

Bondbosonen-Molekularfeld-Behandlung von niedrigdimensionalen Quantenspinsystemen

Diplomarbeit
von
Thomas Koethe

Institut für Theoretische Physik
der
Universität zu Köln

Dezember 2002

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	5
1.1	Das Heisenberg-Modell	6
1.1.1	Zweibeinige Spinleiter	11
1.1.2	Spin- $\frac{1}{2}$ -Quadratgitter	12
1.2	Ringaustausch	13
1.3	Bondbosonen-Methode	14
2	Spinleitern	21
2.1	Sprossendimerisierung	21
2.1.1	Näherung für die Triplettdynamik	22
2.1.2	Berücksichtigung des Wechselwirkungsanteils	25
2.2	Alternierende Dimerisierung	28
2.3	Spinleiter mit Ringaustausch	32
3	Quadratgitter	35
3.1	Kolumnare Dimerisierung	35
3.1.1	Einfluss von Ringaustausch	39
3.1.2	Gekoppelte Leitern	41
3.2	Alternierende Dimerisierung	42
3.3	Geordnete Phase	47
3.3.1	Erster Zugang	50
3.3.2	Alternativer Zugang	54
4	Diskussion	59
A	Analytische Integrationen	63
A.1	Integrale mit linearem Radikanden	63
A.2	Quadratische Radikanden	64
A.3	Gemischte Integranden	65
B	Erwartungswerte	67

Kapitel 1

Einleitung

Die Entdeckung, dass durch Dotieren aus dem Isolator La_2CuO_4 Supraleiter mit erstaunlich hohen Sprungtemperaturen entstehen [1], hat reges Interesse an der Physik dieser Substanz geweckt. Die bis dahin gängige Theorie erklärt Supraleitung mit einer attraktiven Wechselwirkung der Elektronen (bzw. Löcher) durch deren Kopplung an Gitterschwingungen. Diese Theorie ist jedoch nicht im Stande, die hohen Sprungtemperaturen der *Hoch- T_c -Supraleitung* zu erklären. Eine Reihe anderer Übergangsmetalloxid-Verbindungen zeigt ganz ähnliche Eigenschaften, die offenbar durch die Wechselwirkungen stark korrelierter Ladungsträger hervorgerufen werden. Auf Grund der starken Abstoßung der Elektronen am selben Übergangsmetallion, sind die Ladungsträger verhältnismäßig unbeweglich, es liegt also keine metallische Leitfähigkeit vor. Die mit ihnen verbundenen magnetischen Momente sind daher gut lokalisiert an den Gitterplätzen. Im La_2CuO_4 beispielsweise liegt das Kupfer in $3d^9$ -Konfiguration vor und trägt somit ein Loch mit Spin $\frac{1}{2}$.

Die Kristalle dieser Verbindungen sind gekennzeichnet von der Anordnung von sechs Sauerstoffionen auf den Ecken eines Oktaeders, in dessen Zentrum das Übergangsmetallion liegt. Während die Oktaeder über Kanten oder Ecken zu ein- bzw. zweidimensionalen Strukturen verbunden sind, liegen zwischen solchen Ebenen isolierende Schichten, die eine Wechselwirkung zwischen verschiedenen Ebenen unterdrücken, so dass die wesentlichen Eigenschaften durch Modelle ein- oder zweidimensionaler Quantenspinsysteme beschrieben werden können [2,3]. Neben Substanzen mit regelmäßigen Ebenen wie La_2CuO_4 sind auch Verbindungen bekannt, in welchen die magnetischen Ionen zwei- oder mehrbeinige Leitern bilden (z.B. SrCu_2O_3 bzw. $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_5$ [4]), und solche, in denen man isolierte bzw. schwach wechselwirkende Ketten findet, wie in CuGeO_3 [5] oder KCuF_3 [6].

Ein einfaches Modell zur Beschreibung der magnetischen Freiheitsgrade solcher Systeme ist das schon in der frühen Zeit der Quantenmechanik eingeführte Heisenberg-Modell [7]. Es gewinnt an Komplexität durch die Berücksichtigung von Dotierung oder interessanter Phänomene wie Frustration und Dimerisierung, die in Form von Modellparametern in die Beschreibung eingehen und die Physik des Systems entscheidend bestimmen. Abhängig von der Größe dieser Parameter kann das System sehr verschiedene Eigenschaften aufweisen, d. h. es können unterschiedliche Phasen in bestimmten Bereichen des Parameterraums identifiziert werden. Die dabei auftretenden Phasenübergänge haben in letzter Zeit große Aufmerksamkeit erfahren,

nicht zuletzt weil sie im Gegensatz zu klassischen Phasenübergängen nicht von thermischen sondern von Quantenfluktuationen getrieben werden und schon bei $T = 0$ einsetzen. Die Auswirkungen sogenannter *quantenkritischer* Punkte sind dennoch auch bei endlicher Temperatur vorhanden und experimentell nachweisbar [8].

In der vorliegenden Arbeit werden antiferromagnetische Spin- $\frac{1}{2}$ -Leitern und Quadratgitter bei $T = 0$ in Molekularfeld-Näherung untersucht. Dabei wird von der im Jahre 1990 von Sachdev und Bhatt eingeführten Methode der Bondbosonen [9] Gebrauch gemacht, um Grundzustandsenergien, Anregungsspektren und bei Vorliegen von magnetischer Ordnung auch die Untergittermagnetisierung zu berechnen. Insbesondere wird der Quantenphasenübergang des Quadratgitters mit Dimerisierung von einer magnetisch ungeordneten in eine antiferromagnetisch geordnete Phase untersucht.

Die Arbeit gliedert sich in vier Kapitel, von denen dieses erste die zu untersuchenden Modelle und die eingesetzte Methode vorstellt. In den beiden folgenden Kapiteln werden die Rechnungen an Spinleitern und Quadratgittern präsentiert. Zum Abschluss werden die Ergebnisse zusammengefasst und diskutiert.

1.1 Das Heisenberg-Modell

Die magnetischen Momente von Elektronen unterliegen der Austauschwechselwirkung. Man kann die Wechselwirkung der magnetischen Momente von Ladungsträgern auf verschiedenen Gitterplätzen aus störungstheoretischer Sichtweise verstehen, indem man sich klarmacht, dass die Energie lokalisierter Ladungsträger durch ein Hüpfen auf benachbarte Gitterplätze abgesenkt werden kann. Wegen des Pauli-Prinzips ist dieser Hüpfprozess für parallel ausgerichtete magnetische Momente unterdrückt, was einer effektiven Wechselwirkung der Spins entspricht, die die Energie für antiparallel Ausrichtung absenkt. In diesem Falle spricht man von antiferromagnetischer Wechselwirkung.

Der Magnetismus von lokalisierten Spins kann daher durch eine effektive Kopplungskonstante J beschrieben werden, die die Wechselwirkungsstärke der Spins angibt. Im Folgenden werden stets Systeme mit antiferromagnetischer Austauschkopplung $J > 0$ betrachtet, die eine alternierende Ausrichtung der Spins bevorzugen. Das Heisenberg-Modell, das als effektives Modell aus dem mikroskopischen Hubbard-Modell abgeleitet werden kann [10, 11], beschreibt Systeme von Spins auf einem Gitter, die ausschließlich mit ihren nächsten Nachbarn wechselwirken. Der Hamiltonoperator hat die Gestalt

$$\mathcal{H} = \sum_{\langle i,j \rangle} JS_i S_j \quad . \quad (1.1)$$

Wir betrachten hier den Spin \mathbf{S}_i am Gitterplatz i als dimensionslosen Operator (d.h. $\hbar = 1$) mit den Kommutatorrelationen $[S_{i,\alpha}, S_{j,\beta}] = i\delta_{ij}\epsilon_{\alpha\beta\gamma}S_{i,\gamma}$, so dass J eine Energie ist. Der Hamiltonoperator (1.1) ist *spinrotationsinvariant*, d.h. er zeichnet keine Vorzugsrichtung für den Spin aus und erlaubt beliebige Drehungen im Spinraum (wobei das zu Grunde liegende Gitter nicht gedreht wird) ohne jeden Energieaufwand.

Das Heisenberg-Modell ist geeignet, um Antiferromagneten mit Spins beliebigen Betrages zu beschreiben. Der Heisenberg-Ferromagnet mit $J < 0$ ist zwar ein lehrreiches Modell, jedoch sind reale Ferromagneten mit seltenen Ausnahmen Leiter und ihr Magnetismus wird von Bandelektronen erzeugt. Das Heisenberg-Modell beschreibt aber Isolatoren mit an stark lokalisierte Ladungsträger gebundenen magnetischen Momenten.

