

**Korrelált elektronrendszerek fázsiátalakulásainak
elméleti és NMR kísérleti vizsgálata**
című K66280 OTKA projekt zárójelentése

Berendezésfejlesztés

A projektben szereplő NMR mérések elvégzéséhez szükséges spektrométer gyengeáramú rádiófrekvenciás elektronikai részeit tartalmazó konzol 2008-ban meghibásodott, és mivel a gyártó már nem vállalta az elavult berendezés javítását, ezért új konzolt szereztünk be. A vételárat az OTKA kollégium előzetes hozzájárulásával részben a jelen projektre kapott támogatásból fedeztük.

Választásunk a piacvezető német Bruker cég legkorszerűbb Avance III spektrométerére esett. A beszerzett egycsatornás, 5–433 MHz frekvencia-tartományban működő rádiófrekvenciás konzolt integráltuk laboratóriumunk 9 T terű szupravezető mágnesével és a meglévő kiegészítő infrastruktúrával (kriosztát, teljesítmény- és előerősítők, mérőfejek). A készülék főbb jellemzői, a nagyon gyors (25 ns) fázis-, amplitúdó- és frekvenciaváltoztatás, a nagy pontosságú frekvencia és fázisbeállítás, ezen paraméterek stabilitása, a digitális vevőegység nagy felbontása és sáv szélessége egyaránt kiválóan alkalmassá teszik még a legmodernebb, kihívásokkal teli összetett szilárdtestfizikai alkalmazásokra is.

Fullerén-kubán rotor-sztátor kristály NMR spektroszkópiája

Tanulmányoztuk az először intézetünkben előállított [Pekker2005] $C_{60} \cdot C_8H_8$ képletű fullerén-kubán molekulakristály 1H és ^{13}C NMR spektrumát és spin-rács relaxációs idejét. A kristály két magas szimmetriájú molekula – az ikozaédes fullerén és köbös kubán – kőszerű, váltakozó pakolásával áll elő. A gömbszerű fullerémolekulák felszíne jól illeszkedik a kubán molekulák konkáv felszínéhez; innen ered az a sajátossága a szerkezetnek, hogy a fullerén molekulák szinte szabadon foroghatnak a sztatikus kubán molekulák között. Ebből adódott a „rotor-sztátor” kristály elnevezés [Pekker 2005], és ez az unikális tulajdonság teszi érdekessé az anyagot.

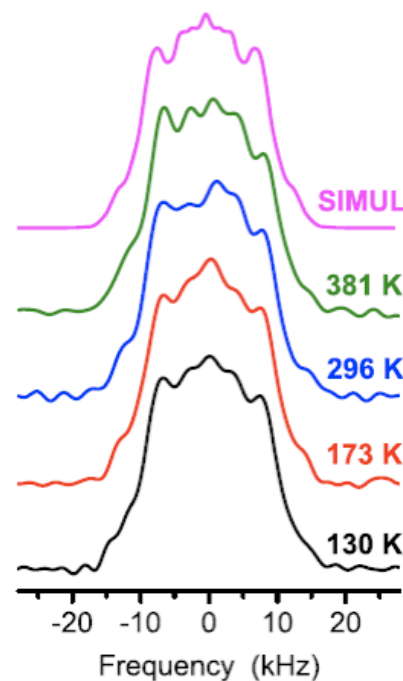
NMR méréseink [Bokor2008, Matus2009] egyik célja a molekuláris dinamika és az alacsony hőmérsékleti orientációs rendeződés vizsgálata volt. A jelen projekthez azonban nem az érdekes molekuláris dinamika, hanem az az unikális lehetőség kapcsolta az anyagot, hogy a kubán molekulában található 8 protont a többi protontól jól elválasztják a fullerén molekulák, és így tanulmányozható NMR segítségével egy kölcsönható 8-spin rendszer.

A magspin-magspin kölcsönhatást leíró tag a Hamilton-operátorban általában nem diagonalizálható és így a kölcsönható spinek NMR spektruma nem számolható. Nevezetes kivételt képeznek az olyan kristályok, melyekben kis számú erősen kölcsönható spin térben jól el van választva a szomszédos spincsoportoktól és így lényegében az egy csoporton belüli spinek kölcsönhatása határozza meg az NMR spektrumot. Klasszikus példa erre az elszigetlet protonpárok spektrumában

megjelnő ún. Pake-dublett [Pake1948]. Ilyen szempontból nagyon érdekes a kubánban egy kocka 8 csúcán elhelyezkedő 8 proton NMR spektruma.

Egzakts numerikus diagonalizációval meghatároztuk a csak a direkt spin-spin kölcsönhatást és Zeemann-kölcsönhatást tartalmazó Hamilton-operátorból adódó NMR spektrumot a kubán molekula 8 protonjára [Bokor2008]. A számolt spektrumokat átlagoltuk a mágneses tér orientációjára és összevetettük a pormintán mért NMR spektrummal. Mint a 2. ábrán látható, a teljes vizsgált hőmérséklettartományban lényegében szabad illesztési paraméter nélkül kiváló egyezést találtunk a mért és számolt spektrumok között.

