

Klasszikus Heisenberg mágnesek kiterjedt alapállapotú sokaságai és magnetoelektromos kiválasztási szabályok ákermanitokban

Tézisfüzet

Balla Péter

Témavezető: Penc Karlo

Fizika tanszék

Budapesti Műszaki és Gazdaságtudományi Egyetem

BME

2022

A kutatások előzménye

A Hubbard-modell tanítása szerint Mott-szigetelőkben az elektron-elektron kölcsönhatás felel a vezetőképesség megszűnéséért [Hubbard, 1963, Gutzwiller, 1963, Kanamori, 1963]. A nagy elektron-elektron taszítás határesetében ezt a modellt a Heisenberg-modellre képezhetjük le [Heisenberg, 1928], ahol a megmaradó szabadsági fokok a rácspontokba lokalizált elektronok spinjei. Az így kapott Heisenberg-modell elsőszomszéd kölcsönhatású, izotrop és *antiferromágneses*. Ezt a modellt általánosíthatjuk távolabbi és anizotrop kölcsönhatások, vagy a rácsponti (on-site) anizotrópia figyelembevételével.

Még ha a klasszikusan közelített, elsőszomszéd, izotrop, antiferromágneses modellre szorítkozunk is, a rács geometriájának drasztikus hatása lehet az alapállapot szerkezetére. Háromszögeket tartalmazó rácsokban nem tudjuk az antiferromágneses kölcsönhatásokat egyszerre optimalizálni, ezt a jelenséget nevezzük *geometriai frusztrációnak*. Frusztrált rácsokra példa a háromszög-, a kagome-, a lapcentrált köbös és a piroklórrács. A frusztráció egyik komoly következménye a nagy alapállapotú degeneráció, például a háromszög- illetve kagomerácson értelmezett Ising-modell esetén az elfajulás extenzív: az alapállapotú entrópia a rendszermérettel skálázódik. Luttinger és Tisza módszerével [Luttinger and Tisza, 1946, Luttinger, 1951] megmutatható, hogy az alapállapotú konfigurációk a kölcsönhatás Fourier-transzformáltjának minimumhelyeivel állnak kapcsolatban, ezen minimumhelyek összességét nevezzük *alapállapotú sokaságnak*. Egyszerű, frusztrációmentes mágnesekben az alapállapotú sokaság diszkrét pontok halmaza: ezen pontokban jelennek meg a mágneses Bragg-csúcsok a neutronszórásban. Frusztrált rendszerekben kiterjedtebb alapállapotú sokaságok is megjelenhetnek: görbék, felületek, sőt akár az egész Brillouin-zóna (a kagome és a piroklór rendszerek esetében).

A rendszer rengeteg alapállapotot látogathat meg a sokaság bejárása során, és rendeződés helyett *spinfolydék* állapotot mutathat [Balents, 2010, Lacroix et al., 2011, Knolle and Moessner, 2019, Savary and Balents, 2016], mágneses Bragg-csúcsok megjelenése nélkül. A jelenséget elméletileg megjósolták az első- és másodsomszéd frusztrált gyémántrácsra [Bergman et al., 2007], és kísérletileg kimutatták [Gao et al., 2016] a MnSc_2S_4 anyagban: a kiterjedt alapállapotú sokaság egyértelműen megjelent a neutronszórásban. Piroklór mágnesekben a frusztráció az érdekes *spinjég* [Henley, 2010] fázis megjelenéséhez vezethet, amit valóban meg is figyeltek a $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ és $\text{Ho}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ anyagokban. Ezen rendszerek is kiterjedt alapállapotú sokasággal rendelkeznek, a korrelációk hatványfüggvény szerint csengenek le, és bennük jellegzetes ún. *pinch-point szingularitások* jelennek meg, a korrelált paramágnesek jellemzői. Egyes frusztrált rendszerek egyáltalán nem rendeződnek, mások viszont viszont alacsony hőmérsékleten igen az ún.

order by disorder (rend a rendezetlenségéből) mechanizmus segítségével, ahol a kvantumozott vagy hőmérsékleti fluktuációk választanak ki egy rendet. Végül a Heisenberg-modell egy, a frusztrációtól független alkalmazását mutatom meg magnetooptikai kontextusban.

