

## **Frustration mit erstaunlicher Wirkung: Quantenspinflüssigkeiten**

**Alexander A. Tsirlin, Philipp Gegenwart**

### **Angaben zur Veröffentlichung / Publication details:**

Tsirlin, Alexander A., and Philipp Gegenwart. 2019. "Frustration mit erstaunlicher Wirkung: Quantenspinflüssigkeiten." *Physik in unserer Zeit* 50 (2): 71–77.  
<https://doi.org/10.1002/piuz.201901527>.

### **Nutzungsbedingungen / Terms of use:**

**licgercopyright**



# Quantenspinflüssigkeiten Frustration mit erstaunlicher Wirkung

ALEXANDER A. TSIRLIN | PHILIPP GEGENWART

*In Quantenspinflüssigkeiten sind die magnetischen Momente „frustriert“: Sie weisen keinen geordneten, sondern einen flüssigkeitsartigen Zustand auf. Dessen exotische Anregungen könnten die Informationstechnologie revolutionieren.*

Langläufig ist der Begriff Frustration negativ belegt, steht er doch für eine Enttäuschung infolge unerfüllter Wünsche. In den Naturwissenschaften tritt Frustration in unterschiedlichen Zusammenhängen auf, zum Beispiel in der Biologie in Bezug auf rivalisierende Prozesse bei der Proteinfaltung. Frustration in der Physik hat ebenfalls mit konkurrierenden Wechselwirkungen zu tun, hier aber mit eindeutig positivem Sinnbezug! So gibt es weltweite Forschungsaktivitäten, die sich auf die Suche nach möglichst stark frustrierten magnetischen Materialien fokussieren, in denen neuartiges Quantenverhalten auftritt.

Magnetische Frustration entsteht durch konkurrierende Wechselwirkungen zwischen elementaren magnetischen Momenten, also Spins. Wir betrachten zunächst den paramagnetischen Zustand. In ihm fluktuieren die Spins völlig unabhängig voneinander, verhalten sich also wie Teilchen in einem Gas. Dies ist dann der Fall, wenn die thermische Energie groß gegenüber der Energie der magnetischen Wechselwirkung zwischen den Spins ist. Beim Abkühlen erwarten wir daher bei hinreichend niedriger Temperatur ein Ausfrieren der Fluktuationen und das Einsetzen magnetischer Ordnung. Sind alle Spins parallel ausgerichtet, so ist dies ein ferromagnetischer Zustand. Es gibt aber auch viele andere Möglichkeiten der Ordnung. Ein weiteres einfaches Beispiel ist der Antiferromagnet, in dem benachbarte Spins antiparallel stehen. Was passiert nun in frustrierten Magneten?



Konkurrierende Wechselwirkungen zwischen den Spins erschweren eine magnetische Ordnung und verschieben diese zu tieferen Temperaturen. Anschaulich gesprochen kann sich der frustrierte Magnet nicht zwischen der durch konkurrierende Wechselwirkungen bedingten Vielfalt unterschiedlicher Ordnungen entscheiden. Sehr starke Frustration kann auch zur vollständigen Unterdrückung von Ordnung führen. Benachbarte Spins sind dann zwar stark korreliert, frieren in ihrer Ausrichtung aber nicht ein, sondern bilden im Festkörper einen flüssigkeitsähnlichen Zustand.

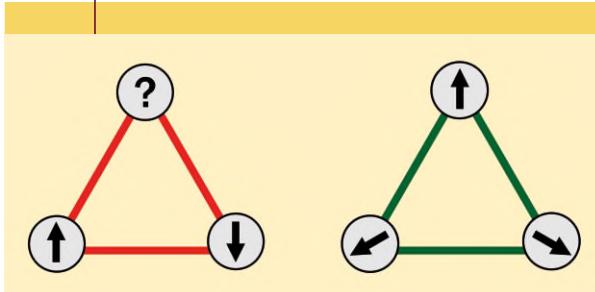
Dieser Zustand unterscheidet sich grundsätzlich von geordneten Magneten mit fester Spineinstellung, aber auch deutlich vom paramagnetischen Zustand. In Letzterem ändern die Spins unabhängig voneinander ständig ihre Richtung, verhalten sich also analog zu Teilchen in einem Gas. Spinflüssigkeiten bezeichnen somit Kristalle mit magnetischen Momenten, die korreliert fluktuieren, da Frustrationseffekte ein Einfrieren bei tiefen Temperaturen verhindern.

Zur Illustration magnetischer Frustration betrachten wir in Abbildung 1 ein Dreieck antiferromagnetisch gekoppelter Spins („Spin-Wechselwirkungen“ auf S. 72 erläutert Details zur magnetischen Kopplung). Da drei Spins sich nicht gegenseitig antiparallel zueinander einstellen können, gibt es keine Möglichkeit, allen paarweise Wechselwirkungen zu genügen. Falls die Spins, wie im rechten Teilbild, keine Vorzugsrichtung haben, können sie sich jedoch in einer 120°-Konfiguration einstellen. Darin werden die gegenseitigen Wechselwirkungen immerhin teilweise erfüllt.

Diese Kompromisslösung ergibt sich aus einer Energienminimierung unter der Annahme, dass sich die Spins durch einfache Vektoren beschreiben lassen, das heißt, ihre quantenmechanische Natur vernachlässigt werden kann (siehe auch „Der klassische Grundzustand“ auf S. 73). Die geometrische Frustration bewirkt in diesem Beispiel eine ungewöhnliche, nicht kollineare Spinordnung. Solche komplexen Spinstrukturen können unter gewissen Bedingungen sogar zusätzlich ferroelektrische Ordnung bewirken [1].

