

DISS. ETH Nr. 18530

# **Spin Ladder Physics**

ABHANDLUNG

zur Erlangung des Titels

DOKTOR DER WISSENSCHAFTEN

der

ETH ZÜRICH

vorgelegt von

BENEDIKT THIELEMANN

Dipl. Phys. ETH, ETH Zürich

geboren am 25.9.1979

von Deutschland

Angenommen auf Antrag von

Prof. Dr. M. Sigrist, Referent

Prof. Dr. J. Mesot, Korreferent

Dr. Ch. Rüegg, Korreferent

2009

## Abstract

Spin ladders are systems of  $n$  Heisenberg spin chains with an exchange parameter  $J_1$  that are transversely connected with an exchange coupling  $J_r$ . The antiferromagnetic two-leg ladders ( $n = 2$ ) with spin  $S = 1/2$  are addressed in this thesis. Due to their one-dimensionality the ground state must not be long-range ordered and for all coupling ratios  $J_r/J_1$  it is a non-magnetic singlet. The gapped triplet excitations can be understood in terms of bound spinons – elementary excitations of the  $S = 1/2$  Heisenberg chain – that become unbound as the triplet gap is closed at a critical field  $H_c$ . The spinons have spin  $S = 1/2$  and hence the excitation spectra above  $H_c$  and below  $H_s$  (magnetic saturation) are continuous as changes in spin angular momentum are always integer in quantum mechanics.

Experimental access to this field-induced spin-ladder physics was very difficult, as so far the only compounds known to implement a spin-ladder Hamiltonian were transition-metal oxides. Consequently, the very high energy scale of the exchange parameters disallowed for complete investigations of the field-induced physics in spin ladders.

However, since the discovery of  $(\text{Hpip})_2\text{CuBr}_4$  – a close to ideal one-dimensional spin-ladder compound – this situation changed dramatically. It features  $S = 1/2$  magnetic moments on the Cu sites which are located in tetrahedra of Bromine. These units assemble the ladders which are separated by the organic spacer molecule Hpip (Piperidinium,  $\text{C}_5\text{H}_{12}\text{N}$ ). Due to the low energy scale with respect to the magnetic fields available in laboratories today, experimental studies of the complete phase diagram in magnetic field and temperature of a two-leg spin ladder became feasible and a recent breakthrough in crystal growth even made detailed inelastic neutron-scattering studies possible.

Applying a variety of complementary techniques to recently grown single crystals of this material, the following results were obtained in this work:

- Characterization of the elementary excitations in the quantum disordered phase (QD) in zero magnetic field and in the ferromagnetically saturated phase (F) above  $H_s$  by means of inelastic neutron scattering. Besides clarifying the nature of the elementary excitations in these phases, the data allowed for the most precise determination of the spin Hamiltonian of  $(\text{Hpip})_2\text{CuBr}_4$ .

- In a series of inelastic neutron–scattering experiments, a spinon continuum between the two quantum critical points  $H_c$  (closing of the triplet gap) and  $H_s$  (magnetic saturation) was observed. The tuning of the excitation spectrum with a magnetic field through all quantum phases of the spin ladder, especially the emergence of a continuous spectrum between  $H_c$  and  $H_s$  from discrete magnon excitations in the QD and F phase, was demonstrated.
- Methods complementary to neutron scattering were applied to characterize the complete phase diagram in temperature and magnetic field. Measurements of the specific heat have proven the existence of a magnetic specific heat that is linear in temperature between  $H_c$  and  $H_s$ , a characteristic signature of the spin–Luttinger liquid state (LL). The cross–over temperatures into this LL phase were mapped out using the magneto–caloric effect (MCE) down to lowest temperatures ( $T > 100$  mK). The absence of a linear field–dependence of the LL crossover close to  $H_c$  and  $H_s$  allows to put an upper limit to the temperature of the universal regime at the critical points.
- Residual interladder couplings were found to induce an ordered phase between the critical points below  $T \approx 100$  mK. Its experimental investigation based on neutron scattering has revealed that the properties of this “classical” phase are strongly influenced by the LL state of the ladder subunits. The order parameter (transverse magnetization), the ordering temperature and the spin structure were determined and a minimal microscopic model for the interladder couplings was proposed. Corrections to the mean–field interaction that account for the effect of quantum fluctuations on the ordering temperature have been calculated.
- The triplet excitations in the quantum disordered phase at finite temperatures were studied by means of inelastic neutron scattering. A dramatic decrease in the momentum–dependent triplet lifetime is found upon heating. The temperature–induced narrowing of the triplet bandwidth is compared to RPA calculations and predictions based on the Troyer–Tsunetsugu–Würtz (TTW) Ansatz. Indications for asymmetric deviations from a purely Lorentzian line shape were found.
- Preliminary studies of the upper triplet modes in the LL phase by inelastic neutron scattering revealed the existence of continua that can be understood in terms of an effective single–hole  $t$ – $J$  model.

## Zusammenfassung

Spinleitern sind Systeme die aus  $n$  Heisenberg Spinketten mit einer Austauschwechselwirkung  $J_1$  bestehen. Diese sind durch einen Austausch  $J_r$  transvers gekoppelt. Gegenstand dieser Arbeit sind die zweibeinigen ( $n = 2$ ) antiferromagnetischen Spinleitern mit Spin  $S = 1/2$ . Aufgrund der Eindimensionalität kann der Grundzustand nicht langreichweitig geordnet sein. Stattdessen findet man für alle Kopplungsverhältnisse  $J_r/J_1$  einen unmagnetischen Singlet Grundzustand. Die elementaren Triplet Anregungen können als gebundene Spinonpaare aufgefasst werden, die oberhalb des kritischen Feldes  $H_c$ , bei dem die Energielücke der Triplet Anregung geschlossen wird, in ungebundene Spinonen zerfallen. Das Anregungsspektrum zwischen  $H_c$  und  $H_s$  (magnetische Saturierung) ist kontinuierlich, da Änderungen der Spinquantenzahl immer ganzzahlig sein müssen und deshalb nur Paare von Spinonen generiert werden können.

