

**SPIN GERJESZTÉSEK OPTIKAI  
VIZSGÁLATA MULTIFERROIKUS  
KRISTÁLYOKBAN**

Ph.D. Tézisfüzet

**Szaller Dávid**

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

BME  
(2017)

## A kutatások előzménye

A geometriai optika egyik fő alapelve a Helmholtz-reciprocitás [Stokes, 1849; Helmholtz, 1856; Born et al., 1980], amely szerint az ellentétesen haladó fénynyalábok ugyanazt a pályát futják be, így esetükben azonos a törésmutató. Azonban alacsony szimmetriájú rendszereken, külső mágneses térben végrehajtott új optikai kísérletek eredménye sérti ezt az alapelvet. A vizsgált anyagok képesek megkülönböztetni az ellentétesen haladó fénynyalábokat, melyek eltérő törésmutatót és abszorpciót együtthathatót éreznek. [Kleindienst et al., 1998; Rikken et al., 1998] Az eltérés a legtöbb esetben meglehetősen csekély, alig éri el a vizsgált mennyiség 0.1%-át.

Ezzel szemben a magnetoelectromos multiferroikus anyagokban, melyek egyidejűleg ferroelektromos és mágneses rendeződést is mutatnak, az ellentétesen haladó nyalábok abszorpció együtthathatója jelentősen különbözhet. [Saito et al., 2008] Az ezekben az anyagokban a lokális mágneses és elektromos momentumok között megjelenő magnetoelectromos csatolás fundamentálisan új utat nyit az adattárolás számára. A jövőben a magnetoelectromos eszközök a ferroelektromos és mágneses elven működő memóriák előnyös tulajdonságait egyesíthetik: a gyors, alacsony energiaigényű elektromos írás/olvasás közvetlenül csatolódik a robosztus mágneses adattároláshoz. [Martin et al., 2010; Wu et al., 2013] Ez a felhasználási lehetőség motiválja a multiferroikus kristályok kutatását és teszi a modern szilárdtestfizika legintenzívebben kutatott területeinek egyikévé. [Freeman et al., 1995; Fiebig, 2005; Eerenstein et al., 2006; Ramesh et al., 2007; Martin et al., 2010; Wu et al., 2013] Ugyanez a magnetoelectromos csatolás az optikai tartományban az ellentétes irányban haladó nyalábok törésmutatójának eltéréseben jelenik meg, így az eredetileg a jó sztatikus magnetoelectromos tulajdonságaik reményében alkotott új anyagok optikai spektroszkópiai módszerekkel is vizsgálhatók. Ennek célja az optikai diódák kifejlesztése, melyek egyik irányban átengedik, de ellentétes irányban elnyelik a fényt.

## Célkitűzések

A ma ismert multiferroikus kristályok többségében a spontán elektromos és mágneses rend csak kriogenikus hőmérsékleten valósul meg, ami jelentősen korlátozza a gyakorlati alkalmazásukat. A reciprocitás sértő optikai jelenségek alapjainak, és ezen effektusok multiferroikus kristályokban tapasztalható felerősödésének megértése segíthet olyan új anyagok alkotásában, amelyek szobahőmérsékleten vagy afölött is működnek, megnyitva a gyakorlati felhasználásukhoz vezető utat. Doktori kutatásom célja, hogy hozzájáruljak

ezen magával ragadó effektus alaposabb megértéséhez és a felhasználását megakadályozó problémák megoldásához.

