

Ph.D. Tézisfüzet

# Egzotikus rendeződés és multipól gerjesztések anizotróp rendszerekben

Romhányi Judit

Témavezető: Penc Karlo

Fizika Tanszék  
Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

BME  
2012



# Bevezető

Az elektronok közti erős kölcsönhatás eredményeként kialakuló Mott-szigetelő rendszerek mágneses tulajdonságainak vizsgálatánál rendszerint valamilyen lokális spin szabadsági fokokat tartalmazó effektív Hamilton operátort tekintünk. A legismertebb példa a Heisenberg modell, melynek megoldása, egyszerűnek látszó alakja ellenére, önmagában is kihívást jelent. A vizsgált anyagok fizikai tulajdonságai és szerkezete alapján azonban gyakran, a Heisenberg tag mellett, egyéb tagok figyelembe vétele is szükségessé válik, mint például távolabbi szomszédok közti kölcsönhatás, vagy plakett kicserélődés. Nagyobb spinnel jellemezhető rendszereknél multipól szabadsági fokok is megjelennek, és a bikvadratikusság vagy még magasabb rendű tagok megjelenése természetes módon kínálkozik. A valódi anyagokban fellépő relativisztikus spin-pálya csatolás összekapcsolja a spin teret a valós térrel, s így anizotrópia tagok, úgy mint a Dyzaloshinsky-Moriya kölcsönhatás vagy a g-tenzor anizotrópia, jelenhetnek meg. A kölcsönhatás részleteitől, a geometriától és a spinek méretétől függően számos különböző – rendezett, vagy rendezetlen – alapállapot valósulhat meg. Ezek egy részét megérthetjük klasszikusan, azonban vannak olyan érdekesebb állapotok is, melyek eredete tisztán kvantummechanikai.

Mágnesesen rendezetlen, kvantum alapállapothoz egyszerűen juthatunk például ha egy rácsot spin-párok szinglett állapotával fedünk le. A kétdimeziós modellek között kiemelkedő példa a Shastry-Sutherland modell, melyben a spin gappal jellemezhető alapállapot explicit módon valósulhat meg, mivel a merőleges dimerekből felépülő rács egyértelműen fedhető le szinglettekkel [Shastry 1981]. Tágabb értelemben ezt a dimer-szinglett állapotot triviális spinfolyadék állapotnak is nevezhetjük, mert a Shastry-Sutherland modell esetén a rács szinglett lefedése invariáns marad a diszkrét eltolásokkal szemben. A majdnem kétdimenziós antiferromágneses  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  [Kageyama 1999] szolgál a modell fizikai megvalósulásaként. A gerjesztések nulla térbeli felhasadása, melyet neutronszórással figyeltek meg [Gaulin 2004], valamint az elektronspin-rezonancia spektrumában véges térben megjelenő gap [Nojiri 2003] anizotrópia jelenlétére utal. A  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  megfelelő leírása tehát bonyolultabb, a Shastry-Sutherland modellen túlmutató problémát vet fel.

A multiferroikus anyagokat, melyekben a mágneses és elektromos rend egyidejűleg valósulhat meg, a spintronikai eszközök kínálta lehetőségek teszik vonzóvá. Az új koncepcióként megjelenő mágneses rend által indukált polarizáció esetében a ferroelektromosság kisebb ugyan, mint a hagyományos multiferroikus anyagokban, a keresztcsatolási effektusok mégis erősek. Ez annak köszönhető, hogy a mágneses rend, s azon keresztül az indukált polarizáció is meglehetősen érzékeny a külső mágneses tér változására. A  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ban az erős egy-ion anizotrópiának köszönhetően 6.7 K alatt a mágneses momentumok a síkban antiferromágnesesen rendeződnek [Zheludev 2003]. A kísérletek alapján az így kialakuló planáris fázis multiferroikus tulajdonságokat mutat.

A hagyományos spinhullám elmélet mágnesesen rendezett állapotok gerjesztési spektrum szisztematikus tárgyalására nyújt lehetőséget. Az  $S > 1/2$  spinű rendszerek – mint amilyen a  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$  – tenzoriális kölcsönhatást is támogatnak, és bennük nem-konvencionális, gyakran mágnesesen rendezetlen állapot, mint például multipól vagy nematikus rend alakulhat ki. Amikor ilyen rendszerek dinamikai tulajdonságait tárgyaljuk, a hagyományos spinhullám eljárás túlmutató módszert kell választanunk mely figyelembe veszi a multipól jellegű gerjesztéseket is. A kiterjesztett spinhullám módszer fogalma már bevezetésre került erős anizotrópiát vagy magasabb rendű kicserélődési tagokat tartalmazó modellek [Onufrieva 1985, Papanicolaou 1984, Papanicolaou 1988], f-elektronrendszerek [Shiina 2003], illetve pálya-degenerációt figyelembe vevő spin rendszerek kapcsán [Joshi 1999].

