

Ph.D. tézisfüzet

Egzotikus magneto-optikai effektusok kristályos anyagokban

Bordács Sándor

Témavezető: Dr. Kézsmárki István
Fizika tanszék
Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

BME
(2011)

Bevezetés

Kristályos vegyületek spin, rács és töltés szabadsági fokainak összefonódása új keresztteffektusok megjelenését eredményezi, melyek vizsgálata a modern szilárdtestfizikai alap kutatások egyik kiemelt területe. A kutatások motivációját jelenti, hogy az anyagok fizikai tulajdonságainak külső hatásokkal, úgymint hőmérséklet, nyomás, elektromos vagy mágneses tér, történő manipulálásán alapulnak a szenzorok, az adatátviteli és az adattároló technológiák, stb. Ezen alkalmazások egyik előfeltétele, hogy a keresztteffektusok kellően erősek legyenek. Napjainkban az ún. "multiferro" kristályokat intenzíven vizsgálják, amelyekben mágneses és ferroelektromos rendeződés él együtt. Ezen anyagok jelentősége, hogy bennük a ferroelektromosság mágneses térrévén, illetve mágnesezettség elektromos tér segítségével változtatható.

Magneto-optikai effektusoknál a kristályban terjedő fény intenzitása illetve polarizációja mágneses tér hatására megváltozik. Ha a fény polarizációja elfordul miközben áthalad egy mágneses anyagon, Faraday-effektusról beszélünk, míg a fény polarizációjának megváltozását mágneses mintáról visszaverődve, magneto-optikai Kerr-effektusnak hívjuk. Ha az anyag nem rendelkezik időtükrözési szimmetriával, azaz mágneses, a cirkulárisan polarizált állapotok ekvivalenciája sérül, ami a lineáris polarizáció elfordulását eredményezi. Pontosabban, a mágnesezettség és a spin-pálya csatolás együttes hatására az elektronok pályamomentuma megváltozik, így a jobbra ill. balra cirkulárisan polarizált fény eltérő módon hat kölcsön az anyaggal. Ennek következtében a magneto-optikai spektroszkópia segítségével a spin-polarizált sáv szerkezetéről szerezhetünk információt. Meghatározhatunk olyan fundamentális paramétereket, mint a Coulomb kölcsönhatás, a kristálytér felhasadás, a spin-pálya csatolás vagy a mágneses kicserélődési kölcsönhatás erőssége. Az elmúlt évtizedben demonstrálták, hogy a magneto-optikai Kerr-effektus révén a mágnesezettség térbeli eloszlását mikrométeres skálán, valamint időbeli változását picoszekundumos felbontással lehet követni.

Napjainkban új magneto-optikai effektusokat fedeztek fel olyan anyagokban, amelyekben a kristályrács térbeli szimmetriája alacsony. Ha a mágneses kristály az időtükrözési szimmetria mellett az inverziós szimmetriát is sérti, a fény sebessége és az abszorpciók együttható különböző lehet az egymással szemben terjedő polarizálatlan sugarakra. Ez az effektus az irányfüggő kettőtörés ill. dikroizmus néven ismert. A jelenség széleskörű, technológiai alkalmazását gátolja az a körülmény, hogy a mindezidáig vizsgált anyagokban csekély.

Célkitűzések

Doktori munkámnak két fő célja volt. Egyrészt, vizsgáltam a különböző keresztteffektusok eredetét optikai és magneto-optikai spektroszkópia segítségével olyan kristályos vegyületek töltés, rács és spin szabadsági fokainak gerjesztésében, melyek összetett mágneses rendeződést mutatnak. A disszertáció felépítését követve, először itineráns, mágneses anyagokban vizsgáltam a magneto-optikai aktivitás eredetét. Ezt követően tanulmányoztam a magneto-elaszticitást króm spinellekben, ahol a rácsrezgések felhasadásán keresztül, a mágneses fázisban bekövetkező szimmetria csökkenést távoli infravörös spektroszkópia segítségével figyeltem meg. Végül a $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ multiferro renddel bíró kristály spin-hullám gerjesztéseinek mágneses térfüggését követtem nyomon annak érdekében, hogy megvizsgálhassam az elektromos polarizáció és a mágneses rendeződés összefonódásának hatását a spin rendszer dinamikájára.

Másfelől doktori munkám során olyan anyagokat kerestem, melyek új, és lehetőleg az alkalmazások számára kellő erősségű magneto-optikai effektusokat mutatnak. A $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ multiferro fázisában óriási irányfüggő dikroizmust figyeltem meg, melyet az elektromos és a mágneses dipól gerjesztések keveredésének tulajdonítottam. Továbbá, megmutattam, hogy a speciális, inverziós szimmetriát sértő kristálystruktúrának köszönhetően külső mágneses tér segítségével ez az anyag királissá tehető. Ebben fázisban a spin gerjesztések tartományában vizsgáltam a királitás következtében fellépő természetes optikai aktivitást és magneto-királis effektust.

