is 8 days on HAL9500 and 2 days on GPS/Dolly in total."

Experimentele au fost efectuate la sfârșitul sfârșitul lunii Septembrie. Datele experimentale sunt în curs de analizare în vederea publicării.

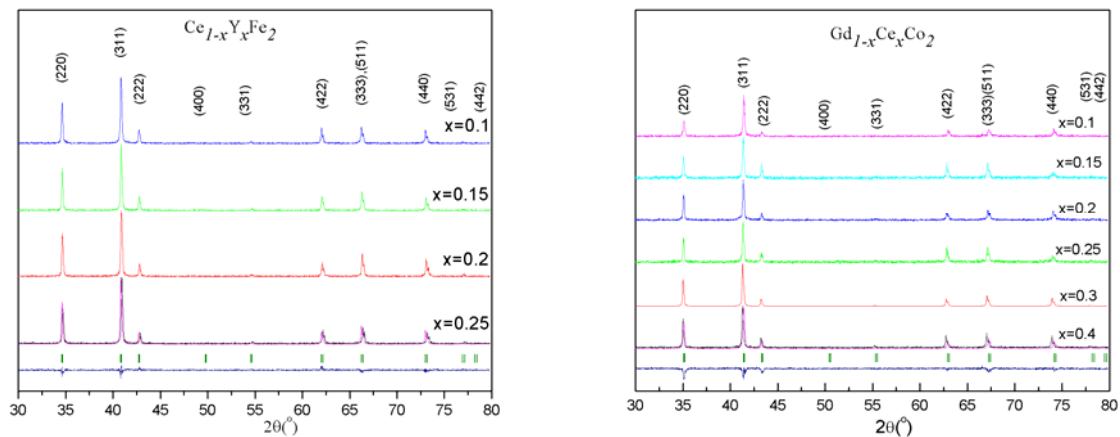
A.1.4. Teste condiții producere RM2

Extras din capitolul care prezintă prepararea probelor, teza Drd. Souca Gabriela, membră în proiect: Experimental details about sample preparation and structure investigation on $\text{Ce}_{1-x}\text{Y}_x\text{Fe}_2$ and $\text{Gd}_{1-x}\text{Ce}_x\text{Co}_2$ compounds

Polycrystalline samples of $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ with $x = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25$ and $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$ with $x = 0.1, 0.15, 0.2, 0.25, 0.3, 0.4$ were prepared by arc-melting mixtures of Ce, Y, Gd, Fe and Co of 99.9% purity, under purified argon atmosphere. A small excess of rare earth element, about 3% of Ce, 1%Y for $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ system and 3% Gd, 1% Ce for $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$ system, compared to the calculated amount, was used in order to compensate for losses during melting. The ingots were remelted several times in order to ensure a good homogeneity. The samples were sealed in quartz tube in vacuum and heat treated, at 800°C for 5 days for $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ system and 850°C for 7 days for $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$, and slowly cooled to room temperature.

The crystal structure of those compounds was checked by X-ray diffraction, (XRD). The powder X-ray diffraction patterns were recorded by using a Bruker D8 Advance AXS diffractometer with Cu K α radiation at room temperature. The selected diffraction angle was $2\theta = 30^\circ$ to 80° , with a step of 0.02 degree and an acquisition time of 5 seconds/step. The structural analysis was performed by Rietveld refinement [1].

XRD patterns of the $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ and $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$ are presented in Fig.1. XRD measurements show that all samples are single phase and all possess a cubic Laves type structure (C15) with the $Fd\bar{3}m$ space



group, specific to $CeFe_2$ phase.

Fig.1. X-ray diffraction patterns of the $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ and $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$ samples

The lattice parameters calculated from the Rietveld analysis using Fullprof software are listed in Table 1.

