

## Szakmai zárójelentés – F61413

### **Korrelált elektronrendszerek fázisdiagramja: spektroszkópiai és transzport vizsgálatok**

#### **A kutatás témaköre**

Erősen kölcsönható elektronrendszerek fázisdiagramjában általában több szomszédos, egymással versengő, szimmetriasértő alapállapotot figyelhetünk meg. A komplexitás – amely a sokféle elektronikus szabadsági fok összefonódásából ered – következménye, hogy a különböző rendparaméterű fázisok karakterisztikus energiája közel azonos és az alapállapot fölött alacsony energiás (tipikusan  $E_0 \approx 1-100$  meV) kollektív gerjesztések vannak. Ennek köszönhetően a külső paraméterek (például mágneses tér, kémiai összetétel, hidrosztatikus nyomás, ...) hangolásával a preferált alapállapot könnyen változtatható.

Korrelált elektronrendszerek fázisdiagramjának feltérképezésénél alapvető módszer a töltéshordozó szám változtatása illetve a kémiai vagy hidrosztatikus nyomás alkalmazása. A kémiai nyomással (melyet az egyes alkotóelemek eltérő ionsugarú, de azonos töltésállapotú atomra való cseréjével valósítunk meg) tipikusan 5-10%-os rácsállandó változást érhetünk el, míg a kísérletileg hozzáférhető hidrosztatikus nyomások esetén ez maximum  $\sim 4\%$ . (A hidrosztatikus nyomás alkalmazásának nagy előnye, hogy folytonosan változtatható, ezáltal a két módszer egymás komplementere.) A „csekély” rácsállandó változás a sáv szélesség drasztikus növekedéséhez vezet. Mivel az alapállapot jellegét a korrelációs energia és a sáv szélesség viszonya határozza meg, így módon számos kölcsönható elektronrendszer esetén fázisátalakulást idézhetünk elő. Rendszerint a rácsállandó csökkentésével a lokalizált, antiferromágneses korrelációkra épülő fázist egy kiterjedtebb elektron állapotokra épülő, ferromágneses vagy mágnesesen rendezetlen (paramágneses) fázis váltja fel.

A szomszédos alapállapotú fázisok jellegétől függően esetenként erős fluktuációs tartomány, ún. kvantum-kritikus tartomány övezi az átalakulást, ahol a rendparaméter fluktuációit kvantum, kollektív effektusok okozzák, nem a hőmérséklet.

Az erős elektron korrelációk gyakran a különböző szabadsági fokok (spin, töltés és pálya) összecsatlódásához, együttes rendeződéséhez vezetnek. Ezen összetett rendeződési formák döntően az elektron állapotok lokalizációján keresztül valósulnak meg. Így, egy mágneses rendet létrehozó fázisátalakulás az anyag elektromos vezetési tulajdonságait is alapvetően befolyásolja és általában fém-szigetelő átalakulással jár együtt. A fém-szigetelő átalakulások mechanizmusa napjainkban is a szilárdtestfizika központi kérdése és számos válfaja ismert: a töltéshordozó koncentráció változtatásával vagy sáv szélességgel hangolt illetve a mágneses térrel vagy termikusan indukált fém-szigetelő átalakulások.

Az egyes fázisok azonosítása, jellemzése termodinamikai és elektromos transzport tulajdonságok mérésével, illetve spektroszkópiai módszerekkel lehetséges.

*Az alábbiakban a pályázat témájában elért eredményeket foglalom röviden össze a kutatási terv célkitűzéseinek megfelelő felosztásban.*

### 3.1 Töltéshordozó szám változtatásának hatása molibdén oxidok fázisdiagramjára

$R_2Mo_2O_7$  típusú piroklór struktúrájú molibdén oxidok mágneses fázisdiagramját vizsgáltuk a töltéshordozó szám és a sáv szélesség függvényében közel a spinüveg szigetelő-ferromágneses fém fázishatárhoz. Unikális viselkedést tapasztaltunk, ami egyrészt a ferromágneses fémes fázis nagy fajhőjében jelentkezik, másrészt a ferromágneses fázis alatt alacsony hőmérsékleteken újra megjelenő a spinüveg állapotban ("reentrant spin glass transition"). Az előzőert feltehetőleg a félfémes ferromágneses állapotban fellépő pálya-fluktuációk, míg az utóbbiért a ferromágneses és antiferromágneses kölcsönhatások versengése és a frusztrált kristályszerkezet a felelősek. Hasonló okokból a fém-szigetelő fázishatár zérus hőmérsékletre korlátozódik [8,11].

$Nd_2Mo_2O_7$  ferromágneses állapotában nagy anomális Hall és Nernst effektust tapasztaltunk, amit a nem-kollineáris spin rendeződéssel együtt járó vektor spin kiralitással magyaráztunk [4].

### 3.2 Fázisdiagram, kritikus viselkedés, anomális fémes állapot CMR mangán oxidokban

A kolosszális mágneses ellenállást mutató rendszerek fizikája még számtalan alapvető, minezidáig megválaszolatlan kérdéssel küzd. Vitatott az antiferromágneses szigetelő és ferromágneses fémes állapot között húzódó elsőrendű fázishatárt övező fluktuációs tartomány, a szerkezeti rendezetlenség és a mikroszkopikus fázisszeparáció szerepe.