**Einkristalle der Verbindung  $\alpha\text{-Li}_2\text{IrO}_3$ . Solche Materialien sind heiße Kandidaten für die Suche nach Quantenspinflüssigkeiten.**

ABB. 1 | GEOMETRISCHE FRUSTRATION



**Frustration antiferromagnetischer Spins auf einem Dreieck.** Falls die Spins eine Vorzugsrichtung aufweisen (Ising-Spins), ist es unmöglich, alle paarweisen Kopplungen zu befriedigen (links). Andernfalls können sie sich  $120^\circ$  zueinander gekippt einstellen (rechts).

Im Folgenden wollen wir die Diskussion jedoch auf ungeordnete Zustände, also Spinflüssigkeiten, fokussieren, die durch geometrische Frustration verursacht werden. In Spezialfällen verursacht die Energieminimierung für klassische Spinvektoren unterschiedliche Konfigurationen gleicher Energie. Das prominenteste Beispiel hierfür ist Spineis, das man in gewissen Pyrochlor-Oxiden findet. Hier nehmen die Spins unterschiedliche Konfigurationen auf Tetraedern – also dreidimensionalen Versionen der oben betrachteten Dreiecksconfiguration – ein. Sie zeigen dabei eine Entropie am absoluten Temperaturnullpunkt (Nullpunktsentropie) analog zur Pauling-Entropie von Eis. Daher kommt der Name Spineis, obwohl es einen speziellen Spinflüssigkeitszustand bezeichnet. Spineis hat großes Interesse hervorgerufen, da seine Anregungen als magnetische Monopole interpretiert werden können [2].

Normale Flüssigkeiten bleiben flüssig, solange ihre thermische Energie groß genug ist, um ein Einfrieren zu verhindern. Bei klassischen Spinflüssigkeiten gilt dies ganz analog. Bei genügend tiefen Temperaturen tritt entweder langreichweitige Ordnung auf, oder die Spins frieren glasähnlich in einen ungeordneten Zustand ein. Helium hingegen verhält sich anders als normale Flüssigkeiten. Es verbleibt unter Normaldruck bis zu allertiefsten Temperaturen im flüssigen Zustand. Ein Einfrieren verhindert hier quantenmechanische Nullpunktsschwingungen, die in Helium wegen der geringen Atommasse besonders groß sind. Die Quantenmechanik verhindert aber nicht nur das Einfrieren, sondern ermöglicht auch einen neuen Grundzustand: Die Suprafluidität führt zu einer konzentrierten Bewegung aller Heliumatome, die durch eine makroskopische quantenmechanische Wellenfunktion beschrieben werden kann [3].

Ähnlich wie bei flüssigem Helium können Quanteneffekte in Spinflüssigkeiten ein Einfrieren der Momente verhindern. Überdies können sie zu einem neuartigen Grundzustand, der Quantenspinflüssigkeit, führen, in dem die einzelnen Spins quantenmechanisch verschränkt sind. Ein charakteristisches Beispiel einer derartigen Verschränkung zeigt bereits ein einzelnes, antiferromagnetisch gekoppeltes Paar von Spins (siehe „Klassische versus quantenmechanische Beschreibung“ auf S. 74). Die Konfiguration niedrigster Energie ist weder die Auf-ab-, noch die Ab-auf-Ausrichtung der beiden Spins, sondern die quantenmechanische Superposition beider Möglichkeiten. In einer Quantenspinflüssigkeit sind sehr viele unterschiedliche Paarzustände quantenmechanisch verschränkt – auch über größere Distanzen.

### Nachweis durch Widerspruch

Wenn wir uns nun auf die Suche nach echten Quantenspinflüssigkeiten machen, bieten uns dafür die bisherigen Beobachtungen schon Anhaltspunkte. Erstens sollte der durch Quanteneffekte bedingte Unterschied zur klassischen Beschreibung so stark wie möglich sein, daher sind kleinstmögliche Spins am besten. Zweitens sollten viele klassische Spinkonfigurationen die gleiche Energie besitzen, wie bei den bereits diskutierten Dreiecksconfigurationen. Zwar stellt die Natur eine große Zahl derartiger Kristallstrukturen bereit, die entweder künstlich synthetisiert oder als natürliche Kristalle abgebaut werden können. In den letzten zwei Jahrzehnten wurden zum Beispiel kupferhaltige Minerale aus der Geologie wegen ihrer magnetischen Eigenschaften verstärkt untersucht. Jedoch sind all diese Materialien nicht so perfekt wie theoretisch erwartet. Deshalb sind detaillierte experimentelle Untersuchungen von größter Bedeutung. Aber was zeichnet experimentelle Hinweise auf Quantenspinflüssigkeiten aus?

Zunächst müssen wir statische magnetische Ordnung ausschließen, also einen Nachweis durch Widerspruch führen. Es dürfen keine Hinweise auf magnetische Phasenübergänge in temperaturabhängigen Messgrößen wie der Mag-

## SPIN-WECHSELWIRKUNGEN

Wechselwirkungen zwischen magnetischen Ionen sind in guter Näherung paarweise. Sie lassen sich über ein Produkt von Spinvektoren oder entsprechende quantenmechanische Spinoperatoren beschreiben. Ein Skalarprodukt von Spins bildet das etablierte Heisenberg-Modell,

$$H = \sum_{ij} J_{ij} S_i S_j,$$

wobei  $i$  und  $j$  unterschiedliche Gitterplätze bezeichnen,  $S_i$  und  $S_j$  die zugehörigen Spinvektoren (Operatoren) und  $J_{ij}$  deren Wechselwirkungsenergie. Das Heisenberg-Modell legt zwar die gegenseitige Einstellung der Spins fest, nicht jedoch ihre Richtung in Bezug auf das Kristallgitter, da eine beliebige, globale und simultane Rotation aller Spins zu keiner Energie-

änderung führt.