A magneto-elektromos multiferroikus anyagokban a mágnesszettségi és elektromos polarizációs szabadsági fokok csatoltak. Ezen csatolás megjelenik a statikus tulajdonságokban: a mágnesszettséget manipulálhatjuk külső elektromos térrel, illetve az elektromos polarizációt mágneses térrel. Alacsony hőmérsékleten pedig a mágneses rend indukálhat elektromos polarizációt. A keresztkorrelációk megmutatkoznak a véges frekvenciás tulajdonságokban is, ami az ún. *elektromagnonok* [Pimenov et al., 2006, Takahashi et al., 2012, Takahashi et al., 2013, Penc et al., 2012], optikai anizotrópiák pl. magnetoelektromos polarizációforgatás vagy a reciprocitássértő irányfüggő dikroizmus megjelenéséhez vezet. Ez utóbbi azt jelenti, hogy az adott anyagban a szembehaladó fénysugarak különböző mértékben nyelődnek el (extrém esetben a kristály átlátszó az egyik irányból és teljesen átlátszatlan a másik irányból). Ilyen tulajdonságú anyagok pl. a $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ vagy a $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$ a melilitek családjából [Kézsmárki et al., 2014].

Célkitűzések

A dolgozat két részből áll: a második és harmadik fejezetben frusztrált rácsokon értelmezett klasszikus Heisenberg mágnesekkel foglalkozom, míg a negyedik fejezetben egy egyszerű modellt vezetek be a magnetoelektromos multiferroikus $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ magnetooptikai tulajdonságainak vizsgálatára.

A frusztrált lapcentrált köbös (*face-centered cubic, fcc*) rács az egyik leggyakoribb rács a természetben. Az ezen a rácson értelmezett klasszikus, izotrop első- és másodsomszéd Heisenberg-modell ($J_1 - J_2$ modell) jól ismert az irodalomban. A modell alapállapotú (nulla hőmérsékletű) fázisdiagramjában négy kommenzurábilis rendet találtak [Sólyom, 2007]: egy ferromágnesest és három antiferromágnesest. A harmadszomszéd kölcsönhatást ($J_1 - J_2 - J_3$ modell) *inkommenzurábilis* fázisok (spinspirálok) megtalálásának reményében vezettem be. A fázisdiagramot a Luttinger–Tisza-módszer alapján vizsgáltam, és a fázisdiagram meglepően gazdagnak bizonyult: három különböző típusú spinspirált találtam speciális terjedési irányokban. Továbbá a hármaspontokban (ahol három fázis találkozik) és egyes fázishatárokon kiterjedt (degenerált) alapállapotú sokaságokat találtam Fourier-térben: három egydimenziósat és egy kétdimenziósat, utóbbit a fázisdiagram speciális $J_2 = J_1/2 > 0$, $J_3 = 0$ pontjában. Részletesen vizsgáltam ezeket a fázisokat, és a kiterjedt sokaságok esetében alapállapotok családjait konstruáltam meg, többek között egymás után következő független ferro- és antiferromágnesesen rendezett síkokat, illetve kölcsönható ferromágneses láncokat. Ezen pontok degeneráltságát sikerült a Hamilton-függvény ekvivalens átalakításával értelmezni: a rácsot ismétlődő, véges motívumokkal fedtem le és a Hamilton függvényt a spinek ezen motívumokon vett összegeinek teljes négyzeteiként adtam meg.

A kétdimenziós alapállapotú sokaság megtalálása a lapcentrált köbös modell $J_2 = J_1/2 > 0$, $J_3 = 0$ pontjában ösztönözte más hasonlóképpen degenerált modellek keresését. Megadtam egy receptet egy-kodimenziós (görbék két és felületek három dimenzióban) alapállapotú sokasággal rendelkező Heisenberg-modellek konstrukciójára Bravais-rácsokon: ez mindig frusztrált kölcsönhatású modelleket eredményezett. Megvizsgáltam a hőmérsékleti *order by disorder* mechanizmus hatását az egyszerű köbös és a lapcentrált köbös rácsokra kapott modellben.

