

OTKA témapályázat zárójelentése
Nemzetközi Doktori Iskola

Tudományterület: **Szilárdtestfizika**
OTKA nyilvántartási szám: **NN 76727**
Témavezető: **Virosztek Attila**, a fizikai tudomány doktora
Kutatóhely: **BME, Fizika Tanszék**
A kutatás időtartama: **2009-2011**
Az OTKA támogatás összege: **20 MFt**

Tartalomjegyzék

1. A pályázat célja	2
2. Az elért eredmények	3
2.1. Mezoszkópikus rendszerek nemegyensúlyi tulajdonságainak vizsgálata	3
2.2. Elektron spin rezonancia szilárdtestekben	4
2.3. Alacsony dimenziós mágneses rendszerek alapállapotának és gerjesztéseinek vizsgálata	6
3. Kiegészítő információk	8

1. A pályázat célja

Az OTKA támogatás célja a Budapest-Marburg nemzetközi doktori (PhD) iskola (Európai Graduális Kollégium, újabb nevén IRTG, azaz International Research Training Group) magyar oldalán felmerülő költségek részbeni finanszírozása volt. A marburgi (Németország) Philipps Egyetem Fizika Tanszéke és a BME Fizikai Intézete, valamint az MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutatóintézete vezető kutatói részvételével működtetett közös doktori iskolát német oldalról a DFG támogatta 2011-ig. A magyar oldalt az OTKA 2003-2006 között az NDF 45172 számú, majd 2007-2008 között az NI 70594 számú pályázat keretében támogatta. A jelen pályázat ezeknek a támogatásoknak volt a közvetlen folytatása.

Az OTKA támogatást a közös doktori iskola két magyar PhD hallgatójának ösztöndíjára fordítottuk a futamidő alatt. A hallgatók személye évről évre változott, így a jelen beszámoló az aktuális hallgatóknak megfelelően az iskola három kutatási területét érinti (zárójelben a kutatást végző PhD hallgatók neve, és az ösztöndíjjal támogatott kutatás tanéve):

- Mezoszkópikus rendszerek nemegyensúlyi tulajdonságainak vizsgálata (Horváth Bertalan, 2009/2010),
- Elektron spin rezonancia szilárdtestekben (Nagy Kálmán, 2008/2009; Antal Ágnes, 2010/2011),
- Alacsony dimenziós mágneses rendszerek alapállapotának és gerjesztéseinek vizsgálata (Romhányi Judit, 2008/2011).

Támogatott hallgatóink közül PhD fokozatot szerzett Antal Ágnes 2011-ben "summa cum laude" minősítéssel. Nagy Kálmán kiváló doktori szigorlaton van túl, Horváth Bertalan doktori eljárása folyamatban van, PhD védése 2012 első hónapjaiban lesz. Várhatóan Romhányi Judit védésére is sor kerül 2012-ben. A továbbiakban a kutatási eredményeket a fenti témák szerint csoportosítva ismertetjük a futamidő (2009-2011) alatt elkészült publikációk alapján. A szövegben megadott referenciák a publikációs lista megfelelő elemeire vonatkoznak.

2. Az elért eredmények

2.1. Mezoszkópikus rendszerek nemegyensúlyi tulajdonságainak vizsgálata

A mezoszkópikus rendszerek kutatása jó ideje az érdeklődés homlokterében van, de a bennük lejátszódó nemegyensúlyi folyamatok elméleti vizsgálata, nem kis mértékben a technikai nehézségek miatt, csak a legutóbbi időkben került napirendre. Az elmúlt három évben ezzel kapcsolatban végzett munkánk során kifejlesztettünk egy nemegyensúlyi iterált perturbációs számítást kétszintes kvantum pöttyöt leíró Anderson-modellre alkalmazva a szingulett-triplett átmenet leírására [5,6]. Ezen túlmenően, szintén a szingulett-triplett átmenet leírására, a nemegyensúlyi esetre általánosítottuk a fluktuáció-kicserélődés közelítést [8]. A publikációkban tehát a kölcsönhatási paraméterben alkalmazott perturbációs számításon alapuló nemegyensúlyi módszereket ismertettünk. A módszereket kétszintes kvantum pöttyökre alkalmazva mutatjuk be, de a módszerek egyszerűen általánosíthatók tetszőleges számú energiaszinttel rendelkező kvantum pötty esetére is, miközben a kvantum pötty elektronjai között fellépő kölcsönhatásokat figyelembe vesszük. A kétszintes esetben a közvetlen, ún. *on-site* Coulomb-kölcsönhatást és a kicserélődési kölcsönhatást (Hund-csatolást) vesszük figyelembe. Laterális és vertikális kvantum pöttyöket egyaránt vizsgáltunk a fenti módszerekkel.