Im Gegensatz hierzu zeigen im Ising-Modell,

$$H = \sum_{ij} J_{ij} S_i^z S_j^z$$

alle Spins entlang einer ausgezeichneten Richtung  $z$  im Kristallgitter, da lediglich die  $z$ -Komponenten der Spins miteinander wechselwirken.

Beide Modelle können magnetische Ordnung wie den Ferromagnetismus erfolgreich beschreiben, obwohl sie stark vereinfachen. Das Heisenberg-Modell bietet Vorteile, wenn es um die realistische Beschreibung magnetischer Phasenübergänge geht. Das Ising-Modell wird wegen seiner konzeptionellen Einfachheit für Simulationen in der Statistischen Physik angewandt.

netisierung oder Suszeptibilität, der Wärmekapazität oder der thermischen Ausdehnung vorliegen. Entsprechende Messungen werden heutzutage routinemäßig und in einigen Laboren bis hinab zu Temperaturen im Millikelvinbereich durchgeführt. Falls die tiefste gemessene Temperatur klein gegenüber der thermischen Kopplungsstärke der Momente ist, ist dies ein Hinweis auf mögliches Quantenspinflüssigkeits-Verhalten.

Allerdings können die thermodynamischen Signaturen magnetischer Ordnung sehr schwach sein, insbesondere wenn die magnetischen Momente in einen glasartigen, langreichweitig ungeordneten, Zustand einfrieren. Statische – also nicht fluktuierende – Momente würden jedoch einem Quantenspinflüssigkeits-Zustand widersprechen. Dementsprechend ist es wichtig, ein Einfrieren der Momente auszuschließen. Hierzu bieten sich lokale Messmethoden wie die Kernspinresonanz an. Diese reagieren sehr empfindlich selbst auf sehr kleine statische interne Magnetfelder, wie sie bei einem Einfrieren der Momente auftreten. Selbst wenn wir alle Signaturen von Spinordnung experimentell ausschließen können, was notwendig ist, ist dies immer noch nicht hinreichend für die Existenz einer Quantenspinflüssigkeit.

### Faktionale Anregungen als Signaturen

Bislang haben wir diskutiert, dass die magnetischen Momente in Quantenspinflüssigkeiten nicht ordnen oder einfrieren dürfen, sondern stattdessen bis zu tiefsten Temperaturen fluktuiieren. Dies alleine wäre noch nicht außergewöhnlich, denn ein „normaler“ Paramagnet zeigt ebenfalls fluktuiierende Momente. Sie sind aber nur schwach gekoppelt, was in der magnetischen Suszeptibilität zum bekannten Verhalten nach dem Curie-Weiss-Gesetz führt. In einer Quantenspinflüssigkeit verursachen die starken Korrelationen zwischen den Momenten jedoch ein deutlich anderes Verhalten.

Das Außergewöhnliche an einer Quantenspinflüssigkeit sind ihre Anregungen. Um die generelle Bedeutung thermischer Anregungen zu verstehen, betrachten wir erneut eine Analogie. Der Grundzustand eines Kristalls wird durch seine atomare Struktur festgelegt, aber dies sagt uns noch nichts darüber, ob er weich oder hart ist, und wie stark er sich bei Erhitzen ausdehnt. All das hängt von der Stärke der einzelnen chemischen Bindungen ab. Diese sind nur durch ein Studium der Gitteranregungen, genauer, der kollektiven Schwingungen der Atome, der Phononen, bestimbar. Genauso ist es für die Erforschung von magnetischen Materialien wesentlich, deren magnetische Anregungen zu untersuchen.

Konventionelle Anregungen in geordneten Magneten werden als *Magnonen* bezeichnet. Sie sind Spin-1-Anregungen, da sich für einen beliebigen quantenmechanischen Drehimpuls dessen Eigenwerte entlang der Quantisierungsrichtung nur *ganzzahlig* einstellen können. Gemäß der Quantenstatistik haben ganzzahlige Spinanregungen daher den Charakter von Bosonen.

### DER KLASISCHE GRUNDZUSTAND

Die Behandlung von Spinmodellen wird einfacher, wenn wir Spins als Vektoren und nicht als quantenmechanische Operatoren betrachten. Dann können wir den energetisch günstigsten Zustand oft analytisch berechnen.

Als Beispiel betrachten wir eine Kette von  $N$  Spins, deren nächste und übernächste Nachbarn durch zwei Heisenberg-Austauschwechselwirkungen  $J_1$  und  $J_2$  gekoppelt sind. Ist  $J_1$  antiferro- und  $J_2$  ferromagnetisch, so wird eine einfache antiferromagnetische Ordnung favorisiert. Ist hingegen  $J_2$  ebenfalls antiferromagnetisch, bewirkt dies Frustration, welche der von  $J_1$  erzeugten Ordnung entgegengewirkt. In klassischer Näherung führt dies zu einer gegenseitigen Verdrehung benachbarter Spinvektoren um einen Winkel  $\varphi$ . Das Skalarprodukt  $S_i \cdot S_j$  ist dann durch  $\cos \varphi$  für nächste

und  $\cos 2\varphi$  für übernächste Nachbar-Wechselwirkungen gegeben. Damit wird die Gesamtenergie

$$E/N = J_1 \cos \varphi + J_2 \cos 2\varphi$$

minimal für

$$\cos \varphi = -J_1/(4J_2),$$

was möglich ist, solange  $|J_1/(4J_2)| \leq 1$ .