Kísérleti kollégáink izgalmas magnetooptikai jelenségeket (különösképpen a reciprocitássértő irányfüggő dikroizmust) tapasztaltak a magnetoelektromos multiferroikus $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ paramágneses fázisában, erős külső mágneses térben. A dolgozat utolsó részében ezt kíséreltem meg megérteni. Ez az anyag egy könnyű sík típusú (egy-ion, on-site) anizotrópiával rendelkező antiferromágnes, és leírható a Co^{2+} ion $S = 3/2$ spinjein alapuló kvantum Heisenberg-moddal. Ebben az anyagban az indukált polarizáció spin-

kvadrupólus operátorokkal írható fel, így a Heisenberg-modell vizsgálatával érthetjük meg a magnetooptikai jelenségeket. Az erős anizotrópia jelenléte és a paramágneses fázisban gyenge korrelációk motiválták a kicserélődési kölcsönhatások elhanyagolásával kapott egy-ion modell vizsgálatát: ezzel a nagyon egyszerű modellel is képes voltam a magnetooptikai tulajdonságok egy részének magyarázatára. A kölcsönhatások perturbatív figyelembe vétele utólag megmagyarázta az egy-ion modell sikerét.

A kiválasztási szabályok csoportelméleti vizsgálata arra a felismerésre vezetett, hogy mágneses csoportokkal leírható anyagokban az antiunitér (időtükrozött) csoportelemek összekapcsolják a perturbáló operátorok mátrixelemeinek valós és képzetes részeit. Konkrétan a $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ esetében egy időtükrözéssel kombinált kétfogású forgástengely jelenléte miatt a mágnesezettség és az elektromos polarizáció operátorainak mátrixelemei vagy tisztán valósak vagy tisztán képzetesek (a Bordács Sándor vezette csoport kísérleteivel teljes egyezésben, ezen kísérletek motiválták a probléma vizsgálatát).

Tézispontok

1. A Luttinger–Tisza-módszer segítségével megkonstruáltam a lapcentrált köbös rácson értelmezett klasszikus, izotrop Heisenberg-modell alapállapotú (zérus hőmérsékletű) fázisdiagramját harmadszomszéd kölcsönhatásokig bezárólag. Részletesen vizsgáltam a kommenzurábilis fázisokat: megmutattam, hogy a többszörös hullámvektorú (multiple-Q) rendek nemkollineárisak, sőt nemkoplanárisak lehetnek, illetve a III. típusú antiferromágnesben akár királisak is. Megmutattam, hogy a harmadszomszéd kölcsönhatás bevezetése minőségileg új jelenségekre vezet: az inkommenzurábilis spinspirálok megjelenésére, ahol a spirálok terjedése vektorai speciális irányokba mutatnak a Brillouin-zónában [1].
2. Megmutattam, hogy a lapcentrált köbös rácson értelmezett harmadszomszéd, klasszikus, izotrop Heisenberg-modell fázisdiagramjának hármaspontjaiban és különleges fázishatárain kiterjedt (degenerált) alapállapotú sokaságok jelennek meg Fourier-térben: három egydimenziós és egy kétdimenziós sokaság. Ezekben a pontokban a Hamilton-függvényt a rácsot lefedő véges motívumokon képzett spinösszegek teljes négyzeteiként állítottam elő. Ezen lefedések segítségével alapállapotok széles osztályait konstruáltam meg, és megmagyaráztam a sokaságok degenerációját. Ezen egzakt alapállapotok családjai, többek között egymás után következő független ferro- és antiferromágnesesen rendezett síkok, illetve kölcsönható ferromágneses láncok [1].
3. Megadtam egy receptet olyan klasszikus, izotrop Heisenberg-modellek konstrukciójára, amelyek egy-kodimenziós alapállapotú sokasággal rendelkeznek (azaz görbék két és spinspirál felületek három dimenzióban). A modellek vagy finomhangoltak, vagy néhány szabad paramétert tartalmaznak: utóbbi esetben a paraméterek változtatásával topologikus (Lifshic-) fázisátmeneteket találtam. A lapcentrált és egyszerű köbös esetekben kiszámoltam az alacsony hőmérsékleti szabadenergiát és megmutattam, hogy a hőmérsékleti vagy a kvantum fluktuációk kommenzurábilis rendeket választanak ki a spinspirál felületen az *order by disorder* (rend a rendezetlenségből) mechanizmus segítségével [2].
4. Konstruáltam egy egy-spin modellt, ami leírja az ákermanitok családjába tartozó magnetoelektromos, multiferroikus $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ kristály reciprocitássértő, irányfüggő dikroizmusát a paramágneses fázisban és erős külső mágneses térben. A modell a külső teret, az erős, könnyű-sík típusú anizotrópiát és a fém-ligandum