Die Vielseitigkeit des Modells zeigt sich darin, dass es keine Einschränkungen bezüglich der Dimension des Problems oder der Temperatur macht und leicht auf den Fall anisotroper oder ortsabhängiger Kopplung verallgemeinert werden kann. Jedoch ist eine exakte Lösung nur im eindimensionalen Fall mit Spin $\frac{1}{2}$ bekannt [12]. Der Grundzustand dieses Systems ist magnetisch ungeordnet. Um ein Maß für die mittlere Ausdehnung der magnetisch geordneten Domänen anzugeben, wird die Korrelationslänge ξ eingeführt mit der Eigenschaft, dass die Spinkorrelationen beschrieben werden können als $\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle \propto e^{-\frac{|i-j|}{\xi}}$. Bei der Spin- $\frac{1}{2}$ -Kette fallen die Korrelationen zwischen zwei Spins aber nur algebraisch mit deren Abstand ab, so dass die Korrelationslänge hier unendlich ist. Dieses System ist also *kritisch*, da bereits kleine Störungen genügen, um langreichweitige magnetische Ordnung hervorzurufen. Im thermodynamischen Limes sind Elementaranregungen mit beliebig kleiner Energie möglich, d. h. das Spektrum der Spin- $\frac{1}{2}$ -Kette ist lückenlos. Endliche Systeme weisen wegen ihres diskreten Spektrums zwangsläufig eine Anregungslücke auf. Darunter versteht man den endlichen Energiebetrag (auch Gap genannt), der aufgebracht werden muss, um eine Elementaranregung zu machen.

Dagegen haben eindimensionale Systeme mit ganzzahligem Spin nach der noch unbewiesenen aber durch experimentelle Befunde gestützten Vermutung von Haldane eine endliche Anregungslücke [13]. Das bedeutet, dass die Zustandsdichte in einem Energieintervall zwischen Grundzustand und erstem angeregten Niveau verschwindet. Es können also erst oberhalb einer endlichen Temperatur höher liegende Zustände durch thermische Anregung merklich besetzt werden, was sich in einem Tieftemperaturverhalten dieser Systeme äußert, das stark verschieden ist von dem der Systeme ohne Anregungslücke. Daher ist die Unterscheidung zwischen einem lückenlosen Spektrum und einem mit endlicher Anregungslücke immer auch eine Aussage über die Eigenschaften des Systems. Da im Folgenden ausnahmslos Systeme mit Spin $\frac{1}{2}$ untersucht werden, soll die Physik der Ketten mit ganzzahligem Spin hier nicht näher beleuchtet werden.

Für höhere Dimensionen sind keine exakten Lösungen mehr für das Heisenberg-Modell bekannt. Daher wurden eine Reihe von Methoden entwickelt, mit denen es approximativ behandelt werden kann.

Für eine Beschreibung des Grundzustandes des zweidimensionalen (2D-)Heisenberg-Modells benutzt man modellhafte Vorstellungen. Um einen ersten Eindruck seiner Eigenschaften zu bekommen, kann man zunächst von der Quantennatur der Spins absehen und sie wie klassische Vektoren behandeln, d. h. sie mit ihren Erwartungswerten identifizieren. In Anlehnung an den Grundzustand des Ferromagneten, bei dem alle magnetischen Momente parallel ausgerichtet sind und sich zu einer makroskopischen Magnetisierung aufsummieren, betrachtet man einen Zustand, bei dem die Spins antiparallel ausgerichtet sind. Diese Anordnung kann als Überlagerung von zwei Untergittern verstanden werden, auf denen jeweils alle Spins parallel

sind, aber die nächsten Nachbarn jedes Spins alle auf dem anderen Untergitter sitzen (vgl. Abb. 1.1). Die Magnetisierungen der beiden Untergitter sind entgegengesetzt gleich, so dass die Gesamtmagnetisierung verschwindet, obwohl langreichweitige magnetische Ordnung vorliegt. Man bezeichnet allgemein einen Zustand mit endlicher Untergittermagnetisierung als *Néel*-geordnet und unterscheidet ihn von dem in Abbildung 1.1 gezeigten klassischen Néel-Zustand mit vollständiger antiparalleler Ausrichtung aller Spins. Durch die Untergittermagnetisierung ist eine Richtung ausgezeichnet, so dass im Néel-geordneten Zustand als Folge der Fernordnung der Spins die Spinrotationsinvarianz *spontan*, d. h. ohne äußere Einwirkung gebrochen ist.

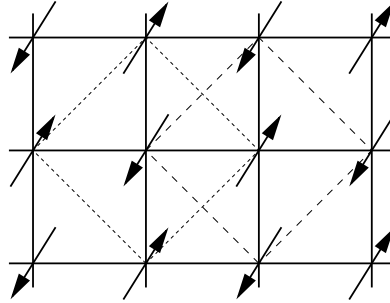


Abbildung 1.1: Im klassischen Néel-Zustand sind die Spins antiparallel ausgerichtet und können auf zwei Untergitter (gestrichelte Linien) aufgeteilt werden.

Nicht alle Systeme können einen einfachen Néel-geordneten Zustand annehmen. Ein Dreiecksgitter beispielsweise ermöglicht aus geometrischen Gründen keine Einteilung aller Gitterplätze derart, dass zwei separate Untergitter mit parallel orientierten Spins entstehen. Anders gesagt besteht bei diesem Modell das Problem, dass nicht alle drei Spins auf einem Dreieck antiparallel zueinander stehen können (dennoch zeigt das Dreiecksgitter langreichweitige magnetische Ordnung). In einem solchen Fall spricht man von einem *frustrierten* System. Auch antiferromagnetische Wechselwirkung mit übernächsten Nachbarspins führt zu Frustration, da diese den entgegengesetzten Effekt zur Nächstnachbar-Wechselwirkung hat. Allgemein bezeichnet man ein System als frustriert, wenn es nicht in zwei Untergitter mit der Eigenschaft aufgeteilt werden kann, dass Spins desselben Untergitters nicht antiferromagnetisch wechselwirken, während es zwischen Spins verschiedener Untergitter ausschließlich antiferromagnetische Wechselwirkung gibt.

Die Elementaranregungen aus dem Néel-Zustand heraus sind Spinwellen, auch *Magnonen* genannt. Man kann eine Spinwelle als eine Anregung auffassen, in der ein Spinflip (das Umklappen eines Spins) im gesamten System ausgebreitet ist. Dazu betrachtet man einen Zustand $|\psi_j\rangle$, bei dem alle Spins antiferromagnetisch angeordnet sind bis auf einen, der am Gitterplatz j sitzt und umgeklappt ist. Eine Spinwelle zum Wellenvektor \mathbf{k} bekommt man aus diesen Zuständen durch Fourier-Transformation

$$|\psi_{\mathbf{k}}\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_j |\psi_j\rangle e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}_j} \quad . \quad (1.2)$$

Diese Zustände sind offenbar ebene Wellen von Spinflips, die sich durch das ganze System ausbreiten. Die Anregung eines Magnons ist mit einer Änderung der z -Kom-

ponente des Gesamtspins (die z -Richtung sei parallel zur Untergittermagnetisierung) vom Betrage Eins verbunden. Im unendlich ausgedehnten System können Magnonen beliebig großer Wellenlängen und damit beliebig kleiner Energie angeregt werden. In Anlehnung an die Terminologie der Elementarteilchenphysik nennt man sie *masselos* oder *Goldstone*-Bosonen. Eine anschaulichere Vorstellung von Spinwellen als Anregungen mit beliebig kleiner Energie gewinnt man, wenn man sie als Fluktuationen in der Untergittermagnetisierung auffasst. Die Untergittermagnetisierung ist eine makroskopische Größe. Eine transversale Auslenkung kann mit beliebig kleinem Betrag vorgenommen werden, also ist auch die mit dieser Auslenkung verbundene Anregungsenergie beliebig klein.

Der Néel-Zustand beschreibt ein System, in dem die Spins langreichweitig geordnet sind und quantenmechanische Fluktuationen eine untergeordnete Rolle spielen. Solange der Einfluss der Fluktuationen zu schwach ist, um die Ordnung zu zerstören, bleibt der Néel-Zustand ein angemessenes Modell zur Beschreibung des Grundzustandes. Werden die Fluktuationen hingegen so stark, dass keine Ordnung des Systems mehr möglich ist, muss ein alternatives Konzept gefunden werden, das den Grundzustand des 2D-Heisenberg-Modells auf der Grundlage kurzreichweitiger Wechselwirkungen beschreibt. Da bei antiferromagnetischer Wechselwirkung die Energie abgesenkt wird, wenn Paare von Spins antiparallel ausgerichtet sind, ist die Vorstellung entwickelt worden, dass der Grundzustand eine kohärente Überlagerung von Produktzuständen ist, in denen jeweils zwei Spins \mathbf{S}_i und \mathbf{S}_j (die nicht notwendig benachbart sein müssen) zu einem Singulett $|s\rangle_{ij} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\rangle_i|\downarrow\rangle_j - |\downarrow\rangle_i|\uparrow\rangle_j)$ gekoppelt sind [14] (s. Abbildung 1.2). Dieser Zustand wird *Resonating Valence Bond* (RVB)-Zustand genannt.

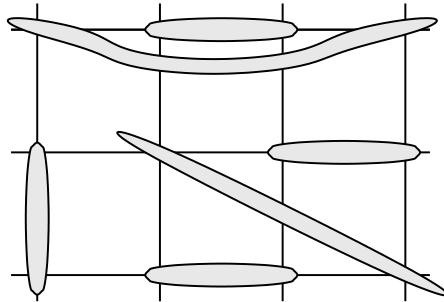


Abbildung 1.2: Ein möglicher Produktzustand in einer RVB-Überlagerung: jeweils zwei Spins bilden ein Singulett (graue Objekte).