Der daraus bestimmte Winkel  $\varphi$  benachbarter Spins definiert einen spiralartigen Zustand, in dem die Spins gegeneinander verdreht sind. Anders ausgedrückt führt die Konkurrenz zwischen  $J_1$  und  $J_2$  zu einer nicht kollinearen, spiralartigen Spinanordnung. Diese ist im Allgemeinen inkommensurabel mit dem Kristallgitter, das heißt, die Periode der Spirale ist kein ganzzahliges Vielfaches der Gitterkonstanten.

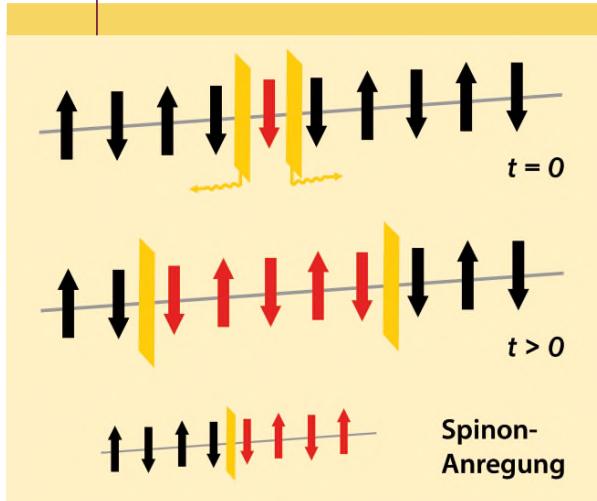
In Quantenspinflüssigkeiten dagegen können *halbzahlige* Spinanregungen, die sich wie Fermionen verhalten, auftreten! Dies ist am einfachsten am Beispiel einer eindimensionalen antiferromagnetischen Heisenberg-Spinette mit  $S = 1/2$  zu sehen (Heisenberg-Spinette: siehe „Klassische versus quantenmechanische Beschreibung“). Abbildung 2 zeigt: Eine ganzzahlige Spinanregung in der Kette, die durch Umklappen eines Spins entsteht, führt zu zwei Domänenwänden. Diese haben die Möglichkeit, sich auseinander zu bewegen, ohne dass dadurch zusätzliche Energie aufgewandt werden muss, da die Größe der Anregung unverändert bleibt (Kette bei  $t > 0$  in Abbildung 2). Damit spaltet die Anregung  $S = 1$  in zwei unabhängige Anregungen mit jeweils  $S = 1/2$  auf, die jeweils einer Domänenwand zugeordnet werden können.

Dies wird als Spinfraktionalisierung bezeichnet, da die Quantenzahl der Anregung halb- und nicht mehr ganzzahlig ist. Solche halbzahligen Spinanregungen, *Spinonen* genannt, gibt es nicht in normalen Magneten. Spinonen und andere exotische Anregungen treten jedoch in Quantenspinflüssigkeiten auf, sind also charakteristische Merkmale. Sie könnten für neue Anwendungen in der Quanteninformationstechnologie interessant sein.

### Der RVB-Zustand

Die Frage, unter welchen Bedingungen sich Quantenspinflüssigkeiten ausbilden, ist bereits von theoretischer Seite nur schwer zu beantworten. Noch wesentlich schwieriger ist ihre experimentelle Realisierung. Die meisten geometrisch frustrierten Magnete zeigen Spinkonfigurationen auf

ABB. 2 | HEISENBERG-SPINKETTE



**Ein Umklappen eines Spins in der  $S = 1/2$ -Kette zum Zeitpunkt  $t = 0$  führt zu zwei gelb markierten Domänenwänden. Diese Domänenwände können sich ohne weitere Energiekosten unabhängig voneinander weg bewegen ( $t > 0$ ). Eine einzelne Domänenwand stellt daher eine halbzahlige, fraktionale Spinanregung dar.**

Dreiecksgittern, die verhindern, dass sich Spins entlang einer Richtung anordnen können. Andererseits kann ein Paar zweier Spins immer eine antiparallele Konfiguration (Spin-Singulett) annehmen, unabhängig vom dritten Spin.

Der Physik-Nobelpreisträger Philip W. Anderson hat daher bereits 1973 vorgeschlagen, dass Spins auf einem Dreiecksgitter spontan Paare, also Spin-Singulets, entlang der verschiedenen Ecken der Dreiecke bilden können, wie in Abbildung 3 illustriert [4]. Man kann sich viele unterschiedliche Kombinationen solcher Anordnungen vorstellen, deren quantenmechanische Überlagerung dann den Grund-

zustand bildet. Anschaulich gesagt kommt es ständig spontan zu Neuausrichtungen der Paare. Anderson nannte dies in Analogie zu Resonanzstrukturen in der Chemie Resonating Valence Bond (RVB), also auf Deutsch so viel wie Resonanz-Valenzbindung. Normalerweise benötigen chemische Bindungen zwei Elektronen, aber manchmal haben Moleküle nicht genügend Elektronen hierfür. Wie vom Benzolring bekannt, können derartige Resonanzbindungen einen chemisch stabilen Zustand ausbilden.

Mit Hilfe des RVB-Konzepts lassen sich Quantenspinflüssigkeits-Zustände unterschiedlicher Komplexität generieren. In seiner bahnbrechenden Publikation von 1973 zog Anderson zunächst nur Singulets zwischen nächsten Nachbarn in Betracht [4]. Falls sich Singulets auch zwischen weiter entfernten Spins ausbilden können, entstehen komplexere Quantenspinflüssigkeits-Zustände [5].