Kísérleti módszerek

A mágneses anyagok töltés, rács és spin szabadsági fokainak gerjesztését széles spektrumon végzett optikai és magneto-optikai kísérletekkel tanulmányoztam.

Hagyományos optikai spektroszkópia esetén kereskedelmi forgalomban kapható spektrométereket alkalmaztam, míg magneto-optikai méréseimhez egyedi spektrométer fejlesztésében vettem részt. Ez utóbbi egy hagyományos rácsos és egy FT-IR spektrométert egyesít, így lefedi az $E=0.1-4$ eV energia tartományt. A magneto-optikai effektusok során fellépő polarizáció elfordulás érzékeny detektálását egy polarizáció modulációs technikával valósítottam meg, melynek köszönhetően $\theta \leq \pm 0.005^\circ$ polarizáció elfordulást tudtam kimutatni a teljes spektrumban.

Spin gerjesztéseket időfelbontásos terahertz spektroszkópia segítségével vizsgáltam, amelyet a femtoszekundumos LASER-ek fejlődésének köszönhe-

tően az elmúlt évtized során fejlesztettek ki. A módszer előnye, a hagyományos üreg rezonátorokban végzett elektron spin rezonancia kísérletekkel összehasonlítva, hogy a gerjesztő fény energiája folytonosan hangolható és egyszerűen meghatározható a fény polarizáció változása a komplex transzmissziós együtthatók közvetlen mérésével.

Új tudományos eredmények

Doktori munkám főbb eredményeit az alábbi tézispontokban foglaltam össze:

1. Időfelbontásos terahertz spektroszkópia segítségével a multiferro $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ spin-hullám gerjesztéseit vizsgáltam a hőmérséklet-mágneses tér fázisdiagram kiterjedt tartományában. A polarizációs kiválasztási szabályok feltérképezésével megállapítottam, hogy a terahertz tartományban megfigyelt két magnon módus közül az egyik a gerjesztő fénynek mind az elektromos mind a mágnes komponensére érzékeny, míg a másik módus csak a fény mágneses terével gerjeszthető. Az előbbi esetén nagy, $\Delta\alpha/\alpha \sim 50\%$, irányfüggő dikroizmust figyeltem meg, amelyet az elektromos és mágneses dipól gerjesztések közötti erős csatolással magyaráztam. [1]
2. A $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ természetes optikai forgatását és ellipticitását vizsgáltam a terahertz frekvencia tartományban megjelenő spin gerjesztések esetén. Azt találtam, hogy az [100] ill. a [010] irányba alkalmazott mágneses tér királissá teszi a kristályt. Megmutattam, hogy az anyag jobb és bal kezes módosulata között kapcsolgathatunk a mágneses térnek az [100] irányból a [010] irányba történő forgatásával, ahogyan az a szimmetria megfontolásokból várható. A mágneses tér indukálta királis fázis további következményeként különösen erős, $\Delta\alpha/\alpha \sim 20\%$, magneto-királis effektust tapasztaltam. [5]
3. Rácsrezgések távoli infravörös reflektivitását vizsgálva, tanulmányoztam a rácsszimmetria csökkenését ACr_2O_4 króm spinellek mágneses fázisátalakulásai során. A MnCr_2O_4 és a CoCr_2O_4 szimmetriája, a kísérletek érzékenységein belül, köbös marad szobahőmérséklettől egészen $T=10\text{ K}$ -ig. Ellenben a FeCr_2O_4 , a NiCr_2O_4 és a CuCr_2O_4 rácsa legalább orthorhombossá torzul a mágnesesen rendezett fázisban. Megmutattam, hogy a rácsszimmetria azokban az anyagokban csökken, amelyekben az A alrácson elhelyezkedő kation pálya degenerációval rendelkezik a köbös fázisban. [2]