Unter der Voraussetzung, dass die Korrelation zwischen zwei Spins rasch mit deren Abstand abfällt, tragen Produktzustände mit ausschließlich Singulett auf benachbarten Gitterplätzen das größte Gewicht in der RVB-Überlagerung, während solche mit Singulett größerer Ausdehnung umso weniger beitragen, je weiter die Spins in den Singulett entfernt sind. Diese Eigenschaft kann als analog zu einer Flüssigkeit angesehen werden, in der die Teilchen ebenfalls über kurzreichweitige Wechselwirkung Korrelationen ausbilden, die zu einer Nahordnung führen, aber keine Fernordnung ausbilden können. In diesem Sinne bezeichnet man den RVB-Zustand als eine *Spin-Flüssigkeit*, womit zum Ausdruck gebracht werden soll, dass

es sich hierbei um einen magnetisch ungeordneten Zustand handelt. Ein solches System kann aber durchaus andere als magnetische Ordnung aufweisen, beispielsweise eine Dimerordnung, die im Folgenden noch eingehend behandelt wird.

Eine Elementaranregung im RVB-Zustand kann als das Aufbrechen eines einzelnen Singulett aufgefasset werden, wobei im Falle von Spin- $\frac{1}{2}$ -Systemen zwei Spin- $\frac{1}{2}$ -Objekte entstehen, die man *Spinonen* nennt [15, 16]. Die Frage, ob diese Spinonen tatsächlich die elementaren Anregungen repräsentieren, oder ob sie vielmehr gebunden bleiben und ein Objekt mit Spin 1 bilden, hängt sehr von der Natur des Systems ab. Die zweidimensionalen Modelle, die in dieser Arbeit behandelt werden, weisen keine freien Spinonen als Elementaranregungen auf. Man interpretiert die gebundenen Spinonen daher stets als Triplettanregungen [17] aus dem Singulettgrundzustand. Unter der Voraussetzung des Zerfalls der Korrelationen mit dem Abstand der Spins nimmt die Bindungsenergie der Singulett ebenfalls mit deren Ausdehnung ab. Eine Anregung kostet daher umso weniger Energie, je größer die Ausdehnung der Singulett ist. Erst im Grenzfall unendlicher Ausdehnung verschwindet die Anregungsenergie völlig und das Spektrum wird lückenlos wie bei Néel-Ordnung. Tatsächlich kann man RVB-Zustände konstruieren, die eine endliche Untergittermagnetisierung besitzen und deren Korrelationslänge divergiert [18]. Sogar der Néel-Zustand kann durch eine Überlagerung von Singulettproduktzuständen mit unendlich ausgedehnten Singulett dargestellt werden. Diese Zustände sind aber offensichtlich keine Spinflüssigkeiten mehr. In Abgrenzung zum Néel-Zustand soll im Folgenden der typische Fall von Spinflüssigkeiten, die aus kurzreichweitigen Singulett aufgebaut sind, mit dem RVB-Zustand mit identifiziert werden. Diese Zustände besitzen also eine endliche Energielücke und eine endliche Korrelationslänge.

Der Grundzustand des 2D-Heisenberg-Modells kann also mit zwei verschiedenen Konzepten erfasst werden, die unterschiedliche Situationen beschreiben: Der Néel-Zustand beschreibt ein System mit langreichweitiger magnetischer Ordnung im Grundzustand und einem lückenlosen Anregungsspektrum, während der RVB-Zustand eine ungeordnete Spinflüssigkeit beschreibt, die eine endliche Anregungslücke besitzt. Beide lassen sich selbstverständlich auf beliebige Dimensionen verallgemeinern. Sie sind als Näherungen für den exakten Grundzustand anzusehen, der von den Eigenschaften des Systems abhängig dem einen oder anderen Konzept näher kommt. Die bessere Näherung für den Grundzustand zeichnet sich durch die geringere Energie aus. Dabei wird der ungeordnete RVB-Zustand immer dann bevorzugt, wenn der Einfluss von Fluktuationen so stark wird, dass keine langreichweitige Ordnung möglich ist. Da im Allgemeinen für ähnliche Gitter die Koordinationszahl, die Anzahl nächster Nachbarn eines Gitterplatzes, mit der Dimension zunimmt, wächst damit auch die Neigung zur Ordnung, da die relative Bedeutung der Fluktuationen abnimmt. Andererseits nimmt die Bedeutung der Fluktuationen ab, wenn der Betrag des Spins zunimmt, so dass die in dieser Arbeit untersuchten zwei- und quasi-eindimensionalen Spin- $\frac{1}{2}$ -Systeme in der Nahe der Kritikalität liegen [18].

1.1.1 Zweibeinige Spinleiter

Die Spinleitern stellen in mehrfacher Hinsicht interessante Systeme dar. Einerseits ist bereits darauf hingewiesen worden, dass die Eigenschaften des Grundzustands stark von der Dimension des Systems abhängen. Die Leiter stellt ein Modell dar, das gewissermaßen zwischen ein- und zweidimensionalen Systemen steht: Die Physik spielt sich im Wesentlichen im einzigen relevanten Freiheitsgrad längs der Holme ab, womit sie der Spinkette nahe kommt. Außerdem existiert entlang der Sprossen eine Ausdehnung in einer Richtung senkrecht zur Leiterachse, so dass man sich durch ein Aneinanderhängen von immer mehr Leitern dem zweidimensionalen Modell nähert.

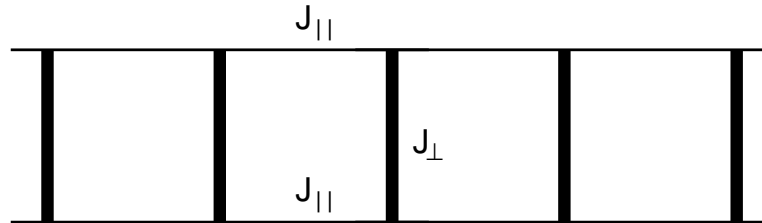


Abbildung 1.3: Bei der Spinleiter unterscheidet man die Holmkopplung $J_{||}$ und die Sprossenkopplung J_{\perp} ; die Leiter dimerisiert, wenn $J_{||} \ll J_{\perp}$, und sie zerfällt in zwei Ketten, wenn $J_{||} \gg J_{\perp}$.

Andererseits ist die Spinleiter nicht nur ein attraktives theoretisches Modell. Vielmehr gibt es eine Reihe von Verbindungen, die Leiterstrukturen aufweisen und damit die Möglichkeit eröffnen, die Modelle an Experimenten zu prüfen [4, 19]. Sie erlauben den Zugang zu interessanten Phänomenen wie Hoch- T_c -Supraleitung. Aus theoretischen wie auch experimentellen Untersuchungen weiß man, dass es in zweibeinigen Spin- $\frac{1}{2}$ -Leitern keine langreichweitige magnetische Ordnung gibt und die Anregungslücke endlich ist [15, 20]. Die Leiter ist also eine Spin-Flüssigkeit mit starken Quantenfluktuationen.

Als Ansatzpunkt zur Untersuchung dieses Systems kann man die Leiter als gekoppelte Ketten auffassen. Man betrachtet das System vom Limes *schwacher* Kopplung aus, also $J_{\perp} \ll J_{||}$ mit den Bezeichnungen aus Abbildung 1.3. Dabei ist ein interessanter Aspekt, dass die Anregungslücke der Leiter sich schließt, wenn die Zwischenkettenkopplung verschwindet, da das System dann aus zwei unabhängigen Ketten besteht, die ein lückenloses Spektrum besitzen. Für jede endliche Kopplung weist das System jedoch einen Gap $\Delta > 0$ auf [15]. Daran sieht man schon, dass die Leiter in der Tat eine deutlich von der Spinkette verschiedene Physik zeigt. Darüber hinaus zeigt sich, dass die Elementaranregungen der isolierten Kette (asymptotisch) freie Spinonen sind, während eine Wechselwirkung zwischen den Ketten die Spinonen aneinander bindet, so dass die elementaren Anregungen der Leiter Spin-1-Objekte sind, also Triplets.

Ein alternativer Zugang zur Beschreibung der Leiter geht über ein *dimerisiertes* System. Der Grundgedanke dabei ist die Vorstellung, dass es zwei unterschiedlich starke Kopplungen gibt, die das Gitter in einen Satz von starken Bonds und einen Satz von schwachen aufteilen (vgl. Abbildung 1.5). Die Spins binden über die starken

Bonds enger aneinander und bilden ein Dimer, so dass die schwachen Bonds vielmehr eine Wechselwirkung zwischen den Dimeren als zwischen individuellen Spins vermitteln. Tatsächlich gibt es reale Substanzen, die infolge von Gitterverzerrungen eine intrinsische Dimerisierung zeigen. Prominente Beispiele sind das Spin-Peierls-aktive CuGeO_3 unterhalb 14 K [5] und $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ [21, 22].

Dimerisierung ergibt sich beispielsweise aus dem Modell gekoppelter Ketten im Limes *starker* Kettenkopplung $J_\perp \gg J_\parallel$, da hier die die Sprossen der Leiter entkoppeln und damit Dimere bilden. Ein allgemeiner Ansatz kann als Spezialfall des RVB-Zustandes aufgefasst werden, bei dem nur ein einziger Produktzustand von Singulett beiträgt [23]. Diese seien ausschließlich durch die Bindung benachbarter Spins gebildet und regelmäßig auf der Leiter angeordnet (beispielsweise auf den Sprossen). Im Modell erfasst man diese Anordnung, indem man Bonds, auf denen ein Singulett sitzt, eine stärkere Kopplung zuordnet als Bonds, die kein Singulett tragen. Damit bekommt die Leiter eine Dimerisierung, da jeweils zwei benachbarte Spins ein Dimer bilden (s. Abbildung 1.3). Nimmt man an, diese Dimere wären isoliert, so ist das System offenbar eine Spin-Flüssigkeit, da keine langreichweitigen Korrelationen möglich sind. Den wahren Verhältnissen in der Leiter nähert man sich, indem man allmählich eine Wechselwirkung zwischen den Dimeren einschaltet. Wir werden diesen Zugang ausführlich in Abschnitt 1.3 beleuchten.

