

Kvantemagnetisme – en underlig fisk

Af Niels Bech Christensen, Afdelingen for Materialeforskning, Forskningscenter Risø, Danmarks Tekniske Universitet og Paul Scherrer Institutet, Villigen, Schweiz og Henrik M. Rønnow, Laboratory for Quantum Magnetism, École Polytechnique Fédérale de Lausanne (EPFL), Schweiz

De skabninger, der bebor de dybe verdenshave, er væsensforskellige fra dem fiskehandleren sælger. De ekstreme betingelser, der hersker i 10 kilometers dybde kræver andre overlevelsesstrategier, end dem de lettere tilgængelige overfladefisk anvender. Inden for magnetisme kan ekstreme betingelser – nærmere beskrevet nedenfor – tilsvarende give anledning til fænomener, der adskiller sig kraftigt fra den klassiske ferromagnetisme, der blandt andet tillader os at sætte huskesedlen fast på køleskabsdøren. Man taler løst om kvantemagnetisme. I denne artikel vil vi kort introducere nogle af de fisk, man kan fange, hvis man smider fiskesnøren i det kvantemagnetiske hav.

Atomar magnetisme

Atomar magnetisme skyldes elektroner, der kredser om atomkerner, mens de samtidigt roterer om sig selv, på samme måde som jorden roterer om solen såvel som om sin egen akse. De magnetiske momenter, der herved opstår, er så små, at vi må beskrive dem med kvantefysikkens love. Vi kalder dem *spin* og betegner dem med symbolet S . Det viser sig, at spin-fysik (magnetisme) udgør en fremragende arena for beskrivelse og udforskning af nogle af de vigtigste kontraintuitive konsekvenser af kvantefysikken, nemlig kvantisering, superposition af tilstande, kvante-fluktuationer imellem tilstande samt entanglement. Det er i høj grad realisationen af fænomener som disse i *makroskopiske* krystaller, der gør kvantemagnetisme til et spændende forskningsfelt, både med henblik på undersøgelse af grundliggende fysiske problemstillinger og med henblik på fremtidige teknologiske anvendelser.

Kvantefænomener

Kvantisering indebærer at spins kun kan antage værdier, der er halv- eller heltallige ($S = 0, 1/2, 1, 3/2, 2,$ osv.) multipla af Planck's konstant \hbar . Bortset fra det umagnetiske tilfælde $S = 0$, er den mindst mulige værdi altså $S = 1/2$. I denne grænse udtrykker kvanteeffekter sig mest dramatisk. I den modsatte grænse, $S \gg 1$, kan spinnene beskrives som klassiske vektorer, der peger i en veldefineret retning. *Superposition* er det fænomen, at et system samtidigt kan befinde sig i to forskellige tilstande. Eksempelvis kan et spin samtidigt pege op og ned (langs en vilkårlig z -akse). Man skal forestille sig, at spinnet oscillerer mellem de to tilstande i en slags imaginær tid. Sådanne *kvantefluktuationer* dæmpes, hvis spin-spin vekselvirkninger gør det fordelagtigt for alle spin at pege i en bestemt retning (ferromagneter). Har hvert spin imidlertid for få eller modsatte (antiferromagnetiske) nabo-spins, vil kvantefluktuationerne modvirke magnetisk ordnede tilstande, og i ekstreme tilfælde resultere i nye ikke-klassiske tilstande. Disse kan indeholde eksotiske typer af 'kvanteorden', hvor f.eks. to spin er sammenkoblet på en sådan måde, at hvis det ene spin peger op, peger det andet

spin altid ned, selvom de hver især er i en uordnet superposition af op- og ned-tilstande. På mirakuløs vis kan denne "kvante-information", også kaldet *entanglement*, eksistere over store afstande. Entanglement er grundlaget for ambitiøse forslag til kvantecomputere.