Trotz großer experimenteller Anstrengungen fehlt bislang allerdings der zweifelsfreie experimentelle Nachweis des RVB-Zustands. Für die von Anderson behandelte Dreieckskonfiguration mit antiferromagnetischem Heisenberg-Austausch, also isotrope Austauschwechselwirkung (siehe „Spin-Wechselwirkungen“), konnte mittlerweile theoretisch gezeigt werden, dass entgegen der ursprünglichen Vermutung nicht der RVB-Zustand, sondern eine nichtkollineare 120°-Anordnung der Spins die niedrigste Energie hat. Daher scheint es aussichtsreicher, Materialien mit stark anisotropen Austausch-Wechselwirkungen zu untersuchen.

Hierzu werden atomare Momente benötigt, die nicht nur einen isotropen Spin-, sondern zusätzlich auch noch einen anisotropen Bahnanteil haben. Die magnetischen Momente resultieren aus teilweise gefüllten d- oder f-Orbitalen in Verbindungen mit Elementen der Übergangsmetalle oder Seltenen Erden. Im Fall von 3d-Übergangsmetallen, wie bei Eisen, ist der Bahnanteil meist unterdrückt. Für schwerere Elemente mit teilweise besetzten 4d-, 5d- oder 4f-Orbitalen führt jedoch die Spin-Bahn-Wechselwirkung zu einem Pseudo-Spinmoment, das oft sehr anisotrop ist – im Gegensatz zum einfachen Heisenberg-Modell.

Unsere Gruppe an der Universität Augsburg hat kürzlich die Verbindung  $\text{YbMgGaO}_4$  erforscht, in der ein perfektes Dreiecksgitter von Spin-Bahn-gekoppelten magnetischen Momenten vorliegt (Abbildung 4). Diese stammen von  $\text{Yb}^{3+}$ -Ionen, die im Kristallfeld einen Pseudospin-Zustand von  $1/2$  zeigen. Das Kristallfeld beschreibt, einfach gesagt, in Übergangsmetall-Verbindungen den Einfluss des von den ionisierten Atomen im Kristall erzeugten elektrischen Felds auf die Elektronen in den 4d-, 5d- oder 4f-Orbitalen. Allerdings sind die 4f-Elektronen, die für das magnetische Moment verantwortlich sind, stark in Atomkern Nähe lokalisiert und werden deshalb von anderen Elektronen weitgehend abgeschirmt. Daher ist die magnetische Kopplung zwischen benachbarten Dreiecksgitterplätzen schwach und entspricht einer Temperatur von nur einem Grad über dem absoluten Nullpunkt. Dennoch lässt sich das Material bis zu Temperaturen, die einem kleinen Bruchteil der er-

## KLASSISCHE VERSUS QUANTENMECHANISCHE BESCHREIBUNG

Die Natur der Spins ist quantenmechanisch. Deshalb reicht eine klassische Näherung durch Spinvektoren nicht immer, um die magnetischen Eigenschaften zu beschreiben – besonders, da sie keine Effekte der Verschränkung berücksichtigt.

Die quantenmechanische Betrachtung kann zu mehreren wichtigen Unterschieden führen, die sich bereits anhand eines einzelnen, antiferromagnetisch gekoppelten Spinpaares (Dimers) mit Kopplungsenergie  $J$  veranschaulichen lassen.

Die Konfiguration niedrigster Energie ist ein Spin-Singulett ( $S = S_1 + S_2 = 0$ ), dargestellt als Super-

position von Auf-ab- und Ab-auf-Zuständen. Angeregte Konfigurationen sind Triplets. Sie schließen die Fälle ein, in denen  $S = 1$  gilt. Quantenmechanisch beträgt die Wechselwirkungsenergie  $JS(S+1)$ , wobei  $S(S+1)$  den Erwartungswert des  $S^2$ -Operators darstellt.

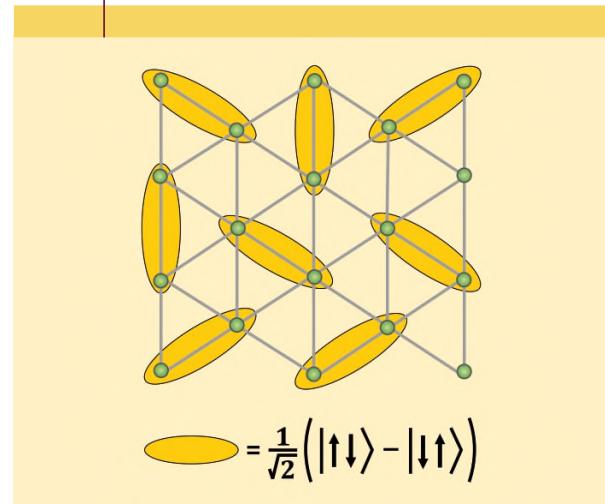
Andererseits ist die klassische Energie einfach durch  $JS^2$  gegeben, deshalb unterscheidet sie sich vom korrekten Wert. Der Fehler wird umso größer, je kleiner  $S$  ist, und Quantenkorrekturen sind daher am größten für  $S = 1/2$ . Die Größe des Spinmoments  $S$  eines Atoms hängt von seiner Elektronenkonfiguration ab.

warteten Ordnungstemperatur entsprechen, untersuchen. Interessanterweise zeigt sich, dass die Momente in einem dynamischen – fluktuierenden – Zustand verbleiben, wie es für Quantenspinflüssigkeiten notwendig ist.