1.1.2 Spin- $\frac{1}{2}$ -Quadratgitter

Eingangs wurde bereits auf die Bedeutung des zweidimensionalen Quadratgitters im Zusammenhang mit den Hoch- T_c -Supraleitern hingewiesen. Das für viele dieser Systeme als Muttersubstanz dienende La_2CuO_4 ist im Grundzustand ein antiferromagnetischer Isolator, dessen Kristallstruktur Ebenen aufweist, in denen Kupfer- und Sauerstoffionen regelmäßig angeordnet sind, und die durch Zwischenschichten gut voneinander isoliert sind. Die Kupferatome tragen magnetische Momente, die über Sauerstoffatome miteinander wechselwirken. Eine solche Kopplung über Zwischengitterplätze nennt man Superaustausch. Die Anordnung der Kupferatome entspricht näherungsweise einem Quadratgitter, so dass die magnetischen Eigenschaften von La_2CuO_4 durch ein 2D-Heisenberg-Modell auf einem Quadratgitter relativ gut erfasst werden [7]. Aus dem Experiment ist bekannt [2], dass die Kupferoxidebenen in La_2CuO_4 bei $T = 0$ im Einklang mit dem Heisenberg-Modell langreichweitige Néel-Ordnung zeigen [24–26].

Wie bereits gezeigt worden ist, hängen die Eigenschaften eines Spinsystems entscheidend von der Stärke der Fluktuationen ab. Sie entscheiden darüber, ob der Grundzustand langreichweitige Ordnung aufweist oder eine Spin-Flüssigkeit mit endlicher Anregungslücke ist. Da man sich das Quadratgitter als aus Leitern aufgebaut vorstellen kann, ist es überraschend, dass es nicht ebenfalls eine Spinflüssigkeit ist. Offenbar verlieren in der Ebene die Quantenfluktuationen in Folge der größeren Koordinationszahl an Bedeutung und der Néel-geordnete Zustand wird energetisch bevorzugt.

Nehmen wir an, das Quadratgitter sei aus gekoppelten Leitern aufgebaut mit einer einstellbaren Wechselwirkungsstärke. Für isolierte Leitern ist dieses System eine Spinflüssigkeit. Dagegen ist es Néel-geordnet, wenn die Kopplung zwischen den

Leitern genauso groß wird wie die Wechselwirkungen innerhalb der Leitern. Es muss daher eine kritische Kopplungsstärke der Leitern geben, bei der sich das Verhalten des Systems drastisch ändert: Es findet ein Phasenübergang statt von einem ungeordneten RVB-Zustand in einen Néel-geordneten Zustand. Mit anderen Worten, dieses Modell befindet sich im Zwiespalt zwischen zwei *konkurrierenden* Grundzuständen, die von der Stärke der Fluktuationen abhängig sind [27]. Die Fluktuationen sind für isolierte Leitern so stark, dass es keine langreichweitige magnetische Ordnung geben kann. Mit wachsender Wechselwirkung zwischen den Leitern werden die Fluktuationen aber immer schwächer, bis schließlich Néel-Ordnung einsetzt [28].

Das bemerkenswerte an diesem Phasenübergang ist die Tatsache, dass er bei $T = 0$ stattfindet und insofern grundsätzlich verschieden ist von klassischen Phasenübergängen. Diese werden nämlich von thermischen Fluktuationen getrieben, die mit steigender Temperatur immer größer werden und schließlich jede Ordnung zerstören. Hier handelt es sich jedoch um einen *Quantenphasenübergang*, der von der quantenmechanischen Unschärfe der Spins herrührt. Das System nimmt am kritischen Punkt einen anderen Grundzustand ein, und auch die Elementaranregungen haben in der Regel völlig unterschiedliche Eigenschaften. Im vorliegenden Fall sind dies die Spinwellen einerseits und (möglicherweise gebundene) Spinonen andererseits. In diesem Sinne beeinflusst ein quantenkritischer Punkt also auch das Verhalten des Systems bei endlichen Temperaturen [8].

1.2 Ringaustausch

Das Heisenberg-Modell mit Nächstnachbar-Wechselwirkung liefert für Spin- $\frac{1}{2}$ -Leitern und Quadratgitter gute qualitative Vorhersagen der Beobachtungen [2]. Dennoch zeigt sich, dass mit diesem einfachen Ansatz nur eine unvollständige Beschreibung möglich ist, und eine erhebliche Verbesserung erzielt wird durch Einbeziehen von Vierspinwechselwirkungen in Form von *Ringaustausch* [29–34]. Dieser Beitrag stellt die nächst höhere Ordnung in der Störungsentwicklung des Hubbard-Modells dar und ermöglicht eine bessere Übereinstimmung zwischen experimentellen Ergebnissen und theoretischen Vorhersagen. Der Name kommt daher, dass die Wirkung des Ringaustausches einer zyklischen Permutation der Spins auf einer (quadratischen) Plakette des Gitters entspricht (vgl. Abbildung 1.4).

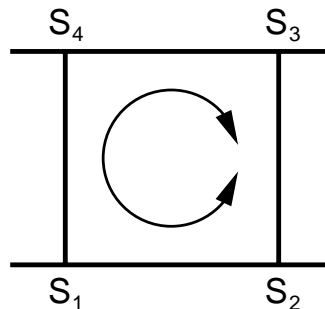


Abbildung 1.4: Zyklischer Vierspinaustausch auf einer Plakette.

Der den Ringaustausch vermittelnde Operator ist über den symmetrisierten (also

einen hermiteschen Beitrag zum Hamiltonoperator liefernden) Operator der zyklischen Permutation P_{ijkl} auf einer Plakette definiert

$$\mathcal{H}_{\text{cyc}} = J_{\text{cyc}} \frac{1}{2} \sum_{\langle i,j,k,l \rangle} (P_{ijkl} + P_{ijkl}^{-1}) \quad . \quad (1.3)$$

Die Summationsindizes $\langle i, j, k, l \rangle$ bilden eine Plakette, und J_{cyc} ist ein Modellparameter, der durch das Experiment angepasst oder aus mikroskopischen Modellen approximativ bestimmt werden muss. In der Literatur wird teilweise eine alternative Darstellung für den Ringaustausch verwendet. Mit dem Permutationsoperator für zwei Spins $P_{12} = \frac{1}{2} + 2\mathbf{S}_1\mathbf{S}_2$ lässt sich $P_{1234} = P_{12}P_{13}P_{14}$ durch die Spinoperatoren auf der Plakette ausdrücken [32]

$$P_{1234} + P_{1234}^{-1} = 4[(\mathbf{S}_1\mathbf{S}_2)(\mathbf{S}_3\mathbf{S}_4) + (\mathbf{S}_1\mathbf{S}_4)(\mathbf{S}_2\mathbf{S}_3) - (\mathbf{S}_1\mathbf{S}_3)(\mathbf{S}_2\mathbf{S}_4)] \\ + \mathbf{S}_1\mathbf{S}_2 + \mathbf{S}_1\mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_1\mathbf{S}_4 + \mathbf{S}_2\mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_2\mathbf{S}_4 + \mathbf{S}_3\mathbf{S}_4 + \frac{1}{4} \quad . \quad (1.4)$$

Der Vierspinanteil dieses Operators konnte auf der Grundlage der störungstheoretischen Behandlung eines mikroskopischen Modells zur Beschreibung der CuO_2 -Ebenen in La_2CuO_4 als die relevante Korrektur zum Heisenberg-Modell identifiziert werden [33]. Hier sollen deshalb die neben den Vierspinwechselwirkungen auftretenden zusätzlichen Heisenberg-Anteile nicht zum Ringaustausch gezählt werden, da sie lediglich die Nächstnachbarkopplungen renormieren. Ebenso wird die Diagonalkopplung $\mathbf{S}_1\mathbf{S}_3 + \mathbf{S}_2\mathbf{S}_4$ nicht berücksichtigt, der sich als unbedeutend gegenüber den Vierspintermen herausgestellt hat. Es wird daher im Folgenden für den Ringaustausch nur der Operator der Vierspinwechselwirkungen benutzt

$$\mathcal{H}_{\square} = 2J_{\text{cyc}} \sum_{\langle i,j,k,l \rangle} [(\mathbf{S}_i\mathbf{S}_j)(\mathbf{S}_k\mathbf{S}_l) + (\mathbf{S}_i\mathbf{S}_l)(\mathbf{S}_j\mathbf{S}_k) - (\mathbf{S}_i\mathbf{S}_k)(\mathbf{S}_j\mathbf{S}_l)] \quad . \quad (1.5)$$

Die Wirkungsweise des Ringaustausches lässt sich durch die symbolische Schreibweise $\text{---} + | \text{---} \times$ veranschaulichen, bei der die Skalarprodukte von Spinoperatoren durch Linien dargestellt werden. Hieran wird auch leicht deutlich, dass der Ringaustausch Frustration in das System bringt. Wie man sieht wird die Energie einer Plakette abgesenkt, wenn ein Paar nächster Nachbarn ferromagnetisch koppelt, da dann die beiden ersten Summanden in (1.5) negativ werden. Die für den Ringaustausch günstigste Konfiguration der Plakette ist also eine, in der drei Spins parallel korreliert sind und einer dazu antiparallel, was unvereinbar ist mit antiparalleler Korrelation wie sie das Heisenberg-Modell bevorzugt. Der Einfluss des Ringaustausches auf die Anregungsenergien ist a priori nicht klar, aber man darf erwarten, dass in Modellen mit endlicher Anregungslücke der Ringaustausch ein Kontrollparameter sein wird, mit dem der Betrag des Gaps variiert werden kann.