hibridizációs mechanizmus által indukált elektromos polarizációt veszi figyelembe. Egyszerűsége ellenére a modell helyesen adja vissza a gerjesztési energia térfüggését. Csoportelméleti megfontolások segítségével levezettem a magneto-elektromos kiválasztási szabályokat. Az egy-ion modellt kiterjesztettem a rácsra, és a kölcsönhatások perturbatív figyelembevételével megmagyaráztam az egy-ion közelítés sikerét a paramágneses fázisban [3].

5. A közönséges kiválasztási szabályok egy szimmetrikus Hamilton-operátort perturbáló operátorok bizonyos mátrixelemeinek eltűnését garantálják, feltéve hogy ezen operátorok a Hamilton-operátor csoportjának bizonyos irreducibilis reprezentációi szerint transzformálódnak. Ezt az elgondolást általánosítottam (tetszőleges hosszúságú spint tartalmazó és tetszőleges mágneses szimmetriával rendelkező modellekre) és megmutattam, hogy a csoport antiunitér szimmetriaelemei kapcsolatokat adnak a lineáris operátorok mátrixelemeinek valós és képzetes részei között. Speciálisan, ha egy kétfogású forgatás az időtükrözéssel kiegészítve szimmetriája a Hamilton-operátornak, és a perturbáló operátorok párosak (páratlanok) ezen szimmetria hatása alatt, akkor mátrixelemeik valósak (tisztán képzetesek). Ezt az eredményt alkalmazva a $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ esetében a mágneszettség- és elektromos polarizációoperátorokra új kiválasztási szabályokat vezettem le. Ezeket a szabályokat a magnetooptikai abszorpciómérések is igazolták a paramágneses [3] és rendezett [4] fázisokban.

Tézispontokhoz tartozó publikációk

- [1] Péter Balla, Yasir Iqbal, and Karlo Penc

Degenerate manifolds, helimagnets, and multi-Q chiral phases in the classical Heisenberg antiferromagnet on the face-centered-cubic lattice.

Physical Review Research **2**, 043278 (2020)

- [2] Péter Balla, Yasir Iqbal, and Karlo Penc

Affine lattice construction of spiral surfaces in frustrated Heisenberg models

Physical Review B **100**, 140402(R) (2019)

- [3] J. Viirok, U. Nagel, T. Rõõm, D. G. Farkas, P. Balla, D. Szaller, V. Kocsis, Y. Tokunaga, Y. Taguchi, Y. Tokura, B. Bernáth, D. L. Kamenskyi, I. Kézsmárki, S. Bordács, and K. Penc

Directional dichroism in the paramagnetic state of multiferroics: A case study of infrared light absorption in $\text{Sr}_2\text{CoSi}_2\text{O}_7$ at high temperatures

Physical Review B **99**, 014410 (2019)

- [4] J. Vít, J. Viirok, L. Peedu, T. Rõõm, U. Nagel, V. Kocsis, Y. Tokunaga, Y. Taguchi, Y. Tokura, I. Kézsmárki, P. Balla, K. Penc, J. Romhányi, and S. Bordács

In Situ Electric-Field Control of THz Nonreciprocal Directional Dichroism in the Multiferroic $Ba_2CoGe_2O_7$

Physical Review Letters **127**, 157201 (2021)

További publikáció

- [5] A. Szilva, P. Balla, O. Eriksson, G. Zaránd, and L. Szunyogh

Universal distribution of magnetic anisotropy of impurities in ordered and disordered nanograins

Physical Review B **91**, 134421 (2015)