## Célkitűzések és módszerek

A disszertációmban két anyagot, a frusztrált merőleges dimer rendszert, a  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ -ot, illetve a multiferroikus  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ot vizsgáltam. A céloom annak bemutatása volt, hogy egy egyszerű, de megfelelően választott spin modell variációs hullámfüggvény és általánosított spinhullám módszerrel tárgyalva hatékony leírást adhat valódi anyagok fizikai tulajdonságairól.

A  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  kísérletileg motivált [Kageyama 2000] mágneses rendezetlen alapállapotának elméleti leírásához egy alkalmas Hamilton operátort tekintünk, mely anizotrópia tagokat, úgy mint a Dzialoshinsky-Moriya (DM) kölcsönhatás és a g-tenzor anizotrópia, is figyelembe vesz. Dimerekre faktorizált variációs hullámfüggvény módszerrel feltérképeztem a fázisdiagramokat a DM csatolás és a  $\text{CuBO}_3$  síkra merőlegesen és azzal párhuzamosan alkalmazott mágneses tér függvényében. A megjelenő fázisokat részletesen tárgyaltam és elvégeztem azok szimmetria osztályozását. A rendszer dinamikai tulajdonságainak elméleti leírására az általánosított spinhullám módszer nyújt lehetőséget. A gerjesztési spektrumokat különböző irányú terek függvényében, illetve nulla külső tér mellett a momentum függvényeként vizsgáltam. Ez a módszer lehetővé teszi a magasabban fekvő gerjesztések tanulmányozását, melyek leírására a szokásos spinhullám, vagy perturbatív módszerek alkalmatlanok. Kvalitatívan reprodukáltam a gerjesztések neutronszórással [Gaulin 2004] megfigyelt nulla térbeli felhasadását, valamint, különböző DM csatolások mellett meghatározva a spektrumot, vizsgáltam az anizotrópia gerjesztésekre gyakorolt hatását. Az elektronspin-rezonancia [Nojiri 2003] és távoli infravörös spektrumok [Rööm 2004] kísérletileg indokolt paraméterek választásával került reprodukálásra.

A  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ban a kobalt ionok 3/2-es spinje megenged kvadrupól és okkupól szabadsági fokokat is. A rendszert leíró Hamilton operátor tartalmazza a kicserélődési és egy-ion anizotrópiát, DM kölcsönhatást és g-tenzor anizotrópiát is. Ezeknek az anizotrópiáknak az alapállapotra gyakorolt hatásának vizsgálatához feltérképeztem a variációs fázisdiagramot az egy-ion anizotrópia és mágneses tér függvényében, a kicserélődési anizotrópia különböző értékei mellett. Emellett részletesen bemutatásra kerültek a megjelenő plató, illetve szuperfolyékony és 'supersolid' állapotok tulajdonságai. A kísérletileg THz abszorpciós spektroszkópiával [Kézsmárki 2011] talált nagy energiás gerjesztések vizsgálata érdekében multi-bozon spinhullám elméletet alkalmaztam, amely a szokásos mágneses gerjesztések mellett alkalmas a kvadrupól, illetve az okkupól jellegű gerjesztések tanulmányozására is. Meghatároztam a diszperziós relációt, amely kvantitatív egyezést mutat a neutronszórással talált alacsony energiájú mágneses gerjesztésekkel [Zheludev 2003], és további magasabb energiájú módusok jelenlétét jósolja. Ezek között a transzverzális gerjesztési módus mellett egy nem-konvencionális longitudinális módus is megjelenik. Véges mágneses tér mellett a korábbi 12 T-ig megmért távoli infravörös spektrum alapján számolt gerjesztési spektrum kvantitatívan illeszkedik a 33 T-ig mért adatokra. A megjelenő módusok természetének leírására a dielektromos és mágneses dinamikai szuszceptibilitás meghatározásával nyílik mód. Végül vizsgáltam a mágneses rend által indukált polarizáció külső mágneses tér függését, annak érdekében, hogy a kísérleti eredményekről [Murakawa 2010] egyszerű elméleti képet alkossak.