1.3 Bondbosonen-Methode

In dieser Arbeit werden die Eigenschaften von Spin- $\frac{1}{2}$ -Antiferromagneten in zwei Raumdimensionen bei $T=0$ untersucht. Für diese Systeme haben Sachdev und Bhatt

1990 ausgehend von der dimerisierten Phase (s. Abbildung 1.5) eine Beschreibung der Grundzustandseigenschaften vorgeschlagen, die auf den Zuständen von zwei zu einem Dimer gekoppelten Spins beruht [9]. Gehen wir zunächst vom Limes isolierter Dimere aus. Dieses System ist trivial und exakt lösbar.

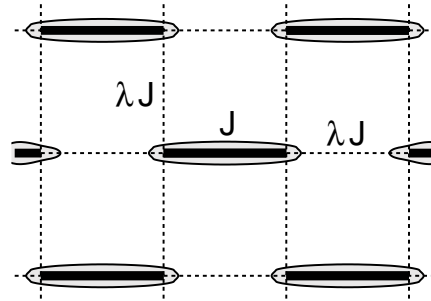


Abbildung 1.5: 2D-Antiferromagnet mit Dimerisierung: Starke Bonds mit Kopplung J sind durch dicke Linien dargestellt, Bondbosonen durch Ellipsen eingefasst; Wechselwirkungen der Dimere mit der Kopplung λJ sind gestrichelt dargestellt.

Im Grundzustand sind die Spins auf jedem Dimer mit einer Austauschwechselwirkung J zu Singulett gekoppelt, die Energie pro Dimer beträgt $-\frac{3}{4}J$. Da keine Wechselwirkung zwischen den Dimeren vorliegt, ist der Zustand magnetisch ungeordnet. Eine Elementaranregung besteht aus dem Aufbrechen eines Singulett (Spinflip) und erfordert eine Energie vom Betrage J . Der Zustand des Dimers hat dann Spin 1, ist also ein Triplet und damit dreifach entartet. Man wählt zur Beschreibung der Dimere eine Basis aus einem Singulett und drei Triplets, die aus einem fiktiven Vakuum $|0\rangle$ erzeugt werden, in dem überhaupt keine Spins auf dem Gitter sitzen:

$$\begin{aligned}
 |s\rangle &= s^\dagger|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \\
 |t_x\rangle &= t_x^\dagger|0\rangle = -\frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\uparrow\rangle - |\downarrow\downarrow\rangle) \\
 |t_y\rangle &= t_y^\dagger|0\rangle = \frac{i}{\sqrt{2}}(|\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle) \\
 |t_z\rangle &= t_z^\dagger|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \quad ,
 \end{aligned} \tag{1.6}$$

wobei die Triplets so definiert sind, dass sie der Polarisation der Spinoperatoren entsprechen (dies wird sich bei Systemen mit Spinrotationsinvarianz als hilfreich erweisen). Sie können durch eine einfache Basistransformation auf die bekannten Eigenzustände $\{|\uparrow\uparrow\rangle, |t_z\rangle, |\downarrow\downarrow\rangle\}$ des Operators S_z^{dimer} der z-Komponente des Gesamtspins eines Dimers zurückgeführt werden. Die Erzeuger- und Vernichtoperatoren zu den Zuständen (1.6) erfüllen die kanonischen Vertauschungsrelationen für Bosonen,

$$[s, s^\dagger] = 1 \quad [t_\alpha, t_\beta^\dagger] = \delta_{\alpha,\beta} \quad , \tag{1.7}$$

alle anderen Kommutatoren verschwinden. Man bezeichnet diese Teilchen und die zugehörigen Operatoren als *Bondbosonen*.

Durch die Beschreibung der Dimere in dieser Basis aus vier *unabhängigen* Teilchen ist der Hilbertraum künstlich vergrößert worden, da noch nicht berücksichtigt worden ist, dass auf jedem Dimer genau ein Teilchen sitzen muss. Man führt daher die Teilchenzahlerhaltung als Nebenbedingung ein

$$s_i^\dagger s_i + \sum_{\alpha} t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} - 1 = 0 \quad . \quad (1.8)$$

Diese ist *lokal* zu erfüllen und wird im Hamiltonoperator mit einem Lagrangeparameter μ_i berücksichtigt, der als *chemisches Potenzial* interpretiert werden kann, da er die Erzeugung von Triplets mit der Vernichtung von Singulets reguliert. Dabei ist die Teilchenzahlerhaltung *im Mittel* gewährleistet, d. h. der Erwartungswert der Teilchenzahl auf jedem Dimer ist Eins. Dagegen können Fluktuationen auf Grund quantenmechanischer Unschärfe mit Hilfe eines chemischen Potenzials nicht kontrolliert werden. Im Rahmen einer Molekularfeld-Näherung werden diese Fluktuationen nicht berücksichtigt. Der Gedanke hinter dieser Näherung ist die Vorstellung, dass in einem Vielteilchensystem die Wechselwirkungen der Teilchen untereinander durch ein effektives Feld approximiert werden können. Dieses Vorgehen trägt daher auch den Namen *Mean-field-Näherung* und besteht in der Annahme, dass in Produkten von Operatoren der Form $\mathcal{O} = \mathcal{A}\mathcal{B}$ der das Molekularfeld repräsentierende Operator durch seinen Erwartungswert angenähert werden kann, $\mathcal{O}_{\text{MF}} = \langle \mathcal{A} \rangle \mathcal{B} + \mathcal{A} \langle \mathcal{B} \rangle - \langle \mathcal{A} \rangle \langle \mathcal{B} \rangle$.

Der erste angeregte Zustand eines Systems aus $2N$ Spins ist für isolierte Dimere $3N$ -fach entartet und durch ein einzelnes Triplet gegeben bezogen auf den Grundzustand $|\phi_0\rangle = \prod_i s_i^\dagger |0\rangle$, der als Produktzustand aus Singulets das Vakuum der Triplets definiert. Sobald eine endliche Wechselwirkung λJ zwischen den Dimeren eingeschaltet wird, kann das Triplet hüpfen und die Anregungsenergie wird impulsabhängig. Die Entartung ist damit bis auf die Polarisation der Triplets aufgehoben.

Die Spinoperatoren werden in zweiter Quantisierung durch die Erzeuger- und Vernichtoperatoren der vier Basiszustände ausgedrückt,

$$\begin{aligned} S_{\alpha}^{(1)} &= \frac{1}{2} (s^\dagger t_{\alpha} + t_{\alpha}^\dagger s - i \sum_{\beta,\gamma} \epsilon_{\alpha\beta\gamma} t_{\beta}^\dagger t_{\gamma}) \\ S_{\alpha}^{(2)} &= \frac{1}{2} (-s^\dagger t_{\alpha} - t_{\alpha}^\dagger s - i \sum_{\beta,\gamma} \epsilon_{\alpha\beta\gamma} t_{\beta}^\dagger t_{\gamma}) \quad , \end{aligned} \quad (1.9)$$

wobei die Indizes α, β und γ alle drei Ortskomponenten durchlaufen und die Indizes 1 und 2 die Position des Spins im Dimer bezeichnen, entsprechend den Zuständen (1.6). Durch die Vertauschungsrelationen der Bondbosonen ist auch die Drehimpulsalgebra der Spinoperatoren gewährleistet.¹ Damit kann der Hamiltonoperator

¹Formal lassen sich auch fermionische Kommutatorrelationen einführen, die die Spinalgebra korrekt reproduzieren, jedoch kann daraus keine sinnvolle Molekularfeld-Theorie mehr abgeleitet werden [9].

des Systems in zweiter Quantisierung in den Erzeugern und Vernichtern der Bondbosonen ausgedrückt werden.

Neben dem Problem der Teilchenzahlerhaltung enthält die Konstruktion mit vier Teilchen, die aus einem unphysikalischen Vakuum heraus erzeugt werden, die Schwäche, dass hier scheinbar vier Freiheitsgrade existieren. Tatsächlich ist der Grundzustand aber nicht das Bosonenvakuum $|0\rangle$, sondern das Triplettvakuum $|\phi_0\rangle$ (s. o.), das nur drei mögliche Anregungen zulässt. Ein wesentlicher Bestandteil der Bondbosonen-Methode ist deshalb die Annahme, dass die Singulettts als Bosekondensat vorliegen und ihre Erzeuger- und Vernichteroperatoren einen endlichen Erwartungswert $\langle s_i^\dagger \rangle = \langle s_i \rangle = \bar{s}$ annehmen.² Dies lässt sich damit begründen, dass der lokale Hamiltonoperator auf einem Dimer in zweiter Quantisierung in den Bondbosonen

$$JS^{(1)}\mathbf{S}^{(2)} = -\frac{3}{4}Js^\dagger s + \frac{1}{4}J \sum_{\alpha} t_{\alpha}^{\dagger} t_{\alpha} \quad (1.10)$$

offenbar eine Kondensation der Singulettts antreibt, da dadurch die Energie des Dimers abgesenkt wird. Man beachte aber, dass der Erwartungswert \bar{s} nicht mit dem Erwartungswert der Teilchenzahl $\langle s^\dagger s \rangle = \bar{s}^2$ zu verwechseln ist. In der ungeordneten Phase gilt beispielsweise auf Grund der Spinrotationsinvarianz für die Triplettts $\langle t_{\alpha}^{\dagger} t_{\beta} \rangle = C\delta_{\alpha,\beta}$ mit $C \neq 0$, aber $\langle t_{\alpha}^{\dagger} \rangle = \langle t_{\alpha} \rangle = 0$.