A fenti eredmény azt is igazolja, hogy a vizsgált hőmérséklet-tartományban a kubán molekulák orientációja nem változik (legalábbis a vonalszélesség inverzéből adódó mintegy $100 \mu\text{s}$ időskálán), míg szobahőmérsékleten a ^{13}C jelben mozgási keskenyedést látunk, azaz a fullerén molekulák gyorsan forognak. Az NMR mérések tehát erős bizonyítékát adják a kristály „rotor-sztátor” természetének. ^{13}C NMR spin-rács relaxációs méréseink [Matus 2009] tanúsága szerint a fullerén molekulák orientációs rendeződése csak 145 K-en következik be, ami sokkal alacsonyabb az egyéb fullerén vegyületek rendeződési hőmérsékleténél, tehát a kubán molekulák valóban hatékony csapágyként szolgálnak a fullerén molekulák számára.



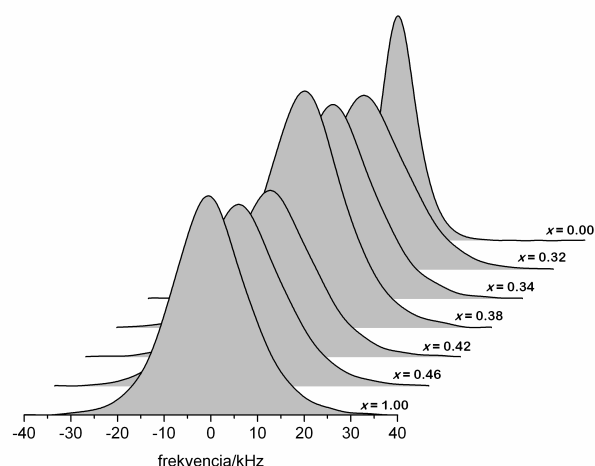
1. ábra $\text{C}_{60}\text{-C}_8\text{H}_8$ ^1H NMR spektruma 1,95 T mágneses térben, különböző hőmérsékleteken. A felső görbe a számított spektrum.

Cianidhidas átmenetifém-komplexek

Különböző cianidhidas átmenetifém-komplexeket vizsgáltunk [Bokor2007,2008; Kováč2006], melyek a molekuláris mágnesek és kapcsolók népes családjának tagjai. A berlini kék analóg (Prussian blue analog – PBA) vegyületeknél magas szupravezetési hőmérsékletek érhetőek el, spincentrumként sokféle fémion építhető be, lapcentrált köbös szerkezetük pedig elősegíti a fémionok közötti szuperkicserélődési kölcsönhatások megértését [pl. Verdager1999]. A $(\text{Ni}_x\text{Mn}_{1-x})_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2$ PBA-vegyületekben az átmeneti fémek molarányának változtatásával megtervezhetők a különböző mágneses tulajdonságok [Ohkoshi1997]. Az oktaciano-metallát $[\text{M}(\text{CN})_8]^{3-/4-}$ ($\text{M} = \text{Mo}, \text{W}$ és Nb) építőegységeken alapuló szupramolekuláris szerkezetek esetleges nanotechnológiai alkalmazásuk miatt érdekesek [Przychodzen2006]. Nagy spinű polinukleáris molekulák éppúgy készíthetők belőlük, mint molekuláris vagy fényel aktivált mágnesként viselkedő kiterjedt többdimenziós koordinációs hálózatok. A kétdimenziós molekuláris hálózatot képző tagjaik (pl. a réteges szerkezetű, kvázi kétdimenziós ferromágnes $\{(\text{tetrénH}_5)_{0,8}\text{Cu}_4[\text{W}(\text{CN})_8]_4 \cdot 7,2\text{H}_2\text{O}\}_n$) vonzerejét egyrészt a külső mágneses térben mutatkozó sajátos fázisdiagramjuk jelenti, másrészt

pedig alternatív forrásai lehetnek a technológiai szempontból fontos mágneses multirétegeknek [Coronado2000].