Mind az iterált perturbációs számítás, mind a fluktuáció-kicserélődés közelítés általunk továbbfejlesztett módszereivel kapcsolatban egyaránt azt tapasztaltuk, hogy képes leírni a szingulett-triplett átmenetnek mind a szingulett, mind a tripllett oldalán tapasztalható jelenségeket. Mindkét megközelítésben vizsgáltuk az áram és a differenciális vezetőképesség függését a kvantum pöttyhöz csatolt elektródákra alkalmazott feszültség függvényében. A paraméterek – a két szint távolságának, vagy a Hund-csatolás értékének – változtatásával a kétszeres betöltésű kvantum pötty alapállapotában a szingulett és a tripllett állapotok közötti átmenetet tapasztalunk. Mindkét módszer kvalitatíve visszaadja a kísérleti eredményeket az egyes állapotokban mért differenciális vezetőképesség tekintetében. A két módszer közül a vizsgált rendszerben tapasztalható Kondo-effektus kvantitatív leírásában a fluktuáció-kicserélődés megközelítés bizonyul hatékonyabbnak, köszönhetően a perturbációs számítás egyes diagram-osztályainak végtelen rendig való felösszegzésnek – effektíve több diagramot vesz figyelembe a perturbációs sorból –, és megőrző jellegének. A kvantum pötty töltésfluktuációihoz tartozó, a dif-

ferenciális vezetőképességben és a spektrálfüggvényekben egyaránt megjelenő Hubbard-csúcsok leírására azonban a két módszer közül csak az iterált perturbációs számítás képes. A spektrálfüggvények Kondo-csúcsának szélességét megvizsgálva numerikus renormálási csoport számítások bizonyítják, hogy a fluktuáció-kicserélődés közelítés kvantitatíve helyes eredményt ad a Kondo-hőmérsékletre. A módszerekkel a $T=0$ hőmérsékletű és a véges hőmérsékletű viselkedés is vizsgálható; azt állapíthatjuk meg, hogy a módszerek konvergenciáját gyorsítja véges hőmérséklet alkalmazása a nulla hőmérsékletű esethez képest.

A fenti módszerekkel kapott eredmények azt mutatják, hogy a módszerek sikeresen alkalmazhatók lehetnek például dinamikusan átlagtér számítások szennyező megoldójaként akár tetszőleges számú szintre általánosítva. A két módszer eltérő számítási kapacitást igényel köszönhetően a módszerek bonyolultsága közti különbségnek és annak, hogy a fluktuáció-kicserélődés közelítésben a teljes Green-függvényt iteráljuk, szemben az iterált perturbációs számítás betöltési számaival. A fluktuáció-kicserélődés közelítést alkalmazva tehát egyforma számítási kapacitás mellett 5-10-szeres időráfordítással kapunk eredményt. A módszereket a C++ nyelv alkalmazásával úgy implementáltam, hogy akár egy személyi számítógépen futtathatók legyenek.

2.2. Elektron spin rezonancia szilárdtestekben

Az elektron spin rezonancia (ESR) igen hatékony módszer a különféle szilárdtestek mágneses és elektronszerkezetének vizsgálatára. Ebben a részben a BME Fizikai Intézetében működő ESR laboratóriumban végzett kutatások egy (támogatott hallgatóink által végzett) részét mutatjuk be.