Es soll an dieser Stelle ausdrücklich darauf hingewiesen werden, dass der Parameter \bar{s} innerhalb der Bondoperatoren-Technik *nicht* als Erwartungswert einer Messgröße aufzufassen ist, der im Laufe der Behandlung berechnet werden kann. Statt dessen handelt es sich um einen Variationsparameter der Methode, der eine Schar von Hamiltonoperatoren parametrisiert.

Da in translationsinvarianten Systemen von einer Ortsabhängigkeit des chemischen Potentials abgesehen werden kann, enthält das Problem mit μ noch einen weiteren Variationsparameter sowie den Modellparameter λ , der die Dimerisierung einstellt. Inhalt der Bondbosonen-Methode ist nun die Bestimmung der Variationsparameter. Zu diesem Zweck betrachtet man den Hamiltonoperator des Problems, beispielsweise das Heisenberg-Modell (1.1). Man stellt den Hamiltonoperator in zweiter Quantisierung in der Basis der Bondbosonen dar und baut die Nebenbedingungen (1.8) mit dem chemischen Potenzial μ als Variationsparameter ein (hier wird zum ersten Mal genähert). Als nächstes geht die Modellannahme der Bosekondensation ein, indem alle Singulettoperatoren durch den Parameter \bar{s} ersetzt werden. Eventuell noch vorhandene biquadratische Beiträge in den Triplettoperatoren werden in Molekularfeld-Entkopplung durch bilineare Beiträge genähert (die technische Umsetzung wird in Abschnitt 2.1.2 beschrieben). In der Regel enthält der so gewonnene Hamiltonoperator in Bondbosonen-Darstellung noch nicht-diagonale Anteile. Eine Basistransformation liefert schließlich den diagonalisierten Hamiltonoperator und die Grundzustandsenergie als Funktion der Parameter λ , \bar{s} und μ . Die Lösungen zu festem λ findet man, indem \bar{s} und μ selbstkonsistent bestimmt werden. Dies

²Es wird stets $\bar{s} \in \mathbb{R}$ angenommen. Eine eventuelle Phase des Erwartungswertes kann durch eine Basistransformation weggeicht werden, jedoch bieten die in dieser Arbeit betrachteten Hamiltonoperatoren mit reellen Koeffizienten keinen Anlass für eine solche Phase.

geschieht mit Hilfe der *Sattelpunktsgleichungen*

$$\frac{\partial \langle \mathcal{H} \rangle}{\partial \bar{s}} = 0 \quad (1.11)$$

$$\frac{\partial \langle \mathcal{H} \rangle}{\partial \mu} = 0 \quad . \quad (1.12)$$

Gleichung (1.11) ist als Variation nach \bar{s} zu verstehen, die die Grundzustandsenergie minimiert. Gleichung (1.12) gewährleistet, dass die Nebenbedingung (1.8) in Molekularfeld-Näherung erfüllt ist. Dies wird klar, wenn man sich erinnert, dass der Hamiltonoperator die Form $\mathcal{H}_u - \mu \mathcal{V}_{\text{NB}}$ hat mit dem Hamiltonoperator \mathcal{H}_u ohne Berücksichtigung der Nebenbedingung und der Störung \mathcal{V}_{NB} , gegeben durch die linke Seite von (1.8). Wie in Anhang B dargelegt wird, ist die Aussage von (1.12), dass der *Erwartungswert* von \mathcal{V}_{NB} verschwindet. Damit ist die Nebenbedingung im *Mittel*, d. h. unter Vernachlässigung von Fluktuationen, erfüllt. Im Folgenden wird dies kurz als Teilchenzahlerhaltung bezeichnet.

Für $\lambda = 0$ ist die Lösung bekannt, da isolierte Dimere im Grundzustand als Singulett vorliegen, die die Energie $-\frac{3}{4}J$ haben und durch eine Lücke vom Betrag J vom ersten angeregten Zustand getrennt sind. Der lokale Hamiltonoperator (1.10) sieht also unter Berücksichtigung der Nebenbedingung wie folgt aus:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}^{\text{lok}} &= -\frac{3}{4}J\bar{s}^2 + \frac{1}{4}J \sum_{\alpha} t_{\alpha}^{\dagger} t_{\alpha} - \mu \left(\bar{s}^2 + \sum_{\alpha} t_{\alpha}^{\dagger} t_{\alpha} - 1 \right) \\ &= -\frac{3}{4}J + J \sum_{\alpha} t_{\alpha}^{\dagger} t_{\alpha} \quad . \end{aligned} \quad (1.13)$$

Daraus folgt, dass $\bar{s} = 1$ und $\mu = -\frac{3}{4}$ gelten muss. Die Wechselwirkung der Dimere untereinander kann als Störung verstanden werden, die die Singulett delokalisiert. Sie führt aus der Sichtweise erster Ordnung Störungstheorie dazu, dass der Grundzustand eine Beimischung von Triplett bekommt, wodurch der Erwartungswert der Singulett abnimmt. Außerdem nimmt infolge von Niveauabstoßung des Grundzustandes vom ersten angeregten Zustand das chemische Potenzial dem Betrage nach zu. Methodisch geht man nun folgendermaßen vor: Man beginnt bei dem Startpunkt $\lambda = 0$, an dem die Eigenschaften des Systems bekannt sind, und bestimmt die Variationsparameter \bar{s} und μ nun für Schrittweise zunehmende Werte von λ numerisch aus den Sattelpunktsgleichungen (1.11) und (1.12).

Die Bondoperatoren-Methode legt stets ein dimerisiertes System zu Grunde, daher ist die Wahl des Dimerisierungsmusters, sofern sie nicht durch die Kristallstruktur vorgegeben ist, ein Freiheitsgrad der Näherung. Verschiedene Dimerisierungsmuster desselben Systems fallen aber bei $\lambda = 1$ zusammen, so dass sie hier dieselben Ergebnisse liefern sollten, falls die Näherungen in diesem Bereich noch angemessen sind. Aus dem Ansatz ist ersichtlich, dass die Lösungen dieser Vorgehensweise für kleine Werte von λ zuverlässig sein sollten. Ein Vergleich mit Ergebnissen aus störungstheoretischen Untersuchungen wird zeigen, inwiefern auch für den interessanten Bereich um $\lambda \approx 1$ sinnvolle Ergebnisse zu erwarten sind. Die Bondbosonentechnik kann auf die verschiedensten Systeme, jeweils mit unterschiedlichen Dimerisierungsmustern angewendet werden. Es können neben dem Heisenberg-Modell

auch Erweiterungen um Wechselwirkungen mit übernächsten Nachbarn [9], externe Magnetfelder [35] und Dotierung [36] behandelt werden, wovon in dieser Arbeit jedoch abgesehen wird.

Kapitel 2

Spinleitern

2.1 Sprossendimerisierung

Als erste Anwendung der Bondbosonen-Methode wird die zweibeinige Spin- $\frac{1}{2}$ -Leiter mit Sprossendimerisierung behandelt. Dieses Modell wird durch den folgenden Hamiltonoperator in Spindarstellung beschrieben

$$\mathcal{H} = J \sum_i \mathbf{s}_i^{(1)} \mathbf{s}_i^{(2)} + \lambda J \sum_{i, l=1,2} \mathbf{s}_i^{(l)} \mathbf{s}_{i+1}^{(l)} \quad . \quad (2.1)$$

Der Index i zählt die Dimere durch, $l \in \{1, 2\}$ gibt die Position des Spins auf dem Dimer an. Der Faktor $\lambda \geq 0$ stellt die Dimerisierung ein und misst das Verhältnis von Holmkopplung zu Sprosskopplung (vgl. Abb. 2.1). Hier und im Folgenden wird stets von periodischen Randbedingungen ausgegangen, so dass Translationsinvarianz entlang der Leiter gewährleistet ist.

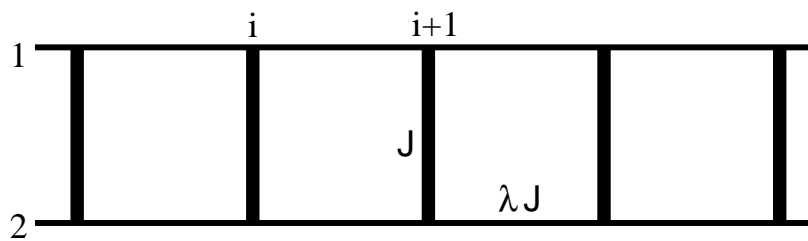


Abbildung 2.1: Spinleiter mit Sprossendimerisierung [37]

Die zweibeinige Spin- $\frac{1}{2}$ -Leiter mit Sprossendimerisierung wurde bereits 1994 von Gopalan *et al.* [37] mit der Bondbosonen-Methode untersucht. Sie finden Diskrepanzen zwischen ihren Ergebnissen und Resultaten anderer Untersuchungen [38] und haben daher eine Selbstenergie-Korrektur $\propto \lambda^2$ eingeführt. Es zeigt sich, dass ein Fehler in der Rechnung zu Abweichungen in derselben Größenordnung führt. Deshalb wird dieses System erneut behandelt und daran die prinzipielle Vorgehensweise der Bondbosonen-Methode demonstriert.