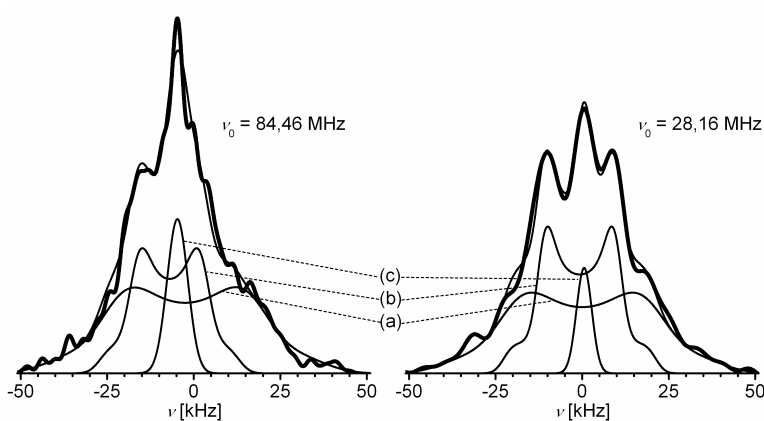
A berlini kék analóg vegyületek lapcentrált köbös rácsa közel sem mentes a hibáktól és hiányoktól: a fémion helyzetek egy része üres, más részüket pedig vízmolekulák foglalják el. A víz mennyisége jelentősen befolyásolja az előállított PBA eredő mágneses tulajdonságait ún. Curie-hőmérsékletét és a telítési mágneszettség értékét. A PBA-kristályrács rendezetlenségének magas foka növeli a lokális mágneses szerkezetet vizsgálni képes kísérleti technikák fontosságát. $(\text{Ni}_x\text{Mn}_{1-x})_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ vegyületeket vizsgáltunk a kristályrácsban található vízmolekulák ^1H -NMR-jelének segítségével, különböző Ni : Mn arányoknál ($x = 0,00; 0,32; 0,34; 0,38; 0,42; 0,46; 1,00$) [Bokor2008]. A $\text{Ni}_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ vegyületnél detektálható protonok vagy a fémionhoz koordinált vagy a zeolitos vízmolekulákhoz tartoznak. Eredményeink szerint ezek nikkkel-koordinált vizek a következő érvek alapján. (i) Képletegységenként hat ilyen vízmolekula van és az NMR-rel mért és a képlet szerinti hidrogénmennyiség hányadosa $n_{\text{NMR}}/n_{\text{formula}} = 40\%$ megegyezik ezzel az aránnyal (6/15). (ii) Sokkal nagyobb arányban detektálhatók a protonok az $x < 1$ vegyületekben és gyakorlatilag az összes proton rezonáns a $\text{Mn}_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ vegyületben. Ez úgy értelmezhető, ha feltesszük, hogy a mangánionok mágneses momentuma és a krómionokkal való kölcsönhatásuk erősebb a nikkell- vagy krómionok mágneses terénél és a Ni-Cr kölcsönhatásnál. Mindezen hatások eredményeképpen a mangánvegyületben ($x = 0$) lévő protonok térben homogénebb eloszlású lokális mágneses térerőt tapasztalnak, mint a nikkelvegyületben ($x = 1$). (iii) A spin-rács relaxációs idő, a szabad precessziós jelet (FID) jellemző időállandó és a spektrumok félértékszélessége alapján ezekben a mangántartalmú vegyületekben ($x < 1$) a detektálható protonok jelentősen nagyobb lokális mágneses momentumokat éreznek, mint a $\text{Ni}_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ vegyületben.



2.ábra $(\text{Ni}_x\text{Mn}_{1-x})_3[\text{Cr}(\text{CN})_6]_2 \cdot 15\text{H}_2\text{O}$ vegyületek spin-echoval mért ^1H -NMR spektruma $T = 23^\circ\text{C}$, $\nu_0 = 82,55$ MHz

A réteges szerkezetű $\{(\text{tetrénH}_5)_{0,8}\text{Cu}_4[\text{W}(\text{CN})_8]_4 \cdot 7,2\text{H}_2\text{O}\}_n$ policianidok kvázi kétdimenziós ferromágnesek. Figyelembe véve a mágneses síkok kb. 1 nm-es távolságát, meglepően magas a Curie-hőmérsékletük (28-37 K). A rétegek közötti kölcsönhatás természetének megértéséhez segítségül ^1H -NMR méréseket végeztünk a vegyület polikristályos mintáin [Bokor2007]. A méréseknél két különböző nagyságú állandó külső mágneses teret alkalmaztunk (ekvivalens frekvencia 28,16 és 84,46 MHz). Az NMR-jel amplitúdók szerint képletegységenként 21 ± 1 hidrogénatomot találtunk a sztöchiometria szerinti 36,8 helyett. A hiányzó hidrogénmennyiség a mágneses Cu^{II} és W^{V} ionok közelében lévő víz és/vagy tetrén H_5 molekulákhoz tartozik. Az echojelek viselkedéséből arra lehetett következtetni, hogy a víz és a tetrén H_5 molekulákhoz tartozó hidrogénatomok nem alkotnak homogén magspin-rendszert. Az inhomogenitást az ^1H -magspinek és a fémionok lokális mágneses momentuma közötti kölcsönhatás okozza. Szerkezeti információk nyerésére az ún. szilárd-echo szekvenciát használtuk, mely csak a két spin korrelációkat

refókuszálja. A szobahőmérsékletű spektrumok három komponensre voltak bonthatók mindkét alkalmazott mágneses térben. Két komponens egymáshoz közel lévő, izolált, egymással dipoláris kölcsönhatásban lévő proton párnak felel meg, melyek közül az egyik fajta proton pár (a) mozdulatlan (nem végez reorientációs mozgást), a másik pedig olyan proton párnak (b) tulajdonítható, ami a pár tagjait összekötő szakaszra merőleges ten-