A doktori disszertációm fő eredményeit a következő tézispontok foglalják össze.

## Tézis pontok

1. Megmutattam, hogy az általánosított spinhullám elmélet alkalmas a  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  merőleges dimer rendszer kísérletileg megfigyelt gerjesztési spektrumának kvantitatív reprodukálására. A helyes spektrum megadásához meg kell engednünk, hogy a szinglett mindhárom tripllett állapottal keveredhessen. Ez túlmutat a szokásos perturbatív módszereken, ahol csak dimerenként két állapot megengedett. Továbbá, az általánosított spinhullám módszerrel meghatározott véges térben megjelenő gap az intradimer Dzyaloshinsky-Moriya kölcsönhatás erősségének gyökével arányos, nem pedig lineáris azzal, ahogy azt a perturbáció számítás eredményezné. Az így meghatározott spektrum jól illeszkedik a kísérleti eredményekre.[1]
2. Nagyobb spinű ( $S > 1/2$ ) bipartit rácson az erős egy-ion anizotrópia és az off-diagonális kicserélődési anizotrópia a könnyű síkra merőleges véges mágneses tér mellett támogatja a mágneses 'suersolid' állapot kialakulását. Amikor az off-diagonális kicserélődés nulla, a fázisdiagramon axiális ferromágneses és antiferromágneses, valamint plató állapotok jelennek meg. A 'supersolid' fázis a translációs szimmetriát sértő platók körül alakul ki amikor az off-diagonális kicserélődés végessé válik. Az axiális és a 'supersolid' fázisok között spin-forgatási szimmetriát sértő szuperfolyékony fázis található. Ahogy a kicserélődési kölcsönhatás izotróppá válik, de az egy-ion anizotrópia még sérti az  $\text{SU}(2)$  szimmetriát, a plató szigeteket és azok 'supersolid' peremét elnyeli a szuperfolyékony fázis.[2]
3. Rámutattam, hogy a multiferroikus  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ban a síkra merőleges Dzyaloshinsky-Moriya kölcsönhatás lényeges a mágneses rend által indukált polarizáció (síkban fekvő) mágneses tér függvényében történő változásának megértéséhez nulla hőmérsékleten. Irányától függően a kétféle hajlású antiferromágneses alapállapot egyike valósul meg, melyekre az indukált polarizáció lényegesen eltérő. Egy antiferro polarizáció-polarizáció csatolás bevezetése a Dzyaloshinsky-Moriya kölcsönhatással együtt kvalitatív magyarázatot adhat az indukált polarizáció 1 T alatti hirtelen csökkenésére.[3]
4. Megmutattam, hogy a hagyományos spinhullám elmélettel is leírható alacsony energiájú mágneses gerjesztések mellett a  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ban megfigyelt magasan fekvő (~1THz) módusok is kvantitatívan reprodukálhatóak a multi-bozon spinhullám módszer segítségével. Az  $S=3/2$  spinek lokális Hilbert tere elég nagy ahhoz, hogy ezek a módusok természetes módon mutathassanak kvadrupól és oktupól jelleget, továbbá az inverziós szimmetria sérülése a  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ -ban lehetővé teszi ezek gerjesztését a beeső fény elektromos komponensével is. A multiferroikus alapállapotban a spinek hossza nem éri el a maximális  $3/2$  értéket, így a magasabb energiájú módusok között megjelennek longitudinális gerjesztések is, a szokásos spinhullám elméletből ismert magnonokkal szemben, melyek transzverzális fluktuációkkal azonosíthatóak.[4,5]

## Publikációs lista

- [1] J. Romhányi, K. Totsuka, K. Penc,  
Effect of Dzyaloshinskii-Moriya interactions on the phase diagram and magnetic excitations of  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$   
Phys. Rev. B **83**, 024413 (2011)
  
- [2] J. Romhányi, F. Pollmann, K. Penc  
Supersolid phase and magnetization plateaus observed in the anisotropic spin-3/2 Heisenberg model on bipartite lattices  
Phys. Rev. B **84**, 184427 (2011)
  
- [3] J. Romhányi, M. Lajkó, K. Penc  
Zero- and finite-temperature mean field study of magnetic field induced electric polarization in  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ : Effect of the antiferroelectric coupling  
Phys. Rev. B **84**, 224419 (2011)
  
- [4] K. Penc, J. Romhányi, T. Room, U. Nagel, Á. Antal, T. Fehér, A. Jánossy, H. Engelkamp, H. Murakawa, Y. Tokura, D. Szaller, S. Bordács, I. Kézsmárki  
Spin-stretching modes in non-centrosymmetric magnets: spin-wave excitations in the multiferroic  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$   
arXiv:1202.3996 (2012)  
accepted in Phys. Rev. Lett.
  