A fenti anyagcsaládot jól reprezentáló  $R_{0.55}(Sr,Ca)_{0.45}MnO_3$  manganátok fázisdiagramját vizsgáltuk infravörös spektroszkopiával az effektív sáv szélesség és a hőmérséklet egy kiterjedt tartományában. Megfigyeltük, hogy a töltés- és pályarendezett fázis fluktuációi dominálják a három szomszédos alapállapot (töltés- és pályarendezett szigetelő, spinüveg szigetelő, ferromágneses fém) fölötti paramágneses tartomány kiterjedt régióját magas hőmérsékletekig ( $T \sim 700K$ ). Ezek a fluktuációk határozzák meg az egyenáramú transzportot – alapvető szerepet játszva a kolosszális mágneses ellenállás mechanizmusában – és az optikai vezetőképesség viselkedését az alacsony energiás (infravörös) tartományban [5].

Ugyanezen rendszerek mágneses fázisdiagramját vizsgáltuk hidrosztatikus nyomás alkalmazásával. A nagyfokú strukturális rendezetlenség ellenére a hőmérséklet indukált paramágneses-ferromágneses átalakulás elsőrendű lehet. A sáv szélesség növelésével az átalakulás magas hőmérsékletek felé tolódik, ahol a fázisfluktuációk szerepe csökken. Ennek következtében az átalakulás másodrendűvé válik és a mágneses ellenállás ezzel párhuzamosan csökken [3].

### 3.3 Fém-szigetelő átalakulás optikai vizsgálata új rendszerekben

A  $BaVS_3$  kristályszerkezete erős 1 dimenziós jelleget mutat, melyben a vanádium atomok láncokat formálnak. A vezetési és mágneses tulajdonságokért a vanádium  $3d^1$  elektronja felelős. Az eddigi kutatások világossá tették, hogy az anyag viselkedésében a korrelációs effektusok és a pályadegeneráció komoly szerepet játszanak, de a kísérleti eredményekkel konzisztens mikroszkopikus modell még nem ismert. Az 1 dimenziós szerkezet ellenére kialakuló közel izotrop vezetés eredete önmagában érdekes kérdés.

A vegyület magas hőmérsékleti, fémes tartományában kétféle töltéshordozó vezetőképesség járulékát azonosítottuk: a kvázi 1 dimenziós kiterjedt elektronállapotok mellett jól megfigyelhető lokalizált elektronok izotrop hopping vezetése. Az előbbiek optikai vezetőképessége normális fémekben tapasztalható képest anomálishan nagy effektív tömegre és rövid élettartamra enged következtetni. E két dolog együttesen eredményezi, hogy a fémes és hopping vezetés járuléka azonos nagyságrendű és az anyagban közel izotrop transzport valósul meg. A hőmérséklet csökkentésével a rendszer egy fém-szigetelő átalakuláson megy keresztül. A fázisátalakulás kiváltója alapvetően a kvázi 1 dimenziós elektronrendszer, de a lokalizált elektronok kooperatív szerepet játszanak és közel azonos nagyságú gap nyílik a kétféle elektron töltés-gerjesztési spektrumában [10].

A  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>2</sub> só 2 dimenziós Mott szigetelőként tarják számon az irodalomban. A döntően antiferromágneses kicserélődési kölcsönhatás ellenére hosszútávú mágneses rendet nem tudtak ebben az anyagban kimutatni egészen alacsony hőmérsékletekig (T=30mK) - ami feltehetőleg a szinte tökéletes háromszögárcson kialakuló erős spin frusztráció következménye. A jelenlegi kutatások fényében az alacsony hőmérsékleti fázis spinfolyadék és nem jelenik meg gap a spin gerjesztések spektrumában.

Az alacsony energiás tartományra kiterjesztett optikai méréseim azt mutatják, hogy bár az anyag szigetelő, a töltés-gerjesztési spektrumban sincs éles gap; az állapotsűrűség folytonosan tűnik el a Fermi energiához közeledve. A töltés gap hiányát egy antiferromágneses rendet mutató rokon anyaggal ( $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[(N(CN))<sub>2</sub>]Cl) való összevetés alapján magyarázzuk.  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu[(N(CN))<sub>2</sub>]Cl a fém-szigetelő átalakulás közvetlen környezetében helyezkedik el. Kristályszerkezetére a torzult háromszögárcs jellemző, melynek következtében az antiferromágneses kölcsönhatás frusztrációja gyengébb és T=30K-en hosszútávú antiferromágneses rendeződést figyelhetünk meg. Tekintve, hogy a töltés korrelációs effektusok a  $\kappa$ -(ET)<sub>2</sub>Cu<sub>2</sub>(CN)<sub>2</sub>-ban erősebbek, nagyobb töltés gapet várnánk, melynek hiányát az erős spin-fluktuációknak tulajdonítjuk [9].