3. ábra $\{(\text{tetrénH}_5)_{0,8}\text{Cu}_4[\text{W}(\text{CN})_8]_4 \cdot 7,2\text{H}_2\text{O}\}_n$ szilárd-echóval mért ^1H -NMR spektruma $T = 23^\circ\text{C}$

gely körül forog. A proton párok tagjainak távolsága $0,165 \pm 0,002$ illetve $0,160 \pm 0,002$ nm. A harmadik komponens (c) nem bontható fel. Az alkalmazott háromszor nagyobb állandó külső B_0 mágneses tér hatására a spektrumkomponensek negatív irányban tolódtak el a paramágneses Cu^{II} és W^{V} ionok B_0 -lal arányos lokális mágneses tere hatására. A (b) és a (c) jel a fémionok közelségének köszönhetően kiszélesedett. A forgó proton pár (b) jelének intenzitása lecsökkent a nagyobb mágneses térben és ez szenved el a legnagyobb eltolódást a kisebb térben tapasztalható képest. Ebből következően ez a hidrogénatom csoport helyezkedik el a fémionokhoz legközelebb. A 96 K-en felvett spektrum nem rendelkezik felbontható szerkezettel. Az időtartományban detektált jelből $0,1544 \pm 0,0004$ nm-es átlagos hidrogén-hidrogén távolságot lehetett kiszámítani, ha eltekintünk a paramágneses fémionok ismeretlen nagyságú hatásától. Ez az adat ezért alsó határnak tekintendő a mintában lévő hidrogénatomok átlagos távolságára.

Spinkvadrupólus-rendeződés háromszög- és négyzetrácsan?

A NiGa_2S_4 rétegszerű anyag, amelyben a NiS_4 rétegekben a Ni $S=1$ spinjei háromszögrácsot alkotnak [Nakatsujji 2005] kvázi-kétdimenziós mágneses kölcsönhatással. Az anyag érdekessége abban rejlik, hogy a fajhőmérések lineáris diszperziójú Goldstone-módusok jelenlétére utalnak, amelyek eredete tisztázatlan, ugyanis az anyagban nem találtak hosszú távú spinrendeződést. Egy lehetséges magyarázat szerint az $S=1$ spinek kvadrupólus szabadsági fokai rendeződnek az anyagban. Ezért részletesen tanulmányoztuk a Heisenberg-modell $\text{SU}(2)$ -szimmetrikus kiterjesztését $S=1$ spinekre, amely a szokásos $\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j$ bilineáris kölcsönhatás mellett tartalmazza az $(\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j)^2$ bikvadratikus tagot is. A fázisdiagramban a szokásos ferromágneses és antiferromágneses fázisokat ferro- ill. antiferro-kvadrupoláris fázis választja el egymástól. A spinkvadrupoláris állapotban a spinoperátorok várható értéke 0, de az állapot sérti a forgatási invarianciát. Ilyen pl. az $S=1$ spin $S^z=0$ komponense, amelyben az $(S^z)^2$ ill. az $(S^x)^2$ és $(S^y)^2$ operátorok várható értéke különbözik: a spin az xy síkban fluktuál. A fluktuációs síkra merőleges irányt direktornak nevezzük. Az antiferrokvadrupoláris fázisban három alrácsan a direktorok egymásra merőlegesen helyezkednek el, a három térbeli irány a háromszög három alrácsán hosszú távú rendet alkot. Ezért noha a háromszögrács frusztrált a spinek dipoláris rendeződésére, a kvadrupoláris rendeződés nem frusztrált. További érdekességként a modell véges mágneses térben mágneszettségi platókat mutat a bikvadratikus kölcsönhatás függvényeként: egyharmad mágneszettségnél fel-fel-le, kétharmad

mágneszettségénél fel-kvadrupol-kvadrupol állapottal a három alrácson. A rendezett fázisokban SU(3) spinhullám-elmélettel kiszámoltuk a gerjesztések diszperzióját, valamint a (neutronszorással mérhető) dinamikus spin-spin korrelációs függvényt. [Läuchli2006]

Mivel az antiferrokvadrupoláris fázisban a direktorok egymásra merőlegesen szeretnek állni, felvetődik a kérdés, hogy mi történik négyzetrácson, ahol ez sokféleképpen valósulhat meg (átlagtér közelítésben makroszkopikusan elfajult alapállapotot találunk). Azt találtuk, hogy négyzetrácson is három alrácsú hosszú távú rend alakul ki, ugyanis a kvantumfluktuációk az elfajulást feloldják. Mágneses térben feles mágneszettségénél plató alakul ki, amelyben visszaáll a két alrácsú rend.

[T.A.Tamás, A. Läuchli, F. Mila, K. Penc, előkészületben].