4. Résztvettem egy széles energia tartományban működő magneto-optikai spektrométer fejlesztésében, amely lehetővé teszi a magneto-optikai Kerr-effektus detektálását az $E=0.1-4$ eV tartományban $\theta=\pm 0.005^\circ$ érzékenységgel. Ezt a berendezést használva, megmértem a CuCr_2Se_4 magneto-optikai spektrumát különböző hőmérsékleteken. A mért reflektivitás és Kerr spektrumokból kiszámítottam a diagonális és a nem-diagonális optikai vezetőképességet, amelyeket összevettem az irodalomból ismert sávszerkezet számításokkal és jó egyezést találtam. Ezen elméleti eredményeket felhasználva, az $E\approx 0.5$ eV gerjesztési energia közelében újonnan megfigyelt abszorpciós csúcsot a Cr-Se hibridizáció következtében létrejövő tiltott sávnak tulajdonítottam, amely a CuCr_2Se_4 közel félfémes viselkedéséért és nagy nem-diagonális vezetőképességéért felelős. [3]
5. Elektron és lyuk adalékolt $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ kristályok anomális Hall-effektusát tanulmányoztam a nem-diagonális vezetőképesség, σ_{xy} , optikai frekvenciákon történő meghatározásával. Az alacsony energiás gerjesztések tartományában a $\text{Nd}_2\text{Mo}_2\text{O}_7$ mintákat a fentiekben bemutatott széles sávú magneto-optikai spektrométer segítségével vizsgáltam. Azt találtam, hogy a Fermi-energia eltolódása következtében a nem-diagonális vezetőképesség alacsony energiás részének nagysága, az ebben a tartományban megjelenő csúcs pozíciója és az egyenáramú anomális Hall-effektus azonos módon változik. Felvettem, hogy a fenti jelenségek eredete közös, a nem-diagonális vezetőképesség alacsony energiás viselkedését egy sáv degenerációs pont (band anticrossing point) határozza meg. Ezzel a feltételezéssel élve, a kísérleti adatokat egy releváns kétsáv modell segítségével reprodukáltam. [4]

Tézispontokhoz kapcsolódó publikációim

- [1] I. Kézsmárki, N. Kida, H. Murakawa, S. Bordács, Y. Onose, and Y. Tokura
Enhanced Directional Dichroism of Terahertz Light in Resonance with Magnetic Excitations of the Multiferroic $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ Oxide Compound
Physical Review Letters 106, 057403 (2011)
- [2] S. Bordács, D. Varjas, I. Kézsmárki, G. Mihály, L. Baldassarre, C. A. Kuntscher, K. Ohgushi, Y. Tokura
Magnetic-order-induced crystal symmetry lowering in ACr_2O_4 ferrimagnetic spinels
Physical Review Letters 103, 077205 (2009)

- [3] S. Bordács, I. Kézsmárki, K. Ohgushi, and Y. Tokura
Experimental band structure of the nearly half-metal CuCr_2Se_4 : an optical and magneto-optical study
New Journal of Physics 12, 053039 (2010)
- [4] S. Iguchi, S. Kumakura, Y. Onose, S. Bordács, I. Kézsmárki, N. Nagao, and Y. Tokura
Optical Probe for Anomalous Hall Resonance in Ferromagnets with Spin Chirality
Physical Review Letters 103, 267206 (2009)
- [5] S. Bordács, I. Kézsmárki, N. Kida, H. Murakawa, L. Demkó, Y. Onose, R. Shimano, S. Miyahara, N. Furukawa, and Y. Tokura
Chirality of Matter Shows up via Spin Excitations
to be published

További közlemények

- [6] I. Kézsmárki, R. Gaál, C. C. Homes, B. Sárosi, H. Berger, S. Bordács, G. Mihály, and L. Forró
High-pressure infrared spectroscopy: Tuning of the low-energy excitations in correlated electron systems
Physical Review B 76, 205114 (2007)
- [7] I. Kézsmárki, S. Bordács
An alternative of spectroscopic ellipsometry: The double-reference method
Applied Physical Letters 92, 131104 (2008)
- [8] G. Mihály, M. Csontos, S. Bordács, I. Kézsmárki, T. Wojtowicz, X. Liu, B. Jankó, and J. K. Furdyna
Anomalous Hall Effect in the $(\text{In}, \text{Mn})\text{Sb}$ Dilute Magnetic Semiconductor
Physical Review Letters 100, 107201 (2008)
- [9] N. Hosaka, H. Yamada, Y. Shimada, J. Fujioka, S. Bordács, I. Kézsmárki, M. Kawasaki, and Y. Tokura
Magneto-optical characterization of the ferromagnetic-paramagnetic phase boundary in the composition-spread epitaxial film of $\text{Sr}_{1-x}\text{Ca}_x\text{RuO}_3$
Applied Physics Express 1, 113001 (2008)

- [10] L. Demkó, I. Kézsmárki, M. Csontos, S. Bordács, and G. Mihály
Improved thermal relaxation method for the simultaneous measurement of the specific heat and thermal conductivity
The European Physical Journal B 74, 27 (2010)
- [11] L. Demkó, B. Dóra, T. Vojta, S. Bordács, H. Yamada, M. Kawasaki, Y. Tokura, and I. Kézsmárki
Disorder promotes ferromagnetism: Rounding of the quantum phase transition in $Sr_{1-x}Ca_xRuO_3$
submitted to Nature Physics