

Dispersion von Bethe-Strings

Kürzlich ist es erstmals gelungen, die Dispersionsrelation von String-Zuständen in einem eindimensionalen Magneten zu bestimmen.

Alois Loidl

Erste Versuche, magnetische Phänomene im Festkörper quantenmechanisch zu erklären, scheiterten vor fast hundert Jahren an der Komplexität dieser wechselwirkenden Vielteilchensysteme. Als mögliche modellhafte Vereinfachungen boten sich sowohl die Reduktion der Dimension als auch die Lokalisierung der Spins auf feste Gitterplätze an. Daraus resultiert das Konzept eindimensionaler Spinketten mit Spin $S = 1/2$, den paradigmatischen Beispielen von Quantenmagneten.

Ernst Ising untersuchte 1925 [1] nach Vorarbeiten seines akademischen Lehrers Wilhelm Lenz [2] eine Spinkette, bei der die Spins feste Gitterplätze einnehmen und nur in zwei entgegengesetzte Richtungen (Ising-Spins) orientiert sein können. Eindimensionale Heisenberg-Spinketten dehnten die Theorie auf Spinkomponenten aus, die in alle Raumrichtungen zeigen können. Hans Bethe baute 1931 in seiner berühmten Arbeit „Zur Theorie der Metalle“ [3] auf Arbeiten von Heisenberg, Slater und Bloch auf. Darin beschreibt er mit einer Theorie, die heute als Bethe-Ansatz bekannt ist und in unterschiedlichen Feldern große Bedeutung erlangt hat, den exakten quantenmechanischen Grund-

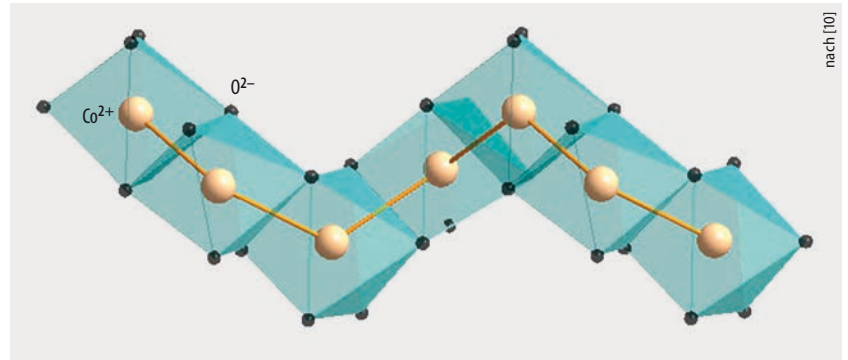


Abb. 1 In $\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ sind die Co^{2+} -Ionen (gelb) mit dem effektiven Spin $1/2$ oktaedrisch von Sauerstoff-Ionen (schwarz) umgeben und bilden eine zickzackähnliche Kettenstruktur.

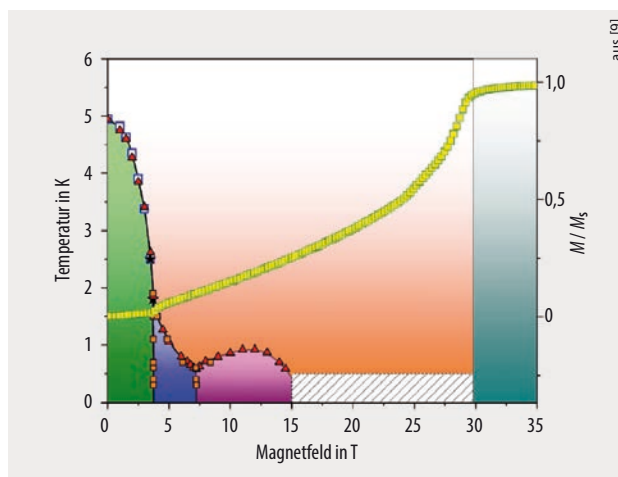
zustand und das niederenergetische Anregungsspektrum eines eindimensionalen Heisenberg-Magneten. Bethe wollte die Methode auf dreidimensionale Gitter ausdehnen, konnte diese Arbeiten aufgrund seiner Emigration aber nicht mehr in Angriff nehmen.

Die eindimensionale Heisenberg-Spinkette von Spin- $1/2$ -Teilchen auf festen Gitterplätzen mit periodischen Randbedingungen und isotroper Nächster-Nachbar-Wechselwirkung lässt sich in einem externen magnetischen Feld $\mu_0 B$ exakt mit dem Bethe-Ansatz analysieren. Für $B = 0$ ergibt sich der antiferromagnetische Grundzustand. Für große Magnetfelder sind alle Spins ferromagnetisch ausgerich-

tet; angeregte Zustände sind die elementaren Spinwellen-Anregungen, die Magnonen. Mit steigendem Magnetfeld treten vor Erreichen dieser Spin-polarisierten Phase neuartige String-Zustände auf: Zwei Quasiteilchen bilden stark gebundene Zustände – Bethe-Strings der Länge $n = 2$. In den 1970er-Jahren kamen Erweiterungen für anisotrope Heisenberg-Modelle und Verallgemeinerungen für Bethe-Strings der Länge n hinzu [4, 5]. Psinonen und Antipsinonen, zusätzliche niederenergetische Vielteilchen-Anregungen, sind für die niederenergetische Spindynamik in Quantenmagneten wichtig [6].