## Új tudományos eredmények

1. Szimmetriaelvek felhasználásával meghatároztam azokat a kristálytani mágneses pontcsoportokat, melyekben reciprocitás sértő irányfüggő anizotrópia, vagyis az ellentétes irányban haladó részecskék vagy hullámok abszorpciójának vagy haladási sebességének eltérése megvalósulhat. Ezen belül az optikai spektroszkópia esetében megadtam a lehetséges anyagok széles választékát, melyek minden polarizációs állapotú fénynyaláb esetén ilyen effektust mutathatnak. A szakirodalomban már ismert mechanizmusok mellett egy új típusú irányfüggő anizotrópiát jósoltam meg. [P1]
2. Statisztikus fizikai megfontolások alapján egy összesszabályt vezettem le, ami összeköti a sztatikus magnetoelektromos szuszceptibilitást az ellentétes irányban haladó fénynyalábok esetén mérhető abszorpciós együtthatók integráljának különbségével. A Co-alapú melilit kristályok,  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  és  $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ , több különböző mérési konfiguráció esetén mért sztatikus és dinamikus magnetoelektromos válaszának összevetésével az összesszabályt kísérletileg is ellenőriztem.[P2]
3. Távoli-infravörös optikai spektroszkópiával tanulmányoztam a spinhullám rezonanciákat a  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  és  $\text{Ca}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$  kristályok antiferromágnesesen rendezett fázisában, hogy meghatározzam a releváns mágneses kölcsönhatásokat ezekben az anyagokban. Ellenőriztem, hogy a  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  legalacsonyabb frekvenciás spin-hullám rezonanciái klasszikus átlagtérelméletnek megfelelően mágneses tér függést mutatnak, és meghatároztam az izotróp kicserélődés, a kicserélődési anizotrópia és az egyion anizotrópia értékét. Erős reciprocitás sértő magnetokirális dikroizmust figyeltem meg nagy mágneses terekben mindkét anyag esetén.[P3, P4, P5]
4. Szimmetriaanalízis és a magnetoelektromos összesszabály felhasználásával megjósoltam, hogy a reciprocitás sértő irányfüggő anizotrópia megjelenése nem korlátozódik a hosszútávú mágneses rendeződést mutató anyagokra, hanem a nem inverziószimmetrikus kristályok paramágneses fázisában is megjelenhet. Elsőként figyeltem meg ezt az optikai para-magnetoelektromos effektust  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  spingerjesztéseiben.

5. Távoli-infravörös optikai spektroszkópiával tanulmányoztam a spinhullám rezonanciákat a  $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$  kristály antiferromágnesesen rendezett fázisában. Felépítettem egy klasszikus spin-hullám elméletet, amely visszaadja a mágneseszettség és a fő spin-hullám rezonanciák mágneses tér függését. A további, gyengébb gerjesztések megjelenése a spin-hullám gerjesztési spektrumban arra utal, hogy a  $\text{TbFe}_3(\text{BO}_3)_4$  mágneses szerkezete összetettebb, mint eddig gondolták, legalább hat nem ekvivalens vas alráccsal rendelkezik.[P6]

## Irodalmi hivatkozások listája

[Born et al., 1980] M. Born and E. Wolf, *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*, (Elsevier, 1980).

[Eerenstein et al., 2006] W. Eerenstein, N. D. Mathur and J. F. Scott, *Multiferroic and magnetoelectric materials*, *Nature* **44**, 759 (2006).

[Fiebig, 2005] M. Fiebig, *Revival of the magnetoelectric effect*, *J. Phys. D: Appl. Phys.* **38**, R123 (2005).

[Freeman et al., 1995] A. J. Freeman and H. Schmid (eds.) *Magnetoelectric interaction phenomena in crystals* (Gordon and Breach, London, 1995).

[Helmholtz, 1856] H. von Helmholtz, *Handbuch der physiologischen Optik*, 1st Ed., vol. 1, page 169 (Leopold Voss, Leipzig, 1856).

[Kleindienst et al., 1998] P. Kleindienst and G. H. Wagnière, *Interferometric detection of magnetochiral birefringence*, *Chem. Phys. Lett.* **288**, 89 (1998).

[Martin et al., 2010] L. W. Martin, Y.-H. Chuc and R. Ramesh, *Advances in the growth and characterization of magnetic, ferroelectric and multiferroic oxide thin films*, *Materials Science and Engineering R* **68**, 89 (2010).

[Ramesh et al., 2007] R. Ramesh and N. A. Spaldin, *Multiferroics: progress and prospects in thin films*, *Nat. Mater.* **6**, 7 (2007).

[Rikken et al., 1998] G. L. J. A. Rikken and E. Raupach, *Pure and cascaded magnetochiral anisotropy in optical absorption*, *Phys. Rev. E* **58**, 5081 (1998).

[Saito et al., 2008] M. Saito, K. Taniguchi and T. Arima, *Gigantic Optical Magnetoelectric Effect in  $\text{CuB}_2\text{O}_4$* , J. Phys. Soc. Jpn. **77**, 013705 (2008).  
M. Saito, K. Ishikawa, K. Taniguchi and T. Arima, *Magnetic Control of Crystal Chirality and the Existence of a Large Magneto-Optical Dichroism Effect in  $\text{CuB}_2\text{O}_4$* , Phys. Rev. Lett. **101**, 117402 (2008).