Unsere genaue Untersuchung der magnetischen Anregungen in  $\text{YbMgGaO}_4$  erfolgte bei tiefen Temperaturen durch am Einkristall gestreute Neutronen, deren Energie- und Winkelverteilung wir analysierten [6]. Einige Neutronen verlieren einen Teil ihrer Energie und erzeugen magnetische Anregungen. Die Analyse der gestreuten Neutronen erlaubt es, Energie ( $E$ ) und Impuls ( $\mathbf{k}$ ) der Anregungen zu bestimmen. Der Farbkonturplot in der Mitte von Abbildung 4 zeigt die Intensität dieser gestreuten Neutronen zwischen niedrig (blau) und hoch (rot) als Funktion zweier Richtungen im reziproken Raum. Im Gegensatz zu normalen Magneten, die energetisch wohldefinierte Anregungen aufweisen, treten hier nur stark verbreiterte Bereiche hoher Intensität auf. Genau dies ist charakteristisch für Quantenspinflüssigkeiten, in denen sich wie bereits diskutiert Magnonen in jeweils zwei Spinonen aufspalten, die sich unabhängig voneinander bewegen können. Darüber hinaus zeigt die Wellenvektorabhängigkeit der verbreiterten Signaturen genau die für Andersons RVB-Zustand erwartete Abhängigkeit.

Allerdings bedeutet dies noch nicht, dass tatsächlich der lange gesuchte RVB-Grundzustand nachgewiesen ist. Die Wechselwirkungen in  $\text{YbMgGaO}_4$  sind nämlich weit komplexer als im idealisierten Ansatz, der keine richtungsabhängigen Wechselwirkungen berücksichtigt. Zudem zeigt das Material Unordnungseffekte wegen einer statistischen Verteilung von  $\text{Mg}^{2+}$ - und  $\text{Ga}^{3+}$ -Ionen, die zwischen den  $\text{Yb}^{3+}$ -Dreiecksgitterebenen angeordnet sind. Diese führen unter anderem zu einer lokalen Variation der Kopplungen zwischen den magnetischen Momenten. Dennoch bedeuten diese Ergebnisse einen wichtigen Schritt. Sie beweisen, dass man durch eine geeignete Wahl magnetischer Ionen neue Wege zur Quantenspinflüssigkeit einschlagen kann, jenseits der etablierten Heisenberg-Kopplung.

**ABB. 3 | RVB-ZUSTAND**



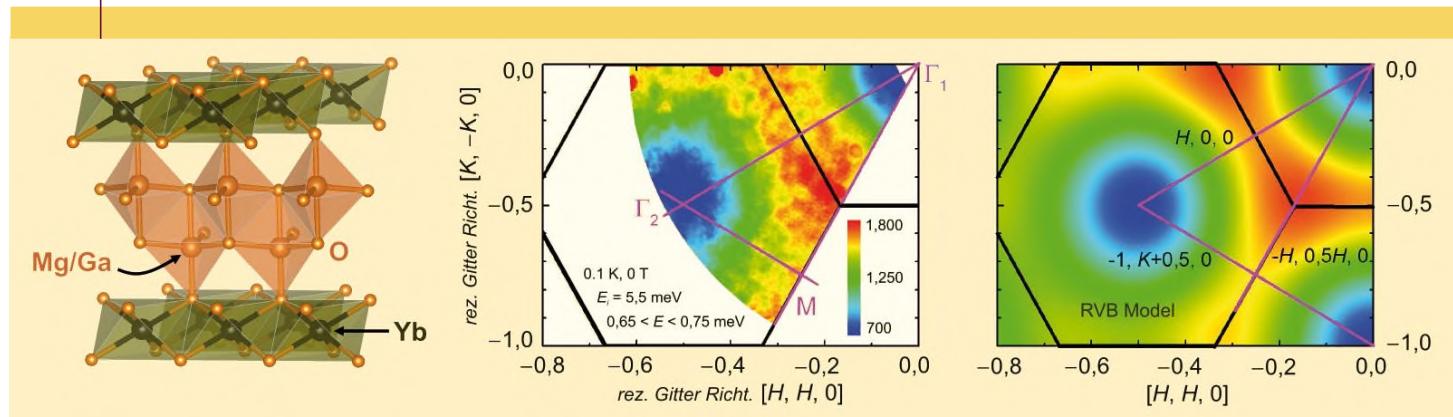
**Darstellung einer möglichen Konfiguration im RVB-Zustand [5].**

### Die Kitaev-Quantenspinflüssigkeit

2006 erdachte Alexei Kitaev vom California Institute of Technology in Pasadena, Kalifornien, ein neues Spinmodell, das seither große Beachtung erfahren hat [7]. Kitaev betrachtete ein bienenwabenförmiges Gitter, in dem scheinbar keine Frustration auftreten sollte, da es keine Dreieckskonfigurationen enthält. Dies gilt jedoch nur für den bislang betrachteten Heisenberg-Austausch, der magnetische Momente isotrop, also gleich entlang aller Richtungen, koppelt. Im Fall des Kitaev-Modells wird jedoch gerade eine stark richtungsabhängige Kopplung angenommen.

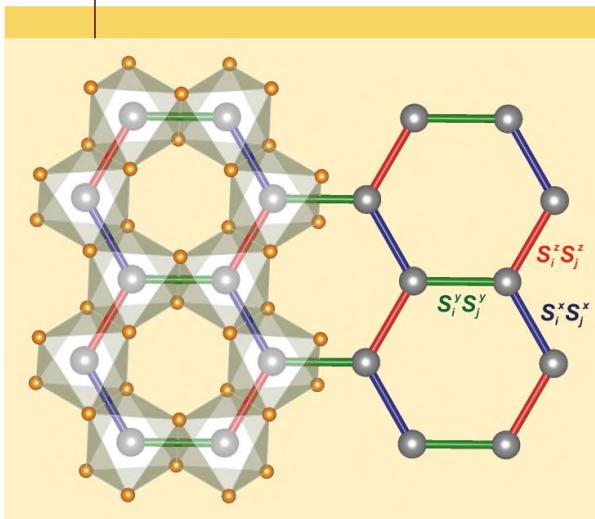
Im Bienenwabengitter haben alle Gitterpunkte drei nächste Nachbarn entlang dreier Bindungen, die wir mit  $X$ ,  $Y$  und  $Z$  bezeichnen. Kitaev nahm an, dass in diesen Bindungen jeweils nur eine der drei Spinkomponenten  $S^x$ ,  $S^y$  oder  $S^z$  miteinander koppeln können. Er führte also eine bindungsrichtungsabhängige Wechselwirkung ein (siehe