Az $(\text{ET})_2\text{MnCu}[\text{N}(\text{CN})_2]_4$ (ahol $\text{ET}=\text{BEDT-TTF}$ egy szerves molekula) egy szokatlan szerkezetű anyag, melyben az ET molekulák vezető rétegeit átszövi a mágneses ionokat is tartalmazó anion. A két alrendszer térbeli közelsége miatt, a réteges szerkezetű töltésátviteli sók esetében tapasztaltnál erősebb, összetettebb mágneses kölcsönhatásokat kerestünk. A vizsgálatok során sikerült meghatározni a részlegesen töltött ET molekulák és a mágneses mangán ionok közötti csatolást. Az alacsony hőmérsékleten megfigyelt jelentős ESR eltolódásokat a mangán ionokra ható kristálytér, és a köztük fellépő kicserélődés együttes hatásával sikerült magyarázni. Az eltolódások alapján a mangán ionok közti átlagos kicserélődést is meghatároztuk [2].

A beszámolási időszakban került sor a laboratórium nagyterű ESR spektrométerének továbbfejlesztésére is. A fejlesztések eredményeit cikkben foglal-

tuk össze, melyben bemutatjuk a berendezés felépítését és működését, illetve ismertetjük a műszer érzékenységét és stabilitását ellenőrző méréseinket. A publikáció néhány a felújítás után végzett vizsgálat példáján keresztül szemlélteti a spektrométer tudományos értékét [9].

Következő projektünk fő témája az ET anyagcsalád két másik tagja, a κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]X, X=Cl,Br kristályok vizsgálata volt szintén ESR módszerrel. Ezek az anyagok erősen kétdimenziósak, a szomszédos szerves vezető rétegeket szigetelő anion rétegek választják el egymástól. Az anyagcsalád vizsgálatát motiválta annak igen gazdag fázisdiagrammja amely hasonlít a magas hőmérsékletű szupravezetőkére. Léggöri nyomáson a κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl antiferromágnesesen rendeződik 23 K alatt, míg a κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Br szupravezet 12 K alatt. Már kis, 30 mPa hidrosztatikus nyomás alkalmazásával a κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl alapállapota antiferromágnesből szupravezetővé változik 13 K-es kritikus hőmérséklettel. Kifejlesztettünk egy új, elektron spin rezonanciára épülő mérési módszert melynek segítségével egyes réteges anyagokban meg lehet mérni a rétegek közti merőleges spin átugrálási frekvenciát [3]. Ennek segítségével megmutattuk, hogy a κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]X, X=Cl, Br anyagokban a spin transzport, 50 K felett, erősen két dimenziós. A spinek néhány nano másodpercet is eltöltenek egy rétegen belül [1]. A teljes magas hőmérsékletű fázisdiagrammon feltérképeztük a merőleges spin hopping frekvenciát [7]. Megmutattuk, hogy léggöri nyomáson a hőmérséklet csökkentésével az antiferromágneses Cl-os kristályban lassul a spin hopping frekvencia, ellenben a szupravezető Br-os anyagban gyorsul. Hidrosztatikus nyomás alkalmazásával azonban a Cl-os anyagban is gyorsul a spin hopping frekvencia a hőmérséklet csökkentésével. κ -(ET)₂Cu[N(CN)₂]Cl kristályban a mágneses kölcsönhatások anizotrópiáját vizsgáltuk a Néel hőmérséklet alatt antiferromágneses rezonancia módszerrel. Az antiferromágneses rezonancia kísérletekből megállapítottuk, hogy a rétegen belüli csatolások öt-hat nagyságrenddel nagyobbak, mint a rétegek közöttiek [1]. Továbbá a Néel-hőmérséklet fölött mágneses fluktuációkat figyeltünk meg. Ezek a fluktuációk függetlenek a szomszédos rétegekben, ami ugyancsak a rendszer kétdimenziós viselkedését jelzi [13,14].