A korábban általam kifejlesztett infravörös tartományban optikai spektroszkópiára használható nyomáscella segítségével feltérképeztük a 1T-TaS<sub>2</sub> kvázi-2-dimenziós töltéssűrűség-hullám anyag optikai fázisdiagramját. Megmutattuk, hogy ezen egyedi eszközzel közvetlenül nyomon lehet követni a nyomás által előidézett elektronszerkezeti változásokat. A kísérleti eredmények publikációja lehetőséget adott a saját fejlesztésű optikai nyomáscella irodalmi ismertetésére is [2,7].

### Új mágneses anyagok fázisdiagramja

Epitaxiális növesztéssel előállított Sr<sub>1-x</sub>Ca<sub>x</sub>RuO<sub>3</sub> vékonyréteg minta mágneses tulajdonságait vizsgáltuk. A csúcstechnológiával előállított filmben a Ca/Sr arány laterális irányban folytonosan változott. Optikai úton történő, lokális mágneszettség mérésével feltérképeztük az anyag fázisdiagramját és meghatároztuk a kritikus Ca/Sr arányt, ahol a kvantum fázisátalakulás bekövetkezik [1].

III-V típusú híg mágneses félvezetők mágneszettségének nagy terű viselkedését először határoztuk meg [6].

*A pályázat keretében elért eredmények az alábbi 11 tudományos közleményben (kumulatív impakt faktor: 51.37) jelentek meg:*

[1] N. Hosaka, H. Yamada, Y. Shimada, S. Bordács, **I. Kézsmárki**, J. Fujioka, M. Kawasaki, and Y. Tokura

*Magneto-optical characterization on the ferromagnetic-paramagnetic transitions in the composition-spread epitaxial film of  $Sr_{1-x}Ca_xRuO_3$*   
Appl. Phys. Express 1, 113001 (2008) IF: n/a

[2] **I. Kézsmárki**, and S. Bordács

*An alternative of spectroscopic ellipsometry: The double-reference method*  
Appl. Phys. Lett. 92, 131104 (2008) IF: 3.98

[3] L. Demko, **I. Kézsmárki**, G. Mihály, N. Takeshita, Y. Tomioka, Y. Tokura

*Multicritical end-point of the first-order ferromagnetic transition in colossal magnetoresistive manganites*  
Phys. Rev. Lett. 101, 037206 (2008) IF: 6.94

[4] N. Hanasaki, K. Sano, Y. Onose, T. Ohtsuka, S. Iguchi, **I. Kézsmárki**,

S. Miyasaka, S. Onoda, N. Nagaosa, and Y. Tokura  
*Anomalous Nernst effects in pyrochlore molybdates with spin chirality*  
Phys. Rev. Lett. 100, 106601 (2008) IF: 6.94

[5] **I. Kézsmárki**, Y. Tomioka, S. Miyasaka, L. Demkó, Y. Okimoto, and Y. Tokura

*Optical phase diagram of perovskite-type colossal magnetoresistance manganites with near-half doping*  
Phys. Rev. B 77, 75117 (2008) IF: 3.17

[6] G. Mihály, M. Csontos, S. Bordács, **I. Kézsmárki**, T. Wojtowicz, B. Jankó, and J.K. Furdyna

*Anomalous Hall effect in  $(In,Mn)Sb$  dilute magnetic semiconductor*  
Phys. Rev. Lett. 100, 10721 (2008) IF: 6.94

[7] **I. Kézsmárki**, R. Gaal, C.C. Homes, B. Sáros, H. Berger, S. Bordács, G. Mihály, and L. Forró  
*High-pressure infrared spectroscopy: Tuning the low-energy excitations in correlated electron systems*

Phys. Rev. B 76, 205114 (2007) IF: 3.17

[8] N. Hanasaki, K. Watanabe, T. Ohtsuka, **I. Kézsmárki**, S. Iguchi, S. Miyasaka, and Y. Tokura

*Nature of the transition between a ferromagnetic metal and a spin-glass insulator in pyrochlore molybdates*  
Phys. Rev. Lett. 99, 86401 (2007) IF: 6.94

[9] **I. Kézsmárki**, Y. Shimizu, G. Mihály, Y. Tokura, K. Kanoda, and G. Saito

*Depressed charge gap in the triangular-lattice Mott insulator  $k-(ET)_2Cu_2(CN)_3$*   
Phys. Rev. B, Rapid Communications 74, 201101 (2006) IF: 3.11

[10] **I. Kézsmárki**, G. Mihály, R. Gaál, N. Barisic, A. Akrap, H. Berger, L. Forró, C. Homes, and L. Mihály

*Separation of orbital contributions to the optical conductivity of  $BaVS_3$*   
Phys. Rev. Lett. 96, 186402 (2006) IF: 7.07

[11] **I. Kézsmárki**, N. Hanasaki, K. Watanabe, S. Iguchi, Y. Taguchi, S. Miyasaka, Y. Tokura

*Variation of the charge dynamics in bandwidth- and filling-controlled metal-insulator transitions of pyrochlore-type molybdates*  
Phys. Rev. B 73, 125122 (2006) IF: 3.11