- [5] Judit Romhányi and Karlo Penc  
Multiboson spin-wave theory for  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ , a spin-3/2 easy-plane Neel antiferromagnet with strong single-ion anisotropy  
arXiv:1205.2196 (2012)  
submitted to Phys. Rev. B

## Bibliográfia

- [Gaulin 2004] B. D. Gaulin, S. H. Lee, S. Haravifard, J. P. Castellan, A. J. Berlinsky, H. A. Dabkowska, Y. Qiu and J. R. D. Copley. High-Resolution Study of Spin Excitations in the Singlet Ground State of  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 93, no. 26, pages 267202–, December 2004.
- [Joshi 1999] A. Joshi, M. Ma, F. Mila, D. N. Shi and F. C. Zhang. Elementary excitations in magnetically ordered systems with orbital degeneracy. *Phys. Rev. B*, vol. 60, pages 6584–6587, Sep 1999.
- [Kageyama 1999] H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. V. Mushnikov, K. Onizuka, M. Kato, K. Kosuge, C. P. Slichter, T. Goto and Y. Ueda. Exact Dimer Ground State and Quantized Magnetization Plateaus in the Two-Dimensional Spin System  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 82, no. 15, page 3168, April 1999.
- [Kageyama 2000] H. Kageyama, M. Nishi, N. Aso, K. Onizuka, T. Yoshizawa, K. Nukui, K. Kodama, K. Kakurai and Y. Ueda. Direct Evidence for the Localized Single-Triplet Excitations and the Dispersive Multitriplet Excitations in  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 84, no. 25, pages 5876–, 2000.
- [Kézsmárki 2011] 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. *Phys. Rev. Lett.*, vol. 106, page 057403, Feb 2011.
- [Murakawa 2010] H. Murakawa, Y. Onose, S. Miyahara, N. Furukawa and Y. Tokura. Ferroelectricity Induced by Spin-Dependent Metal-Ligand Hybridization in  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ . *Phys. Rev. Lett.*, vol. 105, page 137202, Sep 2010.
- [Nojiri 2003] Hiroyuki Nojiri, Hiroshi Kageyama, Yutaka Ueda and Mitsuhiro Motokawa. ESR Study on the Excited State Energy Spectrum of  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ —A Central Role of Multiple-Triplet Bound States—. *J. Phys. Soc. Jpn.*, vol. 72, no. 12, pages 3243–3253, 2003.
- [Onufrieva 1985] F.P. Onufrieva. Low-temperature properties of spin systems with tensor order parameters. *Zhurnal Eksperimentalnoi i Teoreticheskoi Fiziki*, vol. 89, no. 6, pages 2270–2287, DEC 1985.
- [Papanicolaou 1984] N. Papanicolaou. Pseudospin approach for planar ferromagnets. *Nuclear Physics B*, vol. 240, no. 3, pages 281 – 311, 1984.
- [Papanicolaou 1988] N. Papanicolaou. Unusual phases in quantum spin-1 systems. *Nuclear Physics B*, vol. 305, no. 3, pages 367 – 395, 1988.
- [Rößm 2004] T. Rößm, D. Hüvonen, U. Nagel, J. Hwang, T. Timusk and H. Kageyama. Far-infrared spectroscopy of spin excitations and Dzyaloshinskii-Moriya interactions in the Shastry-Sutherland compound  $\text{SrCu}(\text{BO})$ . *Phys. Rev. B*, vol. 70, no. 14, pages 144417–, October 2004.

- [Shastry 1981] S. Shastry and B. Sutherland. *Physica B&C*, vol. 108, page 1069, 1981.
- [Shiina 2003] Ryosuke Shiina, Hiroyuki Shiba, Peter Thalmeier, Atsushi Takahashi and Osamu Sakai. Dynamics of Multipoles and Neutron Scattering Spectra in Quadrupolar Ordering Phase of  $\text{CeB}_6$ . *Journal of the Physical Society of Japan*, vol. 72, no. 5, pages 1216–1225, 2003.
- [Zheludev 2003] A. Zheludev, T. Sato, T. Masuda, K. Uchinokura, G. Shirane and B. Roessli. Spin waves and the origin of commensurate magnetism in  $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ . *Phys. Rev. B*, vol. 68, page 024428, Jul 2003.