Egy másik kutatási terület a Berliini Kék analóg RbMn[Fe(CN)₆]·H₂O kristályok vizsgálata volt ESR spektroszkópiával. Ebben a kristályban töltésátviteli átalakulás következik be a magas hőmérsékletű Mn²⁺-Fe³⁺ és az alacsony hőmérsékletű Mn³⁺-Fe²⁺ fázisok között. Ez az átalakulás a hőmérséklet változtatásával, látható fénnel való besugárással, röntgensugárással vagy külső nyomás alkalmazásával is elérhető. Kísérleteink során a

kristály tömbi ESR-jelét nem találtuk meg, csak egy, a kristályhoz gyengén csatolt hibahelyet körülvevő klaszter jele volt megfigyelhető. A tömbi minta hiányzó rezonanciájának oka az lehet, hogy magas hőmérsékleten is a Mn^{2+} - Fe^{3+} ionállapot tartalmaz valamennyit az alacsony hőmérsékletű Mn^{3+} - Fe^{2+} ionállapotból [4].

Az elmúlt évek során infravörös spektroszkópiával vizsgáltuk a BaMn_2As_2 kristályt, ami 625 K alatt antiferromágneses és a pnictidek családjába tartozik. Az anyag réteges szerkezetű és ebből adódóan anizotróp a vezetőképessége. A félvezető rétegekre merőlegesen szigetelőként viselkedik a kristály. A rétegek mentén vizsgálva az optikai vezetőképességet alacsony hőmérsékleten két tiltott sávot azonosítottunk melyek nagysága 12 meV és 48 meV [15].

2.3. Alacsony dimenziós mágneses rendszerek alapállapotának és gerjesztéseinek vizsgálata

Ennek a fejezetnek a témája a korrelált rendszerek családjába tartozó, spin-gappel jellemzett $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ és a multiferroikus $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ mágneses és elektromos tulajdonságainak vizsgálata és megértése, valamint a vonatkozó kísérleti eredmények értelmezése. Mindkét anyag esetén alkalmasan választott variációs hullámfüggvény segítségével, különböző csatolási paraméterek mellett kerestük az alapállapotot, így feltérképezve a fázisdiagrammokat. A gerjesztéseket általánosított spin-hullám módszerrel keresve reprodukáltuk a kísérletekből ismert elektron spin rezonancia (ESR), THz-es optikai spektroszkópia és neutron spektroszkópia mérések eredményeit. A $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ tetragonális szimmetriájú, kvázi-kétdimenziós anyag, melyben a feles spinű Cu^{2+} ionok frusztrált ortogonális dimerrendszert alkotnak, a Shastry-Sutherland modell fizikai megvalósulásaként szolgálva. Ennek az anyagnak a precíz leírásához a modellt kibővítettük a Dzialoshinskii-Moriya (DM) kölcsönhatás és a g -tenzor anizotrópia bevezetésével. A CuBO_3 -rétegek szimmetriatulajdonságai alapján meghatároztuk a DM vektorok és a g -tenzor alakját, majd a dimer bondokra faktorizált variációs hullámfüggvény segítségével tanulmányoztuk az anizotrópiák alapállapotra gyakorolt hatását, így feltérképezve azon fázisokat, melyekben a mágneses elemi cella megegyezik a szerkezeti elemi cellával. A fázisdiagrammok mellett, dimer-állapotokra épülő általánosított spin-hullám ("bond-hullám") módszer segítségével tanulmányoztuk az anizotrópiák gerjesztési spektrumra gyakorolt hatását. Leírtuk – a kísérletileg neutron spektroszkópiával megfigyelt – triplett gerjesztések

külső tér nélküli momentumfüggő felhasadását. Továbbá – fizikailag releváns paraméterek választásával – reprodukáltuk az ESR, illetve infravörös spektrumot a CuBO_3 síkkal párhuzamosan és arra merőlegesen alkalmazott mágneses tér esetén. Tapasztalataink alapján a korábbi perturbációs eredményekkel szemben, a merőleges irányú térnél megjelenő, kritikus tér körüli felhasadás nem a síkbeli DM kölcsönhatással, hanem annak négyzetgyökével arányos [12].