Udover lavt spin S , lav dimensionalitet og antiferromagnetisme, der altså udgør et godt *indre* udgangspunkt for kvantemagnetiske effekter, vil et typisk eksperiment indebære påtrykkelsen af ekstreme *ydre* betingelser i form af lave temperaturer og høje magnetfelter. Endelig har man brug for en teknik, der tillader observation af kvanteeffekter og test af teoretiske forudsigelser. På dette punkt har neutronspreddning historisk spillet en afgørende rolle. Det skyldes, at neutronen selv bærer et magnetisk moment, $S = 1/2$, som vekselvirker med og afslører rum- og tidslige variationer af et materiales spin-struktur.

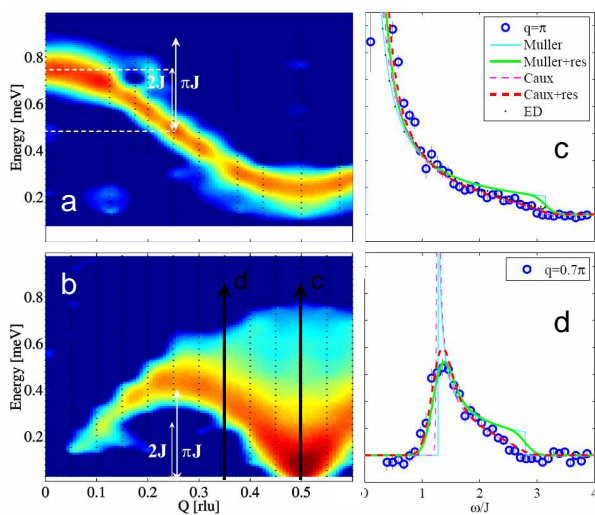
Kollektive svingninger

Materialers magnetiske egenskaber er i høj grad bestemt af deres statiske grund-tilstand, samt hvilke dynamiske *eksitationer* (kollektive svingninger) disse kan fostre. Eksitationerne i en ferromagnet er f.eks. bølger i et hav af ensrettede spins, som kornet der vejer i brisen. Disse klassiske *spin-bølger* har en ganske bestemt sammenhæng mellem deres impuls (dvs. invers bølgelængde) og hastighed (energi), kaldet en dispersions-relation. En spin-bølge har en amplitude, der svarer til at præcis ét spin er blevet flippet, $\Delta S = 1$, i det samlede spin-system, og kan sættes i gang af en neutron, der så samtidig må flippe sit spin. Neutronspreddning kan derfor direkte identificere magnetiske eksitationer ved at afbilde disses impuls og energi. I det følgende illustrerer vi manifestationer af kvantefysikkens fundamentale grundelementer med to eksempler på kvanteeksitationer taget fra vore egne neutroneksperimenter.

De "blå" krystaller

Vort første eksempel er $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$, et materiale mange kender som de blå krystaller, de groede i kemi-eksperimenter i folkeskolen, og som magnetisk består af antiferromagnetiske én-dimensionelle kæder af $S = 1/2$ Cu^{2+} -ioner. På trods af værdien af S og den lave

dimensionalitet kan et stærkt magnetfelt $H > H_c = 3,6$ Tesla (ca. 100 gange stærkere end en køkkenmagnet) ensrette alle spins til en ferromagnetisk grundtilstand, hvor kvanteeffekter er fuldkommen undertrykt. Man kan altså *slukke for kvantemekanikken* i $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$, og dermed opnå spin-bølger med en skarp dispersionsrelation (figur 1a). I den antiferromagnetiske nul-felts grundtilstand, derimod, ødelægger kvantefluktuationer den langt-rækkende orden ved at indsætte mange lokale $S = 1/2$ forstyrrelser (spinoner), der bryder kæden op i mindre segmenter. I en sådan uordnet suppe kan spinbølger ikke overleve, og de fundamentale eksitationer er i stedet ekstra $S = 1/2$ kædebrud. Da en neutron kun kan overføre $\Delta S = 1$ til systemet, må den skabe et *par af spinoner*, hver med deres dispersionsrelation. De to spinoners energier kan kombineres til samme totale energi E for forskellige totale impulser, Q , hvorved man får et *kontinuum* af spredning i stedet for en veldefineret eksitation (figur 1b). Dette kontinuum var set før, men vores målinger er de første af tilstrækkelig kvalitet til at teste teoretiske forudsigelser, som illustreret i figur 1c,d.