Mit der Darstellung (1.9) der Spins lässt sich der Hamiltonoperator (2.1) in zweiter Quantisierung in den Bondbosonen ausdrücken, wobei nur solche Summanden

beitragen können, die die Teilchenzahlerhaltung respektieren, also auf jeder Sprosse jeweils genau einen Erzeuger und Vernichter haben. Eine weitere Erhaltungsgröße des Systems ist die Parität. Da Terme mit einer ungeraden Anzahl von Singulettoperatoren bei Spiegelung an einer Ebene senkrecht zu den Sprossen in der Mitte zwischen den Holmen zu einer Paritätsänderung führen, können diese folglich keinen Beitrag zum Hamiltonoperator liefern. Dieser nimmt unter Berücksichtigung der Nebenbedingung (1.8) die folgende Gestalt an

$$\begin{aligned}
\mathcal{H} &= \mathcal{H}_0 + \lambda(\mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2) \\
\mathcal{H}_0 &= J \sum_i \left(-\frac{3}{4} s_i^\dagger s_i + \frac{1}{4} \sum_\alpha t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \right) - \sum_i \mu_i \left(s_i^\dagger s_i + \sum_\alpha t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} - 1 \right) \\
\mathcal{H}_1 &= \frac{1}{2} J \sum_{i,\alpha} \left(t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}^\dagger s_i s_{i+1} + t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} s_{i+1}^\dagger s_i \right) + \text{h.c.} \\
\mathcal{H}_2 &= \frac{1}{2} J \sum_{i,\alpha,\beta} \left(t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\beta}^\dagger t_{i+1,\alpha} t_{i,\beta} - t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}^\dagger t_{i,\beta} t_{i+1,\beta} \right) .
\end{aligned} \tag{2.2}$$

\mathcal{H}_0 beschreibt den wechselwirkungsfreien Anteil, also den Energiebeitrag isolierter Dimere, und ist diagonal in den Bondbosonen. \mathcal{H}_1 enthält nur Wechselwirkungen von Singulett mit Triplett, er ist also von zweiter Ordnung in den Triplettoperatoren, während \mathcal{H}_2 Triplett-Triplett-Wechselwirkungen beschreibt und von vierter Ordnung ist. Beide sind nicht-diagonal.

2.1.1 Näherung für die Triplettodynamik

Die in (2.2) angegebene Aufspaltung des Hamiltonoperators wurde bewusst so vorgenommen, dass der Einfluss der Triplett-Triplett-Wechselwirkung \mathcal{H}_2 separat untersucht werden kann (vgl. Kapitel 2.1.2). Denn wegen $\bar{s}^2 \gg \langle t_\alpha^\dagger t_\alpha \rangle$ erwartet man, dass dieser Beitrag von geringerer Bedeutung ist. Er wird daher zunächst vernachlässigt, $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda\mathcal{H}_1$. Der Bondbosonen-Formalismus beschränkt sich in diesem Falle auf das Auskondensieren der Singulettoperatoren und den Übergang zu einem ortsunabhängigen chemischen Potenzial, also der Reduktion der lokalen Nebenbedingungen (1.8) zu einer globalen, die Teilchenzahlerhaltung nur im Mittel über das gesamte System fordert. Da die Impulsabhängigkeit der Anregungsenergie bestimmt werden soll, nutzt man die Translationsinvarianz des Problems aus und wendet eine Fourier-Transformation auf die Triplettoperatoren an

$$t_{i,\alpha}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{k \in 1.\text{BZ}} t_{k,\alpha}^\dagger e^{ikr_i} , \tag{2.3}$$

wobei N die Anzahl der Dimere auf einer Leiter von $2N$ Spins ist. Die Gitterkonstante ist hier und im Folgenden auf 1 gesetzt. Der fouriertransformierte Hamiltonoperator in Molekularfeld-Näherung nimmt dann eine charakteristische Gestalt an, in der Molekularfeld-Grundzustandsenergie, diagonalen und nicht-diagonalen Anteil klar getrennt sind. Er wird im Folgenden als der *Bondbosonen*-Hamiltonoperator

des Systems bezeichnet und hat hier die Gestalt

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_b &= E_0 + \sum_{k,\alpha} [\Lambda_k t_{k,\alpha}^\dagger t_{k,\alpha} + \Delta_k (t_{k,\alpha}^\dagger t_{-k,\alpha}^\dagger + t_{k,\alpha} t_{-k,\alpha})] \\ E_0 &= N \left(-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu \right) \\ \Lambda_k &= \frac{1}{4} J - \mu + \lambda J \bar{s}^2 \cos k \\ \Delta_k &= \frac{1}{2} \lambda J \bar{s}^2 \cos k \quad .\end{aligned}\tag{2.4}$$

Zur Diagonalisierung von \mathcal{H}_b dient eine Bogoljubow-Transformation, ein Standardverfahren, um das ursprüngliche Problem auf ein effektiv wechselwirkungsfreies Modell abzubilden. Dazu werden neue Basiszustände $\gamma_{k,\alpha}$ konstruiert

$$\gamma_{k,\alpha} = u_k t_{k,\alpha} + v_k t_{-k,\alpha}^\dagger \tag{2.5}$$

$$u_k^2 - v_k^2 = 1 \quad . \tag{2.6}$$

Mit der Normierung (2.6) erfüllen die neuen Basiszustände bosonische Vertauschungsrelationen. Die reellen Koeffizienten u_k und v_k werden so bestimmt, dass der transformierte Hamiltonoperator in der neuen Basis diagonal ist

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_{\text{eff}} &= E + \sum_{k,\alpha} \omega_k \gamma_{k,\alpha}^\dagger \gamma_{k,\alpha} \\ E &= E_0 + \frac{1}{2} \sum_{k,\alpha} (\omega_k - \Lambda_k) \\ \omega_k &= \sqrt{\Lambda_k^2 - 4\Delta_k^2} \quad .\end{aligned}\tag{2.7}$$

Man sieht, dass die Bogoljubow-Transformation nur solange sinnvoll ist, wie ω_k reell bleibt, d. h. wie $\Lambda_k^2 > 4\Delta_k^2$. Der Hamiltonoperator (2.7) liefert direkt die Grundzustandenergie und das Anregungsspektrum des Systems.

Um die Parameter \bar{s} und μ zu bestimmen, müssen die Sattelpunktgleichungen (1.11) und (1.12) gelöst werden. Mit der Grundzustandenergie $E = \langle \mathcal{H} \rangle$ aus (2.7) lauten die Bestimmungsgleichungen

$$\bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2} \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} \frac{\Lambda_k}{\omega_k} = 0 \tag{2.8}$$

$$\frac{3}{2} + 2\frac{\mu}{J} - 3\lambda \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} \frac{\Lambda_k - 2\Delta_k}{\omega_k} \cos k = 0 \quad . \tag{2.9}$$

Gleichungen dieses Typs werden uns bei allen Systemen, die in dieser Arbeit untersucht werden, begegnen. In einfachen Fällen wie hier ist es möglich, die Integration analytisch durchzuführen und durch vollständige elliptische Integrale auszudrücken. Dies ist in Anhang A gezeigt. In Fällen, bei denen die Diagonalanteile im Bondbosonen-Hamiltonoperator dieselbe k -Abhängigkeit wie die Nicht-Diagonalanteile haben,

wie es für dieses System zutrifft, lassen sich die Sattelpunktgleichungen zusammenfassen zu einer einzigen Bestimmungsgleichung für eine abgeleitete Größe. Man findet nämlich mit

$$d = \frac{2\lambda J \bar{s}^2}{\frac{1}{4}J - \mu} \quad (2.10)$$

und dem vollständigen elliptischen Integral erster Art

$$K(t) = \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\varphi}{\sqrt{1 - t^2 \sin^2 \varphi}} \quad , \quad (2.11)$$

dass sich 2λ [Gleichung (2.8)] + $\frac{1}{2}d$ [Gleichung (2.9)] zusammenfassen lässt zu

$$d - \lambda \left[5 - \frac{6}{\pi \sqrt{1+d}} K \left(\sqrt{\frac{2d}{1+d}} \right) \right] = 0 \quad . \quad (2.12)$$

Die Lösung von (2.12) zu festem λ kann numerisch bestimmt werden. Die Anregungsenergie lässt sich darstellen als

$$\omega_k = \left(\frac{1}{4}J - \mu \right) \sqrt{1 + d \cos k}$$

und hat ihre Bandunterkante offenbar bei $k_0 = \pi$. Die Integrale in den Sattelpunktgleichungen hängen von \bar{s} und μ nur noch über d ab, so dass man (2.8) leicht nach \bar{s} auflösen und damit μ aus d bestimmen kann. Dies ermöglicht die Berechnung der Anregungslücke $\Delta = \omega_\pi$ und der Grundzustandsenergie E als Funktionen von λ mit

$$E = E_0 - \frac{3}{2}N \left(\frac{1}{4}J - \mu \right) \left(1 - \int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk}{2\pi} \sqrt{1 + d \cos k} \right) \quad . \quad (2.13)$$