Nach der Vorhersage von String-Zuständen im Festkörper waren die Anregungen eindimensionaler Quantenmagneten lange ein ausschließlich theoretisches Unterfangen. Erst ab den 1970er-Jahren war es möglich, Kristalle mit quasi-eindimensionaler Spinstruktur zu synthetisieren. Heute gelingt die Synthese hochreiner einkristalliner Magnete mit definierter Dimensionalität, Austauschwechselwirkung und Anisotropie. Die Materialmengen ermöglichen es, die theoretischen Vorhersagen experimentell zu überprüfen, und lassen auch inelastische Neutronenstreuung realistisch erscheinen. Strontiumkobaltvanadat ($\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$, **Abb. 1**) entspricht fast

Abb. 2 Im Phasendiagramm von $\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ für ein Magnetfeld parallel zur kristallographischen c -Achse lassen sich die Phasengrenzen aus spezifischer Wärme, magnetokalorischen und Magnetisierungs-Messungen bestimmen. Die Magnetisierungskurve (gelb) zeigt bei 1,5 K die relative Magnetisierung M/M_s . Magnetische Phasen sind der Néel-geordnete antiferromagnetische Grundzustand (grün), der quantenkritische Bereich (orange) und der feldpolarisierte Ferromagnet (türkis). Außerdem gibt es komplexe Spin-zustände für $T < 1$ K (blau, lila).



ideal einer eindimensionalen anisotropen Heisenberg-Spinkette [7]. Die tetragonale Kristallstruktur besteht aus schraubenartigen Ketten von CoO_6 -Oktaedern, die parallel zur kristallographischen c -Achse laufen und durch VO_4 -Tetraeder getrennt sind. Die Kobalt-Atome befinden sich im Zentrum der Oktaeder und tragen effektive Spins $1/2$. Die Sauerstoff-Ionen vermitteln die magnetische Wechselwirkung zwischen den Spins entlang der Ketten.

Aufgrund endlicher Zwischenkettenwechselwirkung findet sich im Phasendiagramm von $\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ (Abb. 2) bei kleinen Magnetfeldern eine dreidimensionale antiferromagnetische Spinanordnung für $T < 5$ K. Longitudinale Magnetfelder unterdrücken diese dreidimensionale Ordnung rasch: Für Temperaturen über einem Kelvin liegt ein ausgedehnter quantenkritischer Bereich bis 30 T vor, in dem sich der feldinduzierte ferromagnetische Zustand einstellt. In der Bethe-Theorie entspricht der spinpolarisierte Ferromagnet dem Vakuumzustand, in dem wechselwirkende Magnonen das Anregungsspektrum dominieren. Bei Temperaturen unterhalb von einem Kelvin existieren komplexe Spin-Grundzustände, die das Anregungsspektrum nicht wesentlich beeinflussen. Im quantenkritischen Bereich bei endlichen Magnetfeldern und tiefen Temperaturen sollten Bethe-Strings existieren. Diese Anregungszustände besitzen abhängig vom externen Magnetfeld ein charakteristisches Energie-Impuls-Spektrum, das mit optischen Methoden oder inelastischer Neutronenstreuung nachweisbar ist.

Kürzlich belegten Zhe Wang und sein Team mit Terahertz-Spektroskopie erstmals die Existenz von Bethe-Strings [8]. Im quantenkritischen Bereich des Phasendiagramms ließ sich die Feldabhängigkeit von Zwei- und Drei-String-Anregungen identifizieren. Optische Spektroskopie bestimmt Anregungen beim Impulsübertrag $Q = 0$, also im Zentrum der Brillouin-Zone. Um die Natur und die mikroskopischen Wechselwirkungen der Anregungen eindeutig zu bestimmen, ist es notwendig, die Dispersionsbeziehung – die Abhän-