BaVS₃

A Budapesti Műszaki Egyetemen folytatott kísérleti kutatásokhoz csatlakozva értelmeztük a BaVS₃ korrelált átmenetifém-szulfidon végzett új mérések eredményeit. A BaVS₃ fém-szigetelő átalakuláson megy át, melynek kritikus hőmérséklete a hidrosztatikus nyomás függvényében fokozatosan csökken, míg végül egy 2GPa körüli kritikus nyomáson eltűnik. A kritikus nyomáshoz közel a fém-nemfém átmenet már külső mágneses térrel is indukálható, de ennek a jelenségnek a részletei eltérnek az előzetes egyszerű várakozástól: csökkenő hőmérsékletű éles átalakulás helyett az átmenet elkenődése figyelhető meg. Diszkutáltuk ennek lehetséges okait. A kritikus nyomás felett a BaVS₃ széles nyomástartományban rossz fém, amennyiben eltérést mutat a kanonikus Fermi-folyadék viselkedéstől. A megfigyeléseket egy kvantumkritikus fázis feltételezésével értelmeztük. [Fazekas2007a, Fazekas2007b]

Frakcionális gerjesztések piroklór rácson

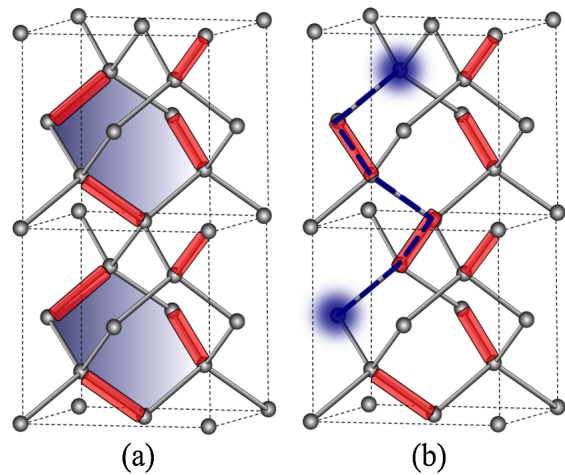
Az antiferromágneses Ising-modell alapállapota egy tetraéderen hatszorosan degenerált: a 16 lehetséges állapot közül 6 állapot energiája azonos (2 spin fel, 2 pedig lefelé mutat). A piroklór rácson, amely csúcspontjaikban érintkező tetraéderekből épül fel, minden olyan állapot, amely a fenti szabályt kielégíti az összes tetraéderen, egyben alapállapot is. A szabály "jégszabály" néven ismert, ugyanis hasonló degeneráció található a jég esetében is, az Ising-modell és a jég állapotai egy az egyhez feleltethetők meg egymásnak (a jégben az oxigén négy szomszédos H ionja közül kettő közelebb, kettő pedig távolabb helyezkedik el). A 30-as években Pauling megbecsülte, hogy a lehetséges állapotok száma exponenciálisan nő a vízmolekulák számával. Ugyancsak jégszabály érvényesül az úgynevezett spinjég anyagokban is, mint a Dy₂Ti₂O₇ [Harris2007].

Hasonló problémával állunk szemben töltések esetében is: elsőszomszéd taszítással kiterjesztett Hubbard-modell az erősen korrelált határesetben és kommenzurábilis betöltöttségénél szigetelő. Negyed betöltöttségénél tetraéderenként kettő (követve a jégszabályt), nyolcad betöltöttségénél tetraéderenként 1 elektron található. Mindkét esetben az alapállapot exponenciálisan degenerált.

A modell további érdekessége, hogy az erősen degenerált szigetelő alapállapot miatt frakcionális töltésű gerjesztések jelenhetnek meg benne: például egy hozzáadott elektron két feles töltésű topologikus gerjesztésre bomlik (a spinjég esetében a frakcionális gerjesztéseket monopólusoknak

nevezték el, és kísérletileg ki is tudták őket mutatni [Castelno2008]).

A projekt keretében tekintettük a háromdimenziós piroklór rácson ugráló spinnélküli fermionokat erős elsőszomszéd taszítással, negyed betöltésnél. Ebben az esetben tetraédereként egy fermionot találunk, az állapotok leképezhetőek a gyémántrács dimer lefedéseire (a piroklór rác tetraédereinek középpontjai gyémántrácsot alkotnak, a piroklór rác rácspontjai pedig a gyémántrács éleit). Az effektív alacsonyenergiás Hamilton-operátor legelő-ször a perturbációs számítás harmadik rendjében köti össze a dimerállapotokat ciklikus kicserélődés formájában. A kicserélődést kiterjesztve diagonális taggal Rokhsar–Kivelson-féle kvantumdimer-modellt kapunk [Rokhsar 1988] (a diagonális tag a rezonálható hatszögek számát méri, nagysága μ , a ciklikus tag amplitudója pedig egységnyi). A háromdimenziós kvantumdimer-modell térelméleti tárgyalása arra engedett következtetni, hogy a modell képes egy energiárés nélküli folyadékfázist stabilizálni, amelyben semmilyen szimmetria sem sérül. Ezért az említett modellt különböző analitikus és numerikus módszerekkel vizsgáltuk. A $\mu \rightarrow -\infty$ határesetben a dimerek hosszú távú rendet mutatnak (2a. ábra), véges energiájú gerjesztésekkel. Green-függvényes kvantum-Monte-Carlo-módszerrel numerikusan kiszámoltuk a rendparamétert és a gerjesztési spektrumot véges méretű rácson (128, 432, 1024, ill. 2000 rácshelyen). Eredményeink szerint a folyadékállapot a $0,8 < \mu < 1$ tartományban valósul meg. Sikerült közvetlenül kimutatnunk, hogy a két monopólus által kifeszített húr feszültsége nullához tart, azaz a monopólusok aszimptotikusan szabaddá válnak. [Sikora2009]