Alle Rechnungen in dieser Arbeit sind bei $J = 1$ durchgeführt worden, da die Austauschkopplung in diesen effektiven Spinmodellen stets als Modellparameter zu interpretieren ist, der die Energieskala angibt. In den präsentierten Ergebnissen sind daher alle Energien in Einheiten der Austauschkopplung J angegeben, sofern nicht ausdrücklich auf eine Abweichung von dieser Konvention hingewiesen wird. Die Ergebnisse für die Spinleiter mit Sprossendimerisierung sind in Abbildung 2.2 zu sehen. Zunächst soll festgehalten werden, dass die Bondbosonen-Untersuchung im betrachteten Intervall $0 \leq \lambda \leq 2$ stets eine endliche Anregungslücke liefert und die Spinleiter damit als Spinflüssigkeit charakterisiert. Neben der Grundzustandsenergie und der Anregungslücke sind hier exemplarisch auch die Variationsparameter Singulettwartungswert und chemisches Potenzial gezeigt. Man erkennt, dass der Erwartungswert der Singulettoperatoren nur schwach von λ abhängt. Er wird durch eine Beimischung von Triplets zum Grundzustand reduziert. Die Grundzustandsenergie und das chemische Potenzial werden dadurch ebenfalls abgesenkt. Da eine Wechselwirkung zwischen Dimeren die Zustände zunehmend delokalisiert, bekommt die bei $\lambda = 0$ flache Dispersion (es gibt nur Anregungen bei $k = 0$ mit einer Energie

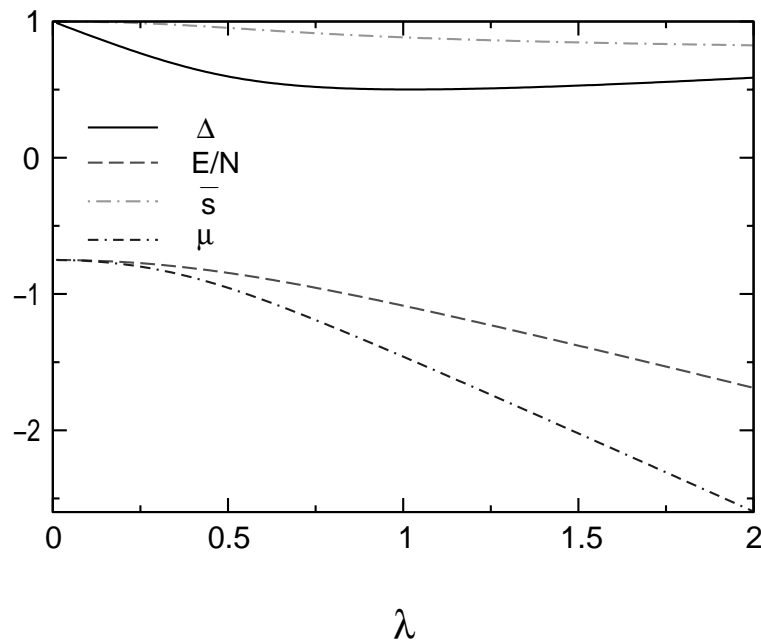


Abbildung 2.2: Ergebnisse der Spinleiter mit Sprossendimerisierung unter Vernachlässigung der Triplet-Triplett-Wechselwirkungen: Anregungslücke Δ , Grundzustandsenergie E pro Dimer, Singulettwartungswert \bar{s} und chemisches Potenzial μ als Funktionen der Dimerisierungsstärke λ ; alle Energien in Einheiten der Sprossenkopplung J .

$\omega = J$) eine endliche Bandbreite $\propto \lambda$ [15]. Dadurch wird die Anregungslücke abgesenkt, was in der Abbildung für $\lambda \lesssim 1$ auch zu sehen ist. In diesem Bereich scheint die Bondbosonen-Methode vernünftige Ergebnisse zu liefern, während für größere λ die Anregungslücke wieder zunimmt, was darauf hindeutet, dass die Näherungen dieses Abschnitts hier nicht mehr gerechtfertigt sind. Dieses Verhalten wird am Ende des nächsten Abschnitts an Hand des Vergleichs mit Resultaten aus einer störungstheoretischen Untersuchung diskutiert.

2.1.2 Berücksichtigung des Wechselwirkungsanteils

Wie eingangs des letzten Abschnitts dargelegt wurde geht man davon aus, dass der Einfluss der Tripletwechselwirkungen die qualitativen Eigenschaften der Spinleiter nicht beeinträchtigt. Um abschätzen zu können, wie stark die Ergebnisse durch die Näherung des vorigen Abschnitts beeinträchtigt werden, wird zum Vergleich die Rechnung für die zweibeinige Spinleiter mit Sprossendimerisierung einschließlich der Triplet-Triplett-Wechselwirkungen \mathcal{H}_2 im Hamiltonoperator (2.2) wiederholt. Dazu wird dieser Anteil zunächst der Molekularfeld-Näherung und Fourier-Transformation unterworfen.

Die Viertriplett-Terme in \mathcal{H}_2 werden mit Hilfe des Wickschen Theorems auf bilineare Ausdrücke reduziert. Da der Summand in \mathcal{H}_2 mit $\alpha = \beta$ verschwindet, benötigt man nur die Molekularfeld-Entkopplungen der Viertriplett-Operatoren

$$\mathcal{P} = t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\beta}^\dagger t_{i+1,\alpha} t_{i,\beta} \quad \text{und} \quad \mathcal{Q} = t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}^\dagger t_{i,\beta} t_{i+1,\beta}$$

$$\begin{aligned} \mathcal{P}^{\text{MF}} &= \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} \rangle t_{i+1,\beta}^\dagger t_{i,\beta} + \langle t_{i+1,\beta}^\dagger t_{i,\beta} \rangle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} - \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} \rangle \langle t_{i+1,\beta}^\dagger t_{i,\beta} \rangle \\ \mathcal{Q}^{\text{MF}} &= \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} \rangle t_{i,\beta} t_{i+1,\beta} + \langle t_{i,\beta} t_{i+1,\beta} \rangle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} - \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} \rangle \langle t_{i,\beta} t_{i+1,\beta} \rangle \end{aligned} \quad (2.14)$$

Dabei ist ausgenutzt worden, dass auf Grund der Spinrotationsinvarianz Paarerwartungswerte von Triplets unterschiedlicher Polarisation verschwinden. Denn wie oben gezeigt wurde, liegt das System in einer magnetisch ungeordneten Phase vor, so dass keine Vorzugsrichtung für den Spin ausgezeichnet ist. Da der Grundzustand nicht bekannt ist, können die Erwartungswerte in (2.14) nicht direkt bestimmt werden. Statt dessen benutzt man

$$\langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\beta} \rangle = P \delta_{\alpha\beta} \quad \text{und} \quad \langle t_{i,\alpha} t_{i+1,\beta} \rangle = Q \delta_{\alpha\beta} \quad . \quad (2.15)$$

Die reellen Zahlen P und Q sind in derselben Weise wie der Singulettwartungswert \bar{s} als Variationsparameter zu verstehen, die selbstkonsistent bestimmt werden. Mit diesen Paarerwartungswerten lautet der Wechselwirkungsanteil des Hamiltonoperators in Molekularfeld-Näherung

$$\mathcal{H}_2^{\text{MF}} = J \sum_{i,\alpha} [P(t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - P) - Q(t_{i,\alpha} t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - Q)] \quad . \quad (2.16)$$

Die Struktur dieses Operators ist dieselbe wie bei \mathcal{H}_1 , so dass sich an der Form des Bondbosonen-Hamiltonoperators (2.4) nichts ändert und nur die Koeffizienten um Beiträge proportional zu den Erwartungswerten (2.15) renormiert werden,

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_b &= E_0 + \sum_{k,\alpha} [\Lambda_k t_{k,\alpha}^\dagger t_{k,\alpha} + \Delta_k (t_{k,\alpha}^\dagger t_{-k,\alpha}^\dagger + t_{k,\alpha} t_{-k,\alpha})] \\ E_0 &= N \left[-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu - 3\lambda J (P^2 - Q^2) \right] \\ \Lambda_k &= \frac{1}{4} J - \mu + \lambda J (\bar{s}^2 + 2P) \cos k \\ \Delta_k &= \lambda J \left(\frac{1}{2} \bar{s}^2 - Q \right) \cos k \end{aligned} \quad (2.17)$$

Man gewinnt die Grundzustandsenergie und die Dispersion durch Diagonalisierung des Hamiltonoperators mittels Bogoljubow-Transformation. Sie hängen in diesem Fall von vier Parametern ab, die man aus entsprechenden Sattelpunktgleichungen erhält. Die Gleichungen (1.11) und (1.12) für \bar{s} und μ haben dieselbe Bedeutung wie im vorigen Abschnitt. Für die Triplettwartungswerte P und Q findet man die Bestimmungsgleichungen aus der Bedingung, dass die partiellen Ableitungen der Grundzustandsenergie nach P und Q verschwinden, da damit die Definitionen der Erwartungswerte reproduziert werden (dies wird im Anhang B gezeigt). Man erhält

