

DISS. ETH NO. 22426

Physics of a strong-leg quantum spin ladder

A thesis submitted to attain the degree of
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZÜRICH
(Dr. sc. ETH Zürich)

presented by

David Jan Schmidiger

MSc ETH Interdisciplinary Sciences, ETH Zürich
born on September 8th, 1988
citizen of Escholzmatt LU, Switzerland

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. A. Zheludev, examiner

Dr. C. Berthier, co-examiner

Prof. Dr. T. Giamarchi, co-examiner

2014

Abstract

In the last decades, low-dimensional electronic and magnetic systems, and their extraordinary quantum-mechanical properties, have attracted a lot of experimental and theoretical interest.

This thesis is dedicated to the experimental study of the organometallic material $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N})_2\text{CuBr}_4$ (DIMPY), discovered in 2007. Due to its crystal structure, the copper ions and their electronic spins build a one-dimensional coupling network, a so-called antiferromagnetic Heisenberg spin ladder in the strong-leg coupling regime. The clean one-dimensionality of this system and the comparatively small interaction strength between copper spins enable to strongly influence the magnetic properties at low temperatures or applied magnetic fields and to drive it through a series of quantum phase transitions. In fact, it is possible to access the full temperature-field phase diagram of this material with conventionally available low temperatures in the millikelvin-range and magnetic fields up to a few dozen of Tesla.

In this thesis, the static and dynamic magnetic properties of DIMPY were studied with a series of inelastic neutron scattering experiments and magneto-thermodynamic measurements, throughout its phase diagram. The following topics were covered:

- 1.) Large and deuterated single crystals with masses up to several grams were grown and characterized in our laboratories at ETH Zürich.
- 2.) Inelastic neutron scattering experiments were performed at zero field and at lowest temperatures, by applying both the triple-axis and time-of-flight neutron scattering techniques. The thereby obtained excitation spectrum was studied in combination with numerical Density Matrix Renormalization Group (DMRG) calculations, enabling for example to determine the exchange constants of the 1D Hamiltonian.
- 3.) The field-dependence of the dynamical structure factor was measured with inelastic neutron scattering experiments. At a critical magnetic field of $\mu_0 H \simeq 2.6$ T, the quantum phase transition from the low-field gapped spin liquid to a gapless Tomonaga-Luttinger spin liquid (TLSL) state was observed, along with the associated spectral changes. In particular, the transformation of the sharp and gapped excitation modes at low fields into intercalated, highly structured, gapped and gapless continua above the critical field was studied. We were able to confirm so far experimentally untested quantum field theoretical predictions concerning several spectral features. Furthermore, numerical DMRG calculations enabled to reproduce the measured spectra, in quantitative agreement. In addition to a recent study of the opposite and complementary *strong-rung* spin ladder material BPCB, addressing the lowest-energy continuum only, we reported the first observation of the *complete* spectrum in the field-induced TLSL regime of a *strong-leg* spin ladder.
- 4.) The finite-temperature properties at zero field were studied using a series of inelastic neutron scattering experiments. The magnon excitation was observed to be subject to a

thermal renormalization of its gap energy or lifetime and to acquire an intrinsic linewidth at higher temperatures. The obtained results were compared to theoretical predictions and a recent thorough combined study of various gapped quantum magnets. The universal thermal effects observed in the latter could be confirmed for the material DIMPY as well.

5.) In order to experimentally test universal scaling predictions due to the quantum criticality of the field-induced TLSL state, inelastic neutron scattering experiments were performed with the time-of-flight technique. The temperature- and field-dependent local dynamical structure factor $\mathcal{S}(\omega)$ was observed to collapse onto a single curve, if shown in scaled variables, thus confirming quantum criticality. In addition, it could be shown that the scaling curve itself is well-described by the quantum field theoretical prediction and the thereby obtained TLSL parameters were found to agree with numerical calculations. Consequently, the universal scaling predictions of the field-induced TLSL state of a gapped quantum magnet could be experimentally confirmed.