Irodalomjegyzék

- [Balents, 2010] Balents, L. (2010). Spin liquids in frustrated magnets. *Nature (London)*, 464(7286):199–208.
- [Bergman et al., 2007] Bergman, D., Alicea, J., Gull, E., Trebst, S., and Balents, L. (2007). Order-by-disorder and spiral spin-liquid in frustrated diamond-lattice antiferromagnets. *Nat. Phys.*, 3:487.
- [Gao et al., 2016] Gao, S., Zaharko, O., Tsurkan, V., Su, Y., White, J. S., Tucker, G. S., Roessli, B., Bourdarot, F., Sibille, R., Chernyshov, D., Fennell, T., Loidl, A., and Rüegg, C. (2016). Spiral spin-liquid and the emergence of a vortex-like state in MnSc_2S_4 . *Nat. Phys.*, 13:157.
- [Gutzwiller, 1963] Gutzwiller, M. C. (1963). Effect of correlation on the ferromagnetism of transition metals. *Phys. Rev. Lett.*, 10:159–162.
- [Heisenberg, 1928] Heisenberg, W. (1928). Zur theorie des ferromagnetismus. *Zeitschrift für Physik*, 49(9):619–636.
- [Henley, 2010] Henley, C. L. (2010). The “coulomb phase” in frustrated systems. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 1(1):179–210.
- [Hubbard, 1963] Hubbard, J. (1963). Electron correlations in narrow energy bands. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 276(1365):238–257.
- [Kanamori, 1963] Kanamori, J. (1963). Electron Correlation and Ferromagnetism of Transition Metals. *Progress of Theoretical Physics*, 30(3):275–289.
- [Kézsmárki et al., 2014] Kézsmárki, I., Szaller, D., Bordács, S., Kocsis, V., Tokunaga, Y., Taguchi, Y., Murakawa, H., Tokura, Y., Engelkamp, H., Rößler, T., and Nagel, U. (2014). One-way transparency of four-coloured spin-wave excitations in multiferroic materials. *Nature Comm.*, 5:3203.
- [Knolle and Moessner, 2019] Knolle, J. and Moessner, R. (2019). A field guide to spin liquids. *Annual Review of Condensed Matter Physics*, 10(1):451–472.
- [Lacroix et al., 2011] Lacroix, C., Mendels, P., and Mila, F. (2011). *Introduction to Frustrated Magnetism: Materials, Experiments, Theory*. Springer Series in Solid-State Sciences. Springer Berlin Heidelberg.

- [Luttinger, 1951] Luttinger, J. M. (1951). A note on the ground state in antiferromagnetics. *Phys. Rev.*, 81:1015–1018.
- [Luttinger and Tisza, 1946] Luttinger, J. M. and Tisza, L. (1946). Theory of dipole interaction in crystals. *Phys. Rev.*, 70:954–964.
- [Penc et al., 2012] Penc, K., Romhányi, J., Rőöm, T., Nagel, U., Antal, A., Fehér, T., Jánossy, A., Engelkamp, H., Murakawa, H., Tokura, Y., Szaller, D., Bordács, S., and Kézsmárki, I. (2012). Spin-stretching modes in anisotropic magnets: Spin-wave excitations in the multiferroic $\text{Ba}_2\text{CoGe}_2\text{O}_7$. *Phys. Rev. Lett.*, 108:257203.
- [Pimenov et al., 2006] Pimenov, A., Mukhin, A. A., Ivanov, V. Y., Travkin, V. D., Balbashev, A. M., and Loidl, A. (2006). Possible evidence for electromagnons in multiferroic manganites. *Nature Physics*, 2(2):97–100.
- [Savary and Balents, 2016] Savary, L. and Balents, L. (2016). Quantum spin liquids: a review. *Reports on Progress in Physics*, 80(1):016502.
- [Sólyom, 2007] Sólyom, J. (2007). *Fundamentals of the Physics of Solids: Volume 1: Structure and Dynamics*. Fundamentals of the Physics of Solids. Springer Berlin Heidelberg.
- [Takahashi et al., 2012] Takahashi, Y., Shimano, R., Kaneko, Y., Murakawa, H., and Tokura, Y. (2012). Magnetoelectric resonance with electromagnons in a perovskite helimagnet. *Nature Physics*, 8:121–125.
- [Takahashi et al., 2013] Takahashi, Y., Yamasaki, Y., and Tokura, Y. (2013). Terahertz magnetoelectric resonance enhanced by mutual coupling of electromagnons. *Phys. Rev. Lett.*, 111:037204.