Der experimentelle Zugang zu dieser Art von feld-induzierter Physik war bisher nicht einfach, da die entdeckten Spinleitermaterialien aus der Klasse der Übergangsmetalloxide stammen und daher intrinsisch eine hohe Energieskala der Austauschwechselwirkung haben. Aus diesem Grund gab es bis jetzt keine umfassenden Studien der feld-induzierten Physik in Spinleitern.

Mit der Entdeckung von  $(\text{Hpip})_2\text{CuBr}_4$  – einem Material das beinahe perfekt den Hamiltonian von Spinleitern realisiert – hat sich die Situation dramatisch verändert. In dieser Verbindung befinden sich die lokalisierten  $S = 1/2$  Momente in Brom-Tetraedern. Diese Einheiten bilden die Leitern welche durch organische Hpip-Moleküle (Piperidinium,  $\text{C}_5\text{H}_{12}\text{N}$ ) isoliert werden. Aufgrund der niedrigen Energieskala der magnetischen Wechselwirkungen ist es möglich das komplette Phasendiagramm in Magnetfeld und Temperatur für ein zweibeiniges Spinleitersystem experimentell zu erforschen. Ein Durchbruch in der Einkristallzucht machte sogar inelastische Neutronenstreuungsexperimente möglich.

Eine breite Palette an komplementären experimentellen Methoden wurde verwendet, um Einkristalle dieses Materials zu studieren. Die Resultate sind im folgenden aufgeführt:

- Charakterisierung der elementaren Anregungen in der durch Quantenfluktuationen dimerisierten Phase (QD) in Absenz eines Magnetfelds und in der ferromagnetisch saturierten Phase (F) oberhalb von  $H_s$  mit Hilfe von inelastischer Neutronenstreuung. Diese Daten erlauben die präziseste Messung des Spin Hamiltonians von  $(\text{Hpip})_2\text{CuBr}_4$  und klären darüber hinaus die Eigenschaften der Anregungen in den vorher genannten Phasen.

- Die Existenz eines Spinonkontinuums zwischen den beiden quantenkritischen Punkten  $H_c$  und  $H_s$  wurde in einer Reihe von inelastischen Neutronenstreuungsexperimenten nachgewiesen. Die Kontrollierbarkeit des Anregungsspektrums einer Spinleiter durch ein Magnetfeld, insbesondere das Erscheinen eines kontinuierlichen Spektrums zwischen  $H_c$  und  $H_s$ , sowie die Existenz von scharfen Anregungen in der QD und F Phase wurde demonstriert.
- Zur Neutronenstreuung komplementäre Methoden wurden verwendet, um das gesamte Phasendiagramm in Temperatur und Magnetfeld zu charakterisieren. In Messungen der spezifischen Wärme wurde ein magnetischer Anteil mit linearer Temperaturabhängigkeit entdeckt zwischen  $H_c$  und  $H_s$ . Dies ist typisch für eine Lüttinger Spinflüssigkeit (LL). Die Übergangstemperatur wurde mit Hilfe des magnetokalorischen Effekts bis hinunter zu Temperaturen von 100 mK bestimmt. Die Feldabhängigkeit dieser Übergangstemperatur in Nähe der kritischen Punkte war unerwarteterweise nicht linear. Daraus konnte eine Obergrenze für das universelle quantenkritische Regime in den Umgebungen dieser Punkte abgeleitet werden.
- Es wurde gezeigt, dass residuelle Wechselwirkungen zwischen den Leitern unterhalb von Temperaturen von ungefähr 100 mK eine feldinduzierte langreichweitige Ordnung zwischen  $H_c$  und  $H_s$  erzeugen. Die experimentelle Untersuchung mit Neutronenstreuung hat enthüllt, dass diese “klassische” Phase immernoch stark durch den Zustand der Lüttinger Spinflüssigkeit auf den einzelnen Leitern bestimmt wird. Der Ordnungsparameter (die transverse Magnetisierung), die Ordnungstemperatur und die Spinstruktur wurden bestimmt und ein minimales Modell für die Wechselwirkungen zwischen den Leitern konnte aufgestellt werden. Korrekturen der Mean-field Wechselwirkung, die den Effekt von Quantenfluktuationen berücksichtigen, wurden berechnet.
- Mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung in der QD Phase wurden die Triplet Anregungen gemessen. Eine dramatische Abnahme der impulsabhängigen Lebensdauer der Triplets wurde bei Temperaturerhöhung beobachtet. Die temperaturinduzierte Abnahme der Tripletbandbreite wurde verglichen mit RPA Rechnungen und mit Vorhersagen, die auf dem Troyer–Tsunetsugu–Würtz Ansatz basieren. Es wurden vermehrte Indizien gefunden, die für asymmetrische Linienformen sprechen, also über das Paradigma der Lorentz-Form hinausgehen.
- Erste Untersuchungen der oberen Triplet Moden in der LL Phase mit Hilfe inelastischer Neutronenstreuung haben gezeigt, dass auch diese Moden Kontinua ausbilden, die mit Hilfe der Spektralfunktion des Einloch Sektors eines effektiven  $t$ - $J$  Modell verstanden werden können.