[Stokes, 1849] G. G. Stokes, *On the perfect blackness of the central spot in Newton's rings and on the verification of Fresnel's formulae for the intensities of reflected and refracted rays*, Cambridge and Dublin Mathematical Journal, new series, **4**, 1-14 (1849).

[Wu et al., 2013] S. M. Wu, Shane A. Cybart, D. Yi, James M. Parker, R. Ramesh and R. C. Dynes, *Full electric control of exchange bias*, Phys. Rev. Lett. **110**, 067202 (2013).

## Tudományos közlemények

### A tézispontokhoz kapcsolódó tudományos közlemények

[P1] D. Szaller, S. Bordács and I. Kézsmárki,  
*Symmetry conditions for nonreciprocal light propagation in magnetic crystals*  
Phys. Rev. B **87**, 014421 (2013).

[P2] D. Szaller, S. Bordács, V. Kocsis, T. Rõöm, U. Nagel and I. Kézsmárki,  
*Effect of spin excitations with simultaneous magnetic- and electric-dipole character on the static magnetoelectric properties of multiferroic materials*  
Phys. Rev. B **89**, 184419 (2014).

[P3] I. Kézsmárki, D. Szaller, S. Bordács, V. Kocsis, Y. Tokunaga, Y. Taguchi, H. Murakawa, Y. Tokura, H. Engelkamp, T. Rõöm and U. Nagel,  
*One-way transparency of four-coloured spin-wave excitations in multiferroic materials*  
Nat. Commun. **5**, 3203 (2014).

[P4] S. Bordács, I. Kézsmárki, D. Szaller, L. Demkó, N. Kida, H. Murakawa, Y. Onose, R. Shimano, T. Rõöm, U. Nagel, S. Miyahara, N. Furukawa and Y. Tokura,  
*Chirality of matter shows up via spin excitations*  
Nat. Phys. **8**, 734 (2012).

[P5] K. Penc, J. Romhányi, T. Rõöm, U. Nagel, Á. Antal, T. Fehér, A. Jánossy, H. Engelkamp, H. Murakawa, Y. Tokura, D. Szaller, S. Bordács and I. Kézsmárki,  
*Spin-Stretching Modes in Anisotropic Magnets: Spin-Wave Excitations in the Multiferroic  $Ba_2CoGe_2O_7$*   
Phys. Rev. Lett. **108**, 257203 (2012).

[P6] D. Szaller, V. Kocsis, S. Bordács, T. Fehér, T. Rõöm, U. Nagel, H. Engelkamp, K. Ohgushi and I. Kézsmárki  
*Magnetic resonances of multiferroic  $TbFe_3(BO_3)_4$*   
Phys. Rev. B **95**, 024427(2017).

## További tudományos közlemények

[P7] V. Hutanu, A. P. Sazonov, M. Meven, G. Roth, A. Gukasov, H. Murakawa, Y. Tokura, D. Szaller, S. Bordács, I. Kézsmárki, V. K. Guduru, L. C. J. M. Peters, U. Zeitler, J. Romhányi and B. Náfrádi,  
*Evolution of two-dimensional antiferromagnetism with temperature and magnetic field in multiferroic  $Ba_2CoGe_2O_7$*   
Phys. Rev. B **89**, 064403 (2014).

[P8] J. Hlinka, F. Borodavka, I. Rafalovskyi, Z. Docekalova, J. Pokorny, I. Gregora, V. Tsurkan, H. Nakamura, F. Mayr, C. A. Kuntscher, A. Loidl, S. Bordács, D. Szaller, H.-J. Lee, J. H. Lee and I. Kézsmárki  
*Lattice modes and the Jahn-Teller ferroelectric transition of  $GaV_4S_8$*   
Phys. Rev. B **94**, 060104(R) (2016).

[P9] G. S. Tucker, J. S. White, J. Romhányi, D. Szaller, I. Kézsmárki, B. Roessli, U. Stuhr, A. Magrez, F. Groitl, P. Babkevich, P. Huang, I. Živković and H. M. Rønnow  
*Spin excitations in the skyrmion host  $Cu_2OSeO_3$*   
Phys. Rev. B **93**, 054401 (2016).

[P10] Á. Butykai, Á. Orbán, V. Kocsis, D. Szaller, S. Bordács, E. Tátrai-Szekeres, L. F. Kiss, A. Bóta, B. G. Vértessy, T. Zelles and I. Kézsmárki  
*Malaria pigment crystals as magnetic micro-rotors: Key for high-sensitivity diagnosis*  
Sci. Rep. **3**, 1431 (2013).