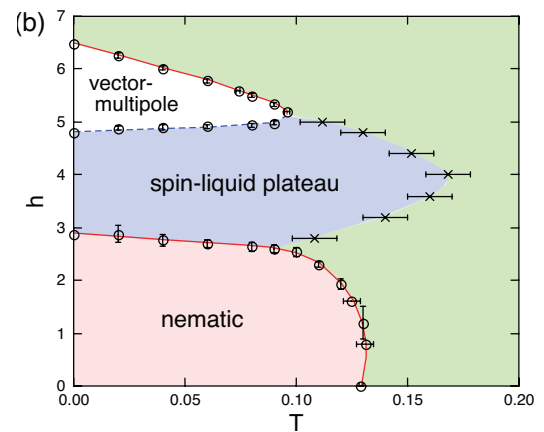


4.ábra (a) gyémántrács kvantum-dimer modelljének rendezett állota. Pirossal jelöltük a dimereket, kék hatszöggel pedig a hatszögeket amelyben a dimerek ciklikusan felcserélhetjük. (b) Egy dimert felbontva két monopolust kapunk, amelyek egy “húrral” vannak összekötve.

Spin multipol rendeződés piroklór rácson

A piroklór rácson nemcsak az előző részben tárgyalt Ising-modell frusztrált, hanem a klasszikus $O(3)$ szimmetrikus spin-Heisenberg-modell is. Emiatt a spinek nem rendeződnek véges hőmérsékleten. A frusztrációt mérsékelheti további kölcsönhatások bevezetése, amelyek már képesek hosszú távú rendet stabilizálni – ilyen például a bikvadratikus tag. A bikvadratikus tag eredete többféle lehet: például magnetoelasztikus kölcsönhatás esetében a rácstorzulások kiintegrálása vezethet egy effektív bikvadratikus taghoz. Hasonlóképpen, ha kvantumspin-modell rendeződését szeretnénk leírni klasszikus spinekkel, a kvantumfluktuációk hatását szintén egy bikvadratikus taggal tudjuk figyelembe venni. A bikvadratikus tag és az erős frusztráció összjátéka

felelős például a Cr-spinellekben megfigyelt hatalmas feles mágnesezettségi platóért [Ueda2005]. Analitikus és numerikus számolásokkal vizsgáltuk a bikvadratikus kölcsönhatás jelenlétében a hőmérséklet és mágneses tér függvényében a kialakuló fázisokat. A szokásos hosszú távú spinrend helyett úgynevezett nematikus fázisokat találtunk: a spinek egy a mágneses tér irányával párhuzamos síkot választanak ki, de a síkon belül az irányuk már nem rendezett. A spin-spin korrelációs függvény algebrailag lecseng, és csak a spinoperátorokban négyzetes kvadrupólus-operátorok korrelációs függvénye mutat hosszú távú rendet. Érdekesésképpen megmutattuk, hogy mágnesezettségi plató spinrendeződés nélkül is lehetséges. [Shannon2010]



5.ábra Klasszikus Heisenberg model fázisdiagramja piroklór rácson véges bivadratikus kölcsönhatás mellett (A h mágneses teret és a T hőmérsékletet a Heisenberg kicserélődés egységeiben mértük, a bikvadratikus tag erőssége 0.1).

Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatás spin létrákban,

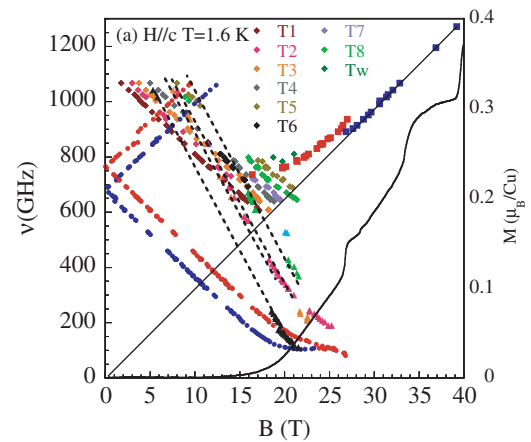
A spinlétrák az erősen korrelált rendszerek egyik leginkább tanulmányozott szereplői voltak az elmúlt 15 évben. Számos kísérleti megvalósításuk ismert átmenetifém-oxidokban és organometallikus anyagokban. A feles spinű létrákban energiárés választja el az alapállapotot a gerjesztésektől (*spin gap*), Mágneses térben a gap becsukódik: az energiaspektrum folytonossá válik (úgynevezett Luttinger-folyadék alakul ki); átlós kicserélődéssel frusztrálva pedig mágnesezettségi platót mutatnak a teljes mágnesezettség felénél. A fenti állítások tisztán SU(2)-szimmetrikus Heisenberg-kicserélődések esetén érvényesek. Valódi rendszerekben azonban gyakori az anizotróp kölcsönhatás, mint például a Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatás (DM). Kutatásunkban megvizsgáltuk, hogy a DM-kölcsönhatás miképpen módosítja a feles spinű létrák fázisdiagramját mágneses térben. Variációs, egzakt diagonalizációs és sűrűségmátrix-módszerek alkalmazásával megmutattuk, hogy nulla hőmérsékleten tetszőlegesen kicsi Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatás energiárést hoz létre a Luttinger-folyadék fázisban, és attól függően, hogy a Heisenberg-kicserélődések frusztráltak vagy nem, kétszeresen (Z₂-féle Ising fázis) illetve egyszeresen, elfajult alapállapot alakul ki. [Penc2007]

Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatás molekuláris mágnesekben

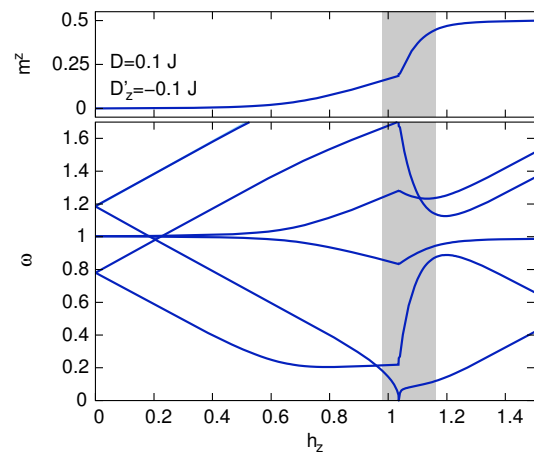
A mágneses molekuláris gyűrűk lehetővé teszik kvantumeffektusok tanulmányozását kicsi véges méretű rendszerekben. A molekulák belsejében mágneses ionok gyűrűt formálnak, a molekula külseje pedig védőburokként elszigeteli a mágneses gyűrűt a szomszédos molekuláktól. Kutatásaink során a [Waldmann2006]-ben közölt kísérletre kerestünk magyarázatot: CsFe₈-ban megfigyelték, hogy a mágneses térben forgatónyomaték lép fel az energianívók közötti átmenetnél. A forgatónyomaték jelenléte anizotróp kölcsönhatás megjelenésére utal. Magnetoelasztikus csatolást feltételezve megmutattuk, hogy a energianívók kereszteződésénél a molekula eltorzul (Jahn-Teller-effektus), ezáltal Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatást indukál, és ez okozhatja a megfigyelt forgatónyomatékokat. [Lante2009]

Dzsalosinszkij-Moriya-kölcsönhatás $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ -ban

A $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ esetében az anyag neutronszórással megfigyelt spingerjesztések diszperzióját és mágneses térben felvett ESR spektrumát próbáljuk megérteni. A $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ egy kvázikétdimenziós Mott-szigetelő, amelyben a feles spinű rézionok dimereket alkotnak, és a dimeren belüli kicserélődés a meghatározó. Allap állapotban a dimereken spinszinglett kötések alakulnak ki, véges spin-energiaréssel. Mágneses tér hatására a spin-gap bezárul, és mágneszettségi platók sorozata figyelhető meg. A neutron- és ESR-spektrumban észlelt vonalfelhasadások arra engedtek következtetni, hogy jelentős a DM-kölcsönhatás erőssége az Cu spinek között. A DM-kölcsönhatás pontos szerepének kiderítéséhez egyrészt meghatároztuk az anyagot leíró, DM-kölcsönhatásokkal kiterjesztett Heisenberg-modell fázisdiagramját, valamint a spingerjesztések spektrumát egy általánostott Holstein-Primakoff-transzformáció segítségével, amelyben a bozonok a lehetséges spindimer állapotokat írják le. Mágneses tér hiányában azt találtuk, hogy az elfajult tripllett gerjesztéseket a DM-kölcsönhatás három gerjesztésre hasítja fel; a felhasadások hullámszámtól való függése jól egyezik a neutronszorási eredményekkel. Hasonlóan jó egyezést kaptunk az ESR-spektrummal is, amint az a mellékelt ábrákon látszik. [J. Romhányi, K. Totsuka, K. Penc, előkészületben]



6. ábra A $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ ESR-spektruma [Nojiri 2003]



7. ábra A DM kölcsönhatással kiterjesztett Heisenberg-modell gerjesztési spektruma.

Irodalom

- [Bokor2007] M. Bokor, P. Matus, K. Tompa, B. Sieklucka and R. Podgajny: *NMR on the bilayered molecular magnet $\{(tetrenH_5)_{0.8}Cu^{II}_4[WV(CN)_8]_4 \cdot 7.2H_2O\}_n$* , 13th Czech and Slovak Conference on Magnetism CSMAG'07, Kassa, Szlovákia (2007)
- [Bokor2008] M. Bokor, K. Tompa, L.F. Kiss, M. Zentková, A. Zentko, M. Mihalik, S. Mat'áš, Z. Mitróová: *1H NMR on $(Ni_xMn_{1-x})_3[Cr(CN)_6]_2 \cdot nH_2O$* , Acta Physica Polonica A **113**, 485 (2008)
- [Bokor2008] M. Bokor, P. Matus, P. Bánki, G. Kriza, K. Tompa, É. Kováts, S. Pekker, G. Bényei, and I. Jalsovszky: *1H NMR spectrum and spin-lattice relaxation in $C_{60}C_8H_8$* , Phys. Status Solidi B **245**, 2010 (2008).