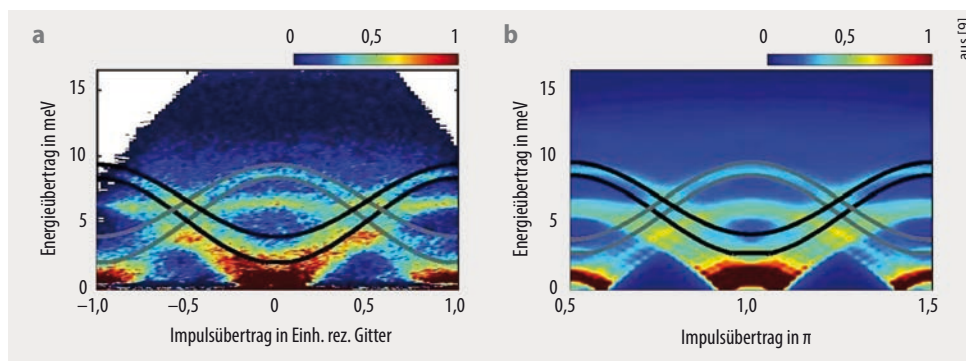


Abb. 3 Die Dispersionsrelation von Bethe-Strings zeigt sich, wenn der Energieübertrag als Funktion des Impulsübertrags aufgetragen wird. Die gemessene Intensität der inelastischen Neutronenstreuung (a) stimmt gut mit der theoretischen Vorhersage (b) für die String-Dispersion gemäß dem Bethe-Ansatz bei entsprechendem Magnetfeld überein. Die theoretischen Dispersionsbereiche der Zwei-String-Anregungen (schwarz, grau) entsprechen einer effektiven Zonenfaltung aufgrund der Kristallstruktur.

gigkeit der Eigenfrequenzen vom Impulsübertrag – zu messen. Das ist mit inelastischer Neutronenstreuung möglich, wie Experimente von Anup Kumar Bera und Mitarbeitenden an mehreren Spektrometern verschiedener Hochleistungs-Neutronenquellen jetzt eindrucksvoll belegen [9].

Die Intensität der inelastischen Neutronenstreuung hängt vom Energie- und Impulsübertrag ab (Abb. 3a). Bei einem externen Magnetfeld von 6 T und einer sehr tiefen Temperatur von 80 mK sollten für Energien kleiner 10 meV Psinon-ähnliche Anregungen und Bethe-Strings der Ordnung $n = 2$ auftreten [8, 10]. Die unterschiedlichen Dispersionszweige lassen sich nur mithilfe theoretischer Modelle eindeutig zuordnen (Abb. 3b). Die Komplexität der Spektren erklärt sich durch eine Faltung der Brillouin-Zone aufgrund der kristallographischen Anordnung der Kobaltoktaeder in der Einheitszelle. Das führt zu einer Spiegelung der Dispersionszweige bei einer halben reziproken Gitterlänge. Die theoretisch berechnete Dispersionsrelation der Bethe-Strings grenzt den Bereich der $n = 2$ -Kontinua ein. Die weiteren Intensitäten stammen von Psinon- und Antipsinon-Anregungen, die sehr gut bei $Q = 0$ und niedrigen Energien sowie bei etwa 6 meV sichtbar sind. Experiment und Theorie stimmen exzellent überein [8, 9]. Bethe-Strings der Länge $n = 3$, die mittels Terahertz-Spektroskopie noch sehr gut identifizierbar waren [7], zeigen sich in der Neutronenstreuung als sehr schwache Anre-

gungen zwischen 10 und 15 meV nur bei geänderter Farbkodierung [9].

Damit hat die Terahertz-Spektroskopie die Existenz und die Neutronenstreuung die exakte Dispersionsrelation von String-Zuständen in $\text{SrCo}_2\text{V}_2\text{O}_8$ in sehr guter Übereinstimmung mit der Theorie nachgewiesen. Diese Ergebnisse dokumentieren mit Nachdruck die herausragenden Fortschritte in Materialsynthese, optischer Spektroskopie bei hohen Magnetfeldern und inelastischer Neutronenspektroskopie bei tiefen Temperaturen und hohen Magnetfeldern, aber auch in der Modellentwicklung der Spindynamik von Quantenmagneten.

- [1] E. Ising, Z. Physik **31**, 253 (1925)
- [2] W. Lenz, Physik. Zeitschr. **21**, 613 (1920)
- [3] H. Bethe, Z. Physik **71**, 205 (1931)
- [4] M. Gaudin, Phys. Rev. Lett. **26**, 1301 (1971)
- [5] M. Takahashi und M. Suzuki, Prog. Theo. Phys. **48**, 2187 (1972)
- [6] M. Karbach und G. Müller, Phys. Rev. B **62**, 14871 (2000)
- [7] Z. Wang et al., Nature **554**, 219 (2018)
- [8] W. Yang et al., Phys. Rev. B **100**, 184406 (2019)
- [9] A. K. Bera et al., Nat. Phys. (2020), DOI: 10.1038/s41567-020-0835-7
- [10] B. Fauseweh und G. S. Uhrig, Physik Journal, Mai 2018, S. 19

Der Autor

Prof. Dr. Alois Loidl, Experimental Physics V, Center for Electronic Correlations and Magnetism, Universität Augsburg, 86135 Augsburg