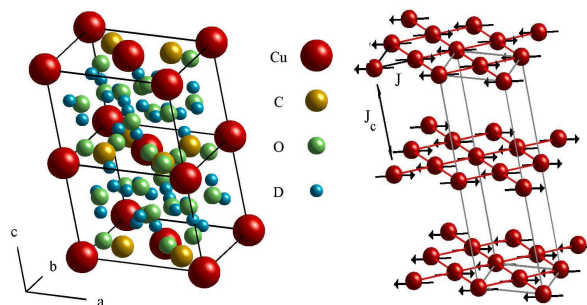


Figur 1. Neutronspreddings-intensitet fra $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$ ved $T = 100$ mK (M. Enderle, H. M. Rønnow et al., ikke publiceret) a) Skarp ferromagnetisk dispersionsrelation, $E(Q)$, i den ferromagnetiske fase ved et magnetisk felt på 5 tesla. b) Kontinuums spektrum af spinon-par i den kvante-uordnede nul-felt fase. c)-d) Linieform som funktion af energi for to Q i nul-felt fasen. Vores data modsiger tidligere teorier (Müller), og bekræfter en ny beregning (Caux).

Resonerende valensbånd?

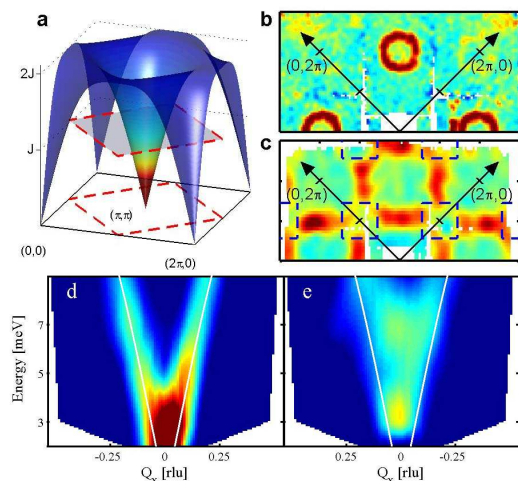
Vort andet eksempel er $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$, der består af svagt koblede, antiferromagnetiske kvadratiske gitter af $S = 1/2$ Cu^{2+} -ioner (se figur 2, til højre). Sådanne to-dimensionelle (2D) antiferromagneter er særligt interessante, fordi *kemisk doping* med mobile ladninger kan lede til høj-temperatur superledning (se andetsteds i dette blad). Teoretisk kan 2D, $S = 1/2$ antiferromagneter kun udvikle magnetisk orden ved $T = 0$ K, men i praksis forskubber små, men trods alt endelige, koblinger imellem Cu-ioner i nabo-lag, faseovergangen til $T_N = 16,5$ K. I den ordnede tilstand for $T <$

T_N forbyder kvantefluktuationer den klassiske Néel grundtilstands-konfiguration hvor hvert spin $S = 1/2$ er antiparallelt med sine fire nærmeste naboer. I stedet eksisterer den klassiske orden i en superposition med andre konfigurationer, hvoraf nogle svarer til veldefinerede $S = 1$ spinbølger (a la dem vi så i den ferromagnetiske fase af $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$, figur 1a) i et nu antiferromagnetisk hav. Når en neutron spreder fra den klassiske del af grundtilstanden, kan den eksitere sådanne antiferromagnetiske spin-bølger (figur 3a,b), men når den spreder fra de kvantefluktuierende spinbølger, der allerede er indeholdt i grundtilstanden, kan der derudover skabes en *to-spinbølge tilstand*. Analogt med situationen for spinon-par i $\text{CuSO}_4 \cdot 5\text{D}_2\text{O}$ har spinbølge-par i $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ en ekstra energi-impuls kombinationsfrihed, hvorved man får et kontinuum af tilstande. Med polariserede neutroner lykkedes det os for første gang at skelne dette svage kvantekontinuum (figur 3e) fra de klassiske spin-bølger (figur 3d), og dermed direkte at påvise kvantefluktuierende spin-bølger i grundtilstanden.