Az általunk vizsgált másik anyag a napjainkban divatos multiferroikus anyagok körébe tartozó $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$. A hagyományos multiferroikusok mellett, az utóbbi évtizedben új elméleti modellek jelentek meg a mágnesesen rendezett anyagokban indukálódó elektromos polarizáció magyarázataként. A $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ egyedülálló a spin-rend által indukált polarizációt mutató anyagok között, mivel a benne kialakuló polarizációt – a spin-pálya csatolásból eredően – egyetlen 3/2-es spin hozza létre. Első lépésként a kristály szimmetriái alapján osztályoztuk a spinoperátorban első- és másodrendű rendparamétereket, meghatároztuk a lehetséges anizotrópia tagok alakját, melyek közt szerepelnek a DM-vektor, kicserélődési és "easy-plane" anizotrópiák, valamint az elektromos polarizációhoz csatolódó spinben másodrendű operátorok. A kísérletileg megfigyelt polarizáció mágneses tértől és hőmérséklettől való függésének megértéséhez és reprodukálásához variációs hullámfüggvény módszerrel, valamint véges hőmérsékletű átlagtérközelítést alkalmaztunk. Részletesen tanulmányoztuk a DM kölcsönhatás és egy antiferro polarizáció-polarizáció tag hatását két különböző irányú tér mellett. Véges hőmérsékletű átlagtér elméletet alkalmazva kvalitatívan reprodukáltuk az indukált polarizáció mért térfüggését különböző hőmérsékleteken [10].

A $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$, valamint a nagyobb spinű ($S=1$) négyzetrács modelleken megfigyelt supersolid fázisok inspirálták a 3/2-spinű bipartit rácson végzett munkánkat. Amíg a szuperfolyékony (és hasonlóan a szupravezető) fázisokat az off-diagonális, a – translációt sok esetben sértő – "kvantum kristály" fázisokat pedig a diagonális hosszútávú rend jellemzi, a manapság igen népszerű supersolid fázisban mind a két rend egyidejűleg megfigyelhető. Ilyen fázisokat először a ^4He erősen kölcsönható rendszere kapcsán tanulmányoztak, később azonban megmutatták, hogy a ^4He bozonikus leírása és a mágneses supersolid állapotok megfeleltethetőek egymásnak. Ezekben a mágneses supersolidokban a mágneses rend egyszerre sérti a spin forgatási és a translációs szimmetriát. Munkánk során variációs hullámfüggvény módszerrel feltérképeztük a dimenziófüggetlen, $S = 3/2$ spinű bipartit rendszerek fázisdiagrammját a kicserélődési és "easy-plane" anizotrópia, valamint a mágneses tér függvényé-

ben. Az Ising határesetben ferromágnesesen rendezett, valamint translációs szimmetriát sértő, gappel és mágnesezettségi platókkal jellemzett fázisok jelennek meg. Részletesen tárgyaltuk a fázishatárok degenerációját, melyet a véges off-diagonális kicserélődés felhasít, és a plató fázisok között új, gap nélküli szuperfolyékony és supersolid fázisokat eredményez. Variációs számolásaink azt mutatják, hogy a supersolid a translációs szimmetriát sértő platók körül alakul ki az Ising határesetből távolodva, míg a szuperfolyékony fázis a translációs invarianciát mutató polarizált fázisok körül jelenik meg [11].

3. Kiegészítő információk

A jelen beszámoló tárgyául szolgáló témák alap kutatás jellegűek, eredményeik elsősorban referált nemzetközi folyóiratokban megjelent publikációkban testesülnek meg. Ezen 15 cikk között szerepel két Phys. Rev. Lett. és kilenc Phys. Rev. B, így a publikációk össz impakt faktora 52.

Említést érdemel, hogy ha a Budapest-Marburg nemzetközi doktori (PhD) iskola teljes futamidejét tekintjük, mely alatt az OTKA két PhD hallgatókat ösztöndíjjal támogatta (2003-2011), akkor a fenti számok 54 publikációra és 142 impakt faktorra egészülnek ki, ami közel egy évtizednyi egyenletes teljesítményt jelez a hallgatónként és évenként 3 darab, átlagosan 2.6 impakt faktorú cikk szintjén.

Budapest, 2012. január 26.

Virosztek Attila