- [Castelnovo2008] C. Castelnovo et al., Nature (London) **451**, 42 (2008).
- [Coronado 2000] E. Coronado, J. Galan-Mascaros, C. Gomez-Garcia, V. Laukhin, Nature (London) **408**, 447 (2000).
- [Fazekas2007a] P. Fazekas, N. Barisic, I. Kézsmárki, L. Demko, H. Berger, L. Forró, G. Mihály: *Magnetic-field-induced transition in BaVS₃*, Physical Review B **75**, 153103 (2007).
- [Fazekas2007b] P. Fazekas, K. Penc, K. Radnóczy, N. Barišic, H. Berger, L. Forró, S. Mitrović, A. Gauzzi, L. Demkó, I. Kézsmárki, G. Mihály: *The electronic structure and the phases of BaVS₃*, J. Magn. Magn. Mater. **310**, 928 (2007)
- [Harris2007] M. J. Harris, S. T. Bramwell, D. F. McMorrow, T. Zeiske and K. W. Godfrey, Phys. Rev. Lett. **79**, 2554 (1997).
- [Kováč2006] J. Kováč, M. Zentková, M. Bokor, M. Mihalik, V. Kavečanský, Z. Mitróová, A. Zentko, A. Pekker, K. Kamarás: *Magnetic properties and 1H NMR spectroscopy of TM₂²⁺[WIV(CN)₈]_nH₂O*, Physica Status Solidi C: Conferences **3**, 130 (2006)
- [Lante2009] V. Lante, I. Rousochatzakis, K. Penc, O. Waldmann, F. Mila: *Field-induced magnetoelastic instabilities at level crossings in antiferromagnetic molecular wheels*, Phys. Rev. B **79**, 180412(R) (2009)
- [Läuchli2006] A. Läuchli, F. Mila, K. Penc: *Quadrupolar Phases of the S=1 Bilinear–Biquadratic Heisenberg Model on the Triangular Lattice*, Phys. Rev. Lett. **97**, 087205 (2006).]
- [Matus2009] P. Matus, M. Bokor, G. Kriza, É. Kováts, S. Pekker, A. Domján, G. Durkó, and I. Jalsovszky: *¹³C NMR investigation of fullerene-cubane C₆₀:C₈H₈ cocrystals*, Phys. Status Solidi B **246**, 2764 (2009).
- [Nakatsuji2005] S. Nakatsuji et al., Science **309**, 1697 (2005).
- [Nojiri2003] H. Nojiri, H. Kageyama, Y. Uead, and M. Motokawa, J. Phys. Soc. Japan **72**, 3243 (2003).
- [Ohkoshi1997] S. Ohkoshi, O. Sato, T. Iyoda, A. Fujishima, K. Hashimoto. Inorg. Chem. **36**, 268 (1997).
- [Pake1948] G.E. Pake. J. Chem. Phys. **16**, 327 (1948).
- [Pekker2005] S. Pekker, É. Kováts, G. Oszlányi, G. Bényei, G. Klupp, G. Bortel, I. Jalsovszky, E. Jakab, F. Borondics, K. Kamarás, M. Bokor, G. Kriza, K. Tompa, G. Faigel, Nature Materials **4**, 764 (2005).
- [Penc2007] K. Penc, J.B. Fouet, S. Miyahara, O. Tchernyshyov, F. Mila: *Ising phases of Heisenberg ladders in a magnetic field*, Phys. Rev. Lett. **99**, 117201 (2007).
- [Przychodzen2006] P. Przychodzen, T. Korzeniak, R. Podgajny, B. Sieklucka, Coord. Chem. Rev. **250**, 2234 (2006).
- [Rokhsar1988] D. S. Rokhsar and S. A. Kivelson, Phys. Rev. Lett. **61**, 2376 (1988).
- [Shannon2010] N. Shannon, K. Penc, Y. Motome: *Nematic, vector-multipole, and plateau-liquid states in the classical O(3) pyrochlore antiferromagnet with biquadratic interactions in applied magnetic field*, Phys. Rev. B, közlésre elfogadva

- [Sikora2009] O. Sikora, F. Pollmann, N. Shannon, K. Penc, P. Fulde: *Quantum liquid with deconfined fractional excitations in three dimensions*, Phys. Rev. Lett. **103**, 247001 (2009)
- [Ueda2005] H. Ueda, H. A. Katori, H. Mitamura, T. Goto and H. Takagi, Phys. Rev. Lett. **94**, 047202 (2005).
- [Verdaguer1999] M. Verdaguer, A. Bleuzen, V. Marvaud, J. Vaissermann, M. Seuleiman, C. Desplanches, A. Sculler, C. Train, R. Garde, G. Gelly, C. Lomenech, I. Rosenman, P. Veillet, C. Cartier, F. Villain, Coord. Chem. Rev. **190**, 1023-1047 (1999).
- [Waldmann2006] O. Waldmann, C. Dobe, S. T. Ochsenbein, H. U. Gudel, and I. Sheikin, Phys. Rev. Lett. **96**, 027206 (2006).