6.) Comprehensive magneto-thermodynamic measurements of the magnetic moment and specific heat were performed throughout the (H, T) -phase diagram. The low-temperature properties of these quantities were found to change fundamentally by crossing the quantum critical points at $\mu_0 H \simeq 2.6$ T and 29 T, separating the spin liquid, TLSL and fully polarized state from each other. The low-temperature asymptotics of these quantities enabled to determine the key parameters of the respective regimes: The magnon gap and relativistic velocity c ($H < H_{c1}$) as well as the field-dependence of the Fermi velocity u and the TLSL exponent K ($H > H_{c1}$), respectively. In the specific heat measurements performed above the critical field, lambda-shaped anomalies were observed. The latter indicate the thermal phase transition to an antiferromagnetic ordered state, also referred to as a Bose-Einstein condensate (BEC) of magnons.

In conclusion, the static and dynamic properties of the strong-leg Heisenberg spin ladder material $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N})_2\text{CuBr}_4$ were studied with magneto-thermodynamic and inelastic neutron scattering experiments, throughout the (H, T) -phase diagram. The large precision with which for example the spectral features could be observed and the quantitative agreement between experiment, numerics and analytic theory is only enabled by the following aspects: 1. The discovery and synthesis of novel materials with excellent one-dimensionality and well-suited energy scales, 2. the recent advances in neutron instrumentation at large-scale facilities (in particular the new time-of-flight spectrometers), 3. the novel numerical methods and codes for one-dimensional quantum system and 4. the vast number of available theoretical studies for such systems.

Zusammenfassung

Niedrigdimensionale elektronische und magnetische Systeme haben in den letzten Jahrzehnten aufgrund ihrer aussergewöhnlichen quantenmechanischen Eigenschaften ein reges experimentelles und theoretisches Interesse geweckt.

Diese Doktorarbeit befasst sich mit der umfangreichen experimentellen Untersuchung der eindimensionalen magnetischen Eigenschaften eines neuartigen organometallischen Materials, $(\text{C}_7\text{H}_{10}\text{N})_2\text{CuBr}_4$ (DIMPY). Aufgrund der Kristallstruktur bilden die Kupferatome und deren elektronische Spins ein eindimensionales Kopplungsmuster, eine sogenannte antiferromagnetische Heisenberg-Spinleiter mit einer dominanten Kopplung entlang der Holme. Die klare Trennung der eindimensionalen Einheiten dieses Materials und die vergleichsweise schwachen Wechselwirkungen zwischen den Kupferatomen ermöglichen, das physikalische Verhalten bei tiefen Temperaturen sowie hohen magnetischen Feldstärken stark zu beeinflussen und eine Reihe von Quantenphasenübergängen zu induzieren. Tatsächlich lässt sich das ganze Temperatur-Feld-Phasendiagramm durch konventionell erreichbare tiefe Temperaturen im Millikelvin-Bereich und hohe magnetische Feldstärken von bis zu einigen Dutzend Tesla untersuchen.

Die statischen und dynamischen magnetischen Eigenschaften von DIMPY wurden innerhalb des gesamten Phasendiagramms anhand von umfangreichen Neutronenstreuungsexperimenten sowie der Messung thermodynamischer Grössen untersucht. Die folgenden Aspekte werden in der Arbeit besprochen:

- 1.) Vollständig deuterierte Einkristalle mit einer Masse von bis zu mehreren Gramm wurden in unseren Laboratorien an der ETH Zürich gezüchtet und charakterisiert.
- 2.) Mit Hilfe von Dreiachsenspektrometern sowie der Neutronen-Flugzeit-Methode wurden inelastische Neutronenstreuungsexperimente im Nullfeld durchgeführt. Das damit untersuchte Anregungsspektrum ermöglichte in Kombination mit numerischen Dichtematrix-Renormierungsgruppen-Rechnungen, unter anderem die Parameter des Hamiltonoperators zu bestimmen und die Anregungen gemäss ihrer Symmetrie zu trennen.
- 3.) Mit inelastischen Neutronenstreuungsexperimenten wurde die Feldabhängigkeit des dynamischen Strukturfaktors studiert. Dabei wurde bei einem kritischen Feld von $\mu_0 H_{c1} \simeq 2.6 \text{ T}$ der Quantenphasenübergang zu einem Tomonaga-Luttinger Spinflüssigkeitszustand (TLSL) und die damit einhergehenden spektralen Veränderungen beobachtet. Unter anderem wurde untersucht, wie sich die ursprünglich scharfen Anregungsmoden mit spektralen Lücken in überlappende, strukturierte sowie teilweise lückenlose Anregungskontinua verwandeln. Damit konnten bislang experimentell nicht überprüfte quantenfeldtheoretische Vorhersagen spektraler Merkmale bestätigt werden. Numerische Rechnungen ermöglichten ausserdem, das beobachtete Spektrum in quantitativer Übereinstimmung zu reproduzieren. Im Gegensatz zu kürzlichen Untersuchungen am komplementären Spinleiter Material BPCB, das sich durch eine *dominante Sprossenkopplung* auszeichnet und in dem das Anregungskontinuum bei tiefsten Energien studiert wurde, haben wir zum ersten

Mal das *vollständige* Spektrum eines Spinleitersystems mit *dominanter Holmenkopplung* im feldinduzierten TLSL Zustand vermessen können.