Table 1 Lattice parameters for $Ce_{1-x}Y_xFe_2$ and $Gd_{1-x}Ce_xCo_2$ compounds

Compound	a (Å)	Compound	a (Å)
$Ce_{0.9}Y_{0.1}Fe_2$	7.30(9)	$Gd_{0.9}Ce_{0.1}Co_2$	7,24(7)
$Ce_{0.85}Y_{0.15}Fe_2$	7.31(7)	$Gd_{0.85}Ce_{0.15}Co_2$	7,24(4)
$Ce_{0.8}Y_{0.2}Fe_2$	7.31(9)	$Gd_{0.8}Ce_{0.2}Co_2$	7,23(9)
$Ce_{0.75}Y_{0.25}Fe_2$	7.32(5)	$Gd_{0.75}Ce_{0.25}Co_2$	7,23(5)
		$Gd_{0.7}Ce_{0.3}Co_2$	7,23(8)

Compound	a (Å)	Compound	a (Å)
		Gd _{0.6} Ce _{0.4} Co ₂	7,22(8)

For both series, the lattice parameter is, within the error bars and for the prepared concentrations, only slightly dependent on the substituent content

A.1.5. Pagina web a proiectului si raportul anual

Pagina web a proiectului se află la <http://phys.ubbcluj.ro/~daniel.andreica/IDEI-2016/idei-2016.htm>

A.N.N. Alte probe de interes

SUPPRESSION OF CHARGE AND ANTIFERROMAGNETIC ORDERING IN Ga-DOPED La_{0.4}Ca_{0.6}MnO₃ (Articol în curs de publicare)

We investigate the structural, magnetic and magnetotransport properties of the Ga doped compounds La_{0.4}Ca_{0.6}Mn_{1-x}Ga_xO₃. The undoped compound La_{0.4}Ca_{0.6}MnO₃ (LCMO) shows an antiferromagnetic (AFM) ground state and charge ordering (CO) at low temperatures. The partial replacement of manganese ions by non magnetic d^{10} Ga³⁺ ions can disrupt the charge, orbital, spin ordering. The magnetic and magnetotransport measurements showed that CO and AFM phases are weakened with increasing Ga content; T_{CO} and T_N shift to lower temperatures. Below 100 K, the AFM/CO phase was partially transformed in ferromagnetic (FM) clusters which grow with increasing Ga content. Non-magnetic Ga, doped in LCMO increases the magnetism in the samples. The compounds have semiconducting behavior in the whole investigated temperature range. The samples showed negative magnetoresistance (MR) that is not much affected by the Ga content. The maximum value of MR ~ 30 % (for 7 T) was always reached at the base temperature (75 K), suggesting that this behavior is mainly decided by extrinsic factors, such as grain boundaries, disorder and charge carriers localization. The magnetic and electrical properties of these compounds at low temperatures suggest that they are composed of a mixture of charge ordered and charge disordered phases of various proportions.

References

[AM-14] A. Amato, P. Dalmas de Réotier, D. Andreica, A. Yaouanc, A. Suter, G. Lapertot, I. M. Pop, E. Morenzoni, P. Bonfà, F. Bernardini, and R. De Renzi, Phys. Rev. B, 89, 184425 (2014).

[AN-01] Daniel Andreica, Dissertation ETH-Zurich No. 14170/2001, <https://www.research-collection.ethz.ch/handle/20.500.11850/145189>

[BA-17] C. Badea, R Tetean, I.G. Deac (în curs de publicare)

[JO-10] F. Jonietz *et al.*, Science, **330**, 1648 (2010).

[KH-16] R. Khasanov, Z. Guguchia, A. Maisuradze, D. Andreica, M. Elender, A. Raselli, Z. Shermadini, T. Goko, F. Knecht, E. Morenzoni and A. Amato, High Press. Res. **36** (2016) 140. <https://arxiv.org/abs/1603.08847>

[RE-16] P. Dalmas de Réotier,^{1,2} A. Maisuradze,³ A. Yaouanc,^{1,2} B. Roessli,⁴ A. Amato,⁵ D. Andreica,⁶ and G. Lapertot^{1,2}, Phys. Rev. B, 93, 144419 (2016).

[RE-17] P. Dalmas de Réotier *et al.*, Phys. Rev. B, **95**, 180403(R) (2017).

[RI-69] H.M. Rietveld, J.Appl. Cryst. 2 (1969)

[SC-12] T. Schulz *et al.*, Nat. Phys., **8**, 301 (2012).

[ZU-12] X. Z. Yu *et al.*, Nat. Commun., **3**, 988 (2012).

Director proiect,

Conf. Dr. Daniel Andreica