**ABB. 4 | RVB-ANREGUNGEN**



**$\text{YbMgGaO}_4$  (links) und Signaturen von RVB-Anregungen im Experiment (mittig) und Modell (rechts).** Die Intensität gestreuter Neutronen mit einem Energieübertrag von 0,65-0,75 meV entlang zweier Richtungen im reziproken Raum ist farbkodiert gezeigt; blau ist niedrige, rot hohe Intensität [6].

ABB. 5 | KITAEV-MODELL



**Kitaev-Modell und seine Realisierung in Übergangsmetalloxiden.** Die magnetischen Ionen sind als graue Kugeln gezeigt, ihre Liganden gelb. Entlang der blau, grün und rot gekennzeichneten Bindungen sind jeweils die x-, y- und z-Komponenten der magnetischen Momente gekoppelt.

„Spin-Wechselwirkungen“). Im Gegensatz zum bekannten und etablierten Ising-Modell (siehe ebenfalls „Spin-Wechselwirkungen“) gibt es hier aber keine global ausgezeichnete Richtung, sondern jede der drei Bindungen besitzt eine unterschiedliche Richtung.

Dieses Modell zeichnet sich gegenüber anderen Spinnmodellen dadurch aus, dass es exakt analytisch lösbar ist, was für die Vielteilchen-Quantenphysik ausgesprochen selten ist. Zudem besitzt es einen Quantenspinflüssigkeitszustand mit Anregungen von Anyonen (von engl. „any“ für irgendein; nicht zu verwechseln mit Anionen, also negativ geladenen Ionen). Anyonen sind exotische Quasiteilchen, die sich weder wie Bosonen noch wie Fermionen verhalten und für fehlertolerante Quantenrechnungen benötigt wer-

den. Daher besteht ein großes Interesse der Quanteninformations-Technologie, Materialien, in denen Anyonen-Anregungen auftreten, zu synthetisieren und zu untersuchen. Aber kann dieses elegante Modell in die Realität umgesetzt werden?

Georg Jackeli und Ginyat Khaliullin vom Max-Planck-Institut für Festkörperforschung in Stuttgart schlugen 2009 vor, dass Kitaevs Austauschwechselwirkung für Spin-Bahn gekoppelte magnetische Momente auftritt, falls die isotrope Heisenberg-Kopplung durch spezielle geometrische Anordnung (Abbildung 5) ausgeschaltet wird [8]. Letzteres ist also auch hier, wie bei den oben diskutierten Dreiecksgitter-Systemen, wesentlich.

Die beiden betrachteten Übergangsmetallionen der 4d- und 5d-Reihe im Periodensystem bilden wegen der starken Spin-Bahn-Kopplung magnetische Momente mit stark anisotroper Austauschkopplung aus. Eine weitere Voraussetzung ist, dass die Momente über jeweils zwei unmagnetische Liganden, typischerweise Sauerstoff, mit einem Bindungswinkel von exakt  $90^\circ$  miteinander gekoppelt sind. Im Idealfall wäre dann die Heisenberg-Kopplung unterdrückt und der Kitaev-Austausch realisiert.

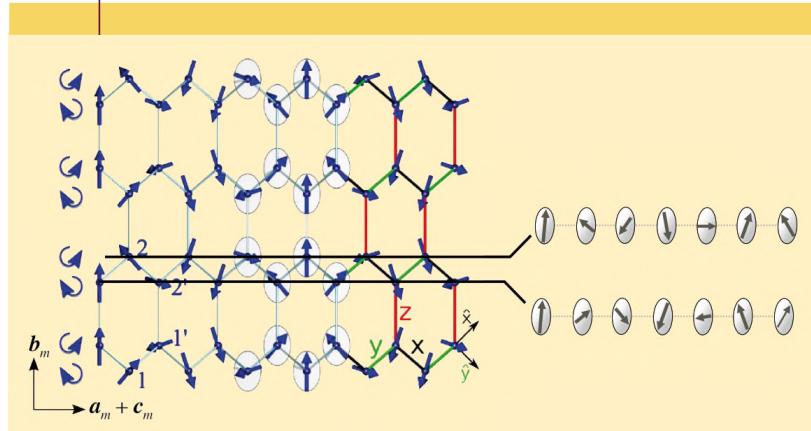
Motiviert durch diese theoretischen Vorhersagen synthetisierten und untersuchten wir in Kooperation mit anderen Gruppen eine Reihe geeigneter Materialien [9]. Leider zeigen sie meist Abweichungen vom perfekten Bindungswinkel, und es treten zusätzliche Austauschpfade für magnetische Wechselwirkungen auf, die im idealisierten Fall nicht berücksichtigt wurden.