Figur 2. Til venstre: I den monoclinke krystalstruktur af $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ er Cu^{2+} -ioner adskilt langs a- og b-akserne af formatmolekyler, og langs c-aksen af molekyler af tungt vand. Til højre: $S=1/2$ -ionerne danner da antiferromagnetiske kvadratiske gitter, hvor den magnetiske kobling J mellem spin i samme lag er meget større end koblingen J_c mellem spin i forskellige lag. $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ er derfor magnetisk to-dimensionel. Den viste spinstruktur svarer til den klassiske Néel tilstand, der som beskrevet i teksten ikke er hele sandheden om grundtilstanden.

Vore målinger på $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ ledte også til en uventet opdagelse: Langs zone-grænsen, dvs. de Q -vektorer (røde stiplede linjer i figur 3a) hvor spinbølge dispersionen skulle have maksimal energi ifølge klassiske teorier, forsvinder neutronspreddings-intensiteten i de specielle punkter $\mathbf{Q} = (\pi, 0)$ og $(0, \pi)$ (indikeret med blå stiplede linier i figur 3c). I vores fortolkning afslører dette, at grundtilstands-superpositionen, udover Néel og spinbølge bidragene, også indeholder led, hvori hvert spin er parret med én af sine fire naboer i en såkaldt *singlet* tilstand (dvs. en kvantemekanisk superposition af de to 2-spin tilstande, hvor spin A og spin B er henholdsvis op-ned og ned-op), men hvor hver fordeling af disse singletter på det kvadratiske gitter er lige sandsynlig. I så fald har vi snuset til den første eksperimentielle observation af de såkaldte resonerende-valensbånd tilstande, som en af verdens førende teoretikere for 20 år siden foreslog som mekanismen bag høj-temperatur superledning.



Figur 3. Neutron-data fra $\text{Cu}(\text{DCOO})_2 \cdot 4\text{D}_2\text{O}$ for $T \ll T_N$ (N. B. Christensen, H. M. Rønnow et al., ikke publiceret). a) Illustration af dispersions-relationen $E(\mathbf{Q})$. b)-c) Intensitet for konstante energier 9 meV og 14,5 meV. Figur c) afslører manglende intensitet ved $(\pi, 0)$ og $(0, \pi)$ (stiplede blå bokse). d)-e) Henholdsvis klassisk spin-bølge og kvantekontinuum spredning omkring (π, π) adskilt med polariserede neutroner.

En rigdom af fænomener

Ovenfor har vi illustreret hvordan neutronspreddning kan bruges til at udforske kvantefysikkens fundamentale konsekvenser ved at studere hvilke slags tilstande og eksitationer, der eksisterer i magnetiske materialer. Vore eksempler udtømmer langt fra den fascinerende rigdom af fænomener, man støder på inden for kvantemag-

netisme. Man kunne i stedet have nævnt materialer hvor de basale, svagt koblede byggesten ikke, som i vore eksempler, er kæder eller planer men derimod singletter. Disse opfører sig som bosoner, og kan derfor ved lave temperaturer udvise *Bose-Einstein kondensation*. Andre eksempler kunne have været de fundamentale forskelle mellem kæder af heltallige spins og kæder af halvtallige spins, spontant opstående spin-hvirvler, eller emergente spin-frihedsgrader i *frustrerede* spin-systemer, hvori et givet spin ikke samtidigt kan minimere vekselvirkningsenergiene med alle dets naboer. Det står under alle omstændigheder klart, at selv om Niels Bohr grundlagde kvantefysikken for ca. 100 år siden, er der stadig mange fænomener vi mangler fuldt at forstå, og fremtidens forskning i kvantemagnetisme vil med sikkerhed hive flere hemmeligheder op fra dybet.



Begge forfattere arbejder med studier af kvantemagnetisme ved hjælp af neutronspreddning: *Henrik M. Rønnow*, til venstre, er tenure track professor ved École Polytechnique Fédérale de Lausanne, Schweiz. *Niels B. Christensen*, til højre, er post. doc. i Afdelingen for Materialeforskning, Risø, og på Paul Scherrer Institutet i Schweiz.