4.) Inelastische Neutronenstreuungsexperimente wurden im Nullfeld als Funktion der Temperatur durchgeführt. Es konnte beobachtet werden, wie die ursprünglich scharfe Magnonanregung mit zunehmender Temperatur eine thermische Renormierung der Lückenenergie, eine endliche Lebenszeit und somit eine intrinsische Linienverbreiterung erhält. Die Resultate wurden mit theoretischen Vorhersagen sowie einer kürzlich publizierten umfassenden Studie an anderen magnetischen Materialien verglichen. Die darin beobachtete universelle Temperaturabhängigkeit konnte für ein weiteres Material bestätigt werden.

5.) Um die experimentell bislang nicht überprüften universellen Skalengesetze des feldinduzierten TLSL Zustands zu untersuchen, wurden inelastische Neutronenstreuungsexperimente mit Hilfe der Neutronenflugzeit-Spektroskopie durchgeführt. Es wurde beobachtet, wie der temperatur- und energieabhängige lokale dynamische Strukturfaktor $\mathcal{S}(\omega)$ in skalierten Variablen aufgrund der Quantenkritikalität auf eine einzelne Kurve fällt. Es wurde gezeigt, dass die Skalierungskurve selbst durch die quantenfeld-theoretische Vorhersage beschrieben ist und dass die bestimmten TLSL-Parameter mit numerischen Rechnungen übereinstimmen. Somit konnten experimentell die universellen Skalengesetze des feldinduzierten TLSL Zustands von magnetisch eindimensionalen Systemen mit einer Energielücke bestätigt werden.

6.) Umfassende Messungen der Temperatur- und Feldabhängigkeit der spezifischen Wärme und des magnetischen Moments wurden durchgeführt. Es wurde beobachtet, wie sich das Tieftemperaturverhalten dieser Größen grundlegend ändert, wenn bei $\mu_0 H_{c1} \simeq 2.6$ T und 29 T die Quantenphasenübergänge zu einem TLSL Zustand beziehungsweise zu einem vollständig polarisierten Zustand induziert werden. Mit Hilfe des Tieftemperaturverhaltens dieser Größen konnten die Schlüsselparameter der jeweiligen Phasen bestimmt werden: Die Magnonenenergielücke und deren relativistische Geschwindigkeit c ($H < H_{c1}$) sowie die Feldabhängigkeit der Fermi-Geschwindigkeit u und des TLSL-Exponenten K ($H > H_{c1}$). In den kalorischen Messungen wurden oberhalb des kritischen Feldes Anomalien entdeckt, die auf einen thermischen Phasenübergang zu einem antiferromagnetisch geordneten Zustand hindeuten. Letzterer wird in der Literatur oft als Bose-Einstein-Kondensat von Magnonen bezeichnet.

Zusammenfassend konnten mittels thermodynamischer Messungen und Neutronenstreuungsexperimenten die statischen und dynamischen Eigenschaften des Heisenberg-Spinleitermaterials $(C_7H_{10}N)_2CuBr_4$ innerhalb des gesamten (H, T) -Phasendiagramms untersucht werden. Die Möglichkeit, solche Systeme mit der in dieser Arbeit präsentierten Genauigkeit und in quantitativer Übereinstimmung mit numerischen und analytischen Berechnungen zu vermessen, ist massgeblich durch die folgenden vier Punkte geprägt: 1. Die Entdeckung und Synthese neuer Materialien mit geeigneten magnetischen Eigenschaften, 2. dem Fortschritt in der Neutronenspektroskopie-Instrumentierung an den grossen Forschungszentren (insbesondere der Flugzeit-Spektrometer der neuen Generation), 3. den neuartigen numerischen Methoden und Programmen für eindimensionale Quantensysteme sowie 4. der Vielzahl an vorhandenen analytischen Resultaten für solche Systeme.