Zum Beispiel tritt in der Verbindung  $\alpha\text{-Li}_2\text{IrO}_3$ , die aus Bienenwabenschichten mit  $\text{Ir}^{4+}$ -Momenten besteht, eine komplizierte spiralartige magnetische Ordnung auf (Abbildung 6). Verursacht wird sie durch eine Kombination von Heisenberg-, Kitaev- und anderen anisotropen Austausch-Wechselwirkungen zwischen nächsten und weiter entfernten Nachbarn. Die magnetischen Momente sind daher weder in einer Ebene orientiert, noch weisen sie die Periodizität des Kristallgitters auf. Im Gegensatz zur in „Der klassische Grundzustand“ betrachteten Spiralanordnung drehen sich hier benachbarte Momente mit unterschiedlichem Drehsinn, und genau dies kann man auf die Kitaev-Wechselwirkung zurückführen.

In Röntgenstreu-Experimenten an der verwandten Verbindung  $\text{Na}_2\text{IrO}_3$  konnte zudem die für das Kitaev-Modell charakteristische bindungsrichtungsabhängige Spinwechselwirkung direkt nachgewiesen werden. Dies beweist, dass sich die Kitaev-Wechselwirkung in geeigneten Materialien realisieren lässt. Hierzu zählt auch die nichttoxische Bienenwabenverbindung  $\alpha\text{-RuCl}_3$ .

Das Zusammenspiel der Kitaev- mit anderen magnetischen Wechselwirkungen führt oft zu neuartigen komplexen Formen magnetischer Ordnung (Abbildung 6). Ob sich durch geeignete Manipulation - chemische Dotierung, Anlegen von äußerem Druck oder von Magnetfeldern - die Kitaev-Quantenspinflüssigkeit oder zumindest ihre anyonischen Anregungen erzeugen lassen, ist derzeit Gegenstand

ABB. 6 | SUCHE NACH KITAEV-MATERIALIEN



**Magnetische Struktur von  $\alpha\text{-Li}_2\text{IrO}_3$  mit gegenläufigen Spiralen [10].**

zahlreicher Forschungsaktivitäten. In jedem Fall hat Kitaevs Modell die interdisziplinäre Forschung im Bereich des frustrierten Magnetismus enorm bereichert.

### Zusammenfassung

*Quantenspinflüssigkeiten können sich in frustrierten Magneten bilden. Dort verhindern konkurrierende magnetische Wechselwirkungen die üblicherweise auftretende magnetische Ordnung. Trotzdem fluktuieren die Spins korreliert, was Spinflüssigkeiten auszeichnet. Quanteneffekte dominieren die Eigenschaften von Quantenspinflüssigkeiten, etwa die gegenseitige Verschränkung von benachbarten Spins. Die Anregungen von Quantenspinflüssigkeiten unterscheiden sich fundamental von normalen Spinwellen. Sie gelten als aussichtsreich für zukünftige Anwendungen in der Quanteninformations-Technologie. Materialien mit starker Spin-Bahn-Wechselwirkung bieten neue Ansätze für eine Realisierung von Quantenspinflüssigkeits-Verhalten.*

### Stichwörter

Magnetismus, Spin, Frustration, Quantenflüssigkeit, Heisenberg-, Ising-, Kitaev-Modell, Magnonen, Spinonen, Anyonen.

### Danksagung

Wir bedanken uns bei R. Coldea, A. Jesche, Y. Li, R. Valenti und S. Winter für die Zusammenarbeit an den hier vorgestellten eigenen Forschungsarbeiten, sowie bei der Alexander von Humboldt Stiftung (Sofja Kovalevskaja Projekt A. A. Tsirlin) und der Deutschen Forschungsgemeinschaft (Projekt TRR 80) für die finanzielle Unterstützung.

### Literatur

- [1] S.-W. Cheong, M. Mostovoy, *Nature Mater.* **2007**, 6, 13.
- [2] B. Klemke, R. Moessner, *Phys. unserer Zeit* **2017**, 1, 12.
- [3] B. Kramer, *Phys. unserer Zeit* **1996**, 6, 271.
- [4] P. W. Anderson, *Mater. Res. Bull.* **1973**, 8, 153.
- [5] L. Balents, *Nature* **2010**, 464, 199.
- [6] Y. Li et al., *Nat. Commun.* **2017**, 8, 15814.
- [7] A. Kitaev, *Ann. Phys. (N. Y.)* **2006**, 321, 2.
- [8] G. Jackeli, G. Khaliullin, *Phys. Rev. Lett.* **2009**, 102, 017205.
- [9] S. M. Winter et al., *J. Phys.: Condens. Matter* **2017**, 29, 493002.
- [10] S. C. Williams et al., *Phys. Rev. B* **2016**, 93, 195158.

### Die Autoren



Alexander Tsirlin studierte Chemie in Moskau und promovierte 2009. Er war Humboldt-Stipendiat am Max-Planck-Institut für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden und leitete seit 2012 seine eigene Forschungsgruppe am National Institute of Chemical Physics and Biophysics in Tallinn, Estland. Seit 2015 leitet er als Sofja-Kovalevskaja-Preisträger der Humboldt-Stiftung eine Nachwuchsgruppe am Zentrum für Elektronische Korrelationen und Magnetismus in Augsburg.



Philipp Gegenwart studierte Physik an der TU Darmstadt und promovierte dort 1998. Danach wechselte er an das MPI für Chemische Physik fester Stoffe in Dresden und war als Gastwissenschaftler in St. Andrews, Schottland. Von 2006 bis 2013 war er Professor für Experimentalphysik (Tieftemperaturphysik) in Göttingen. Seit März 2014 leitet er einen Lehrstuhl am Zentrum für Elektronische Korrelationen und Magnetismus der Universität Augsburg.

### Anschrift

Prof. Dr. Philipp Gegenwart, Experimentalphysik VI,  
Elektronische Korrelationen und Magnetismus  
Universität Augsburg Universitätsstr. 1, 86159  
Augsburg, gegenwph@physik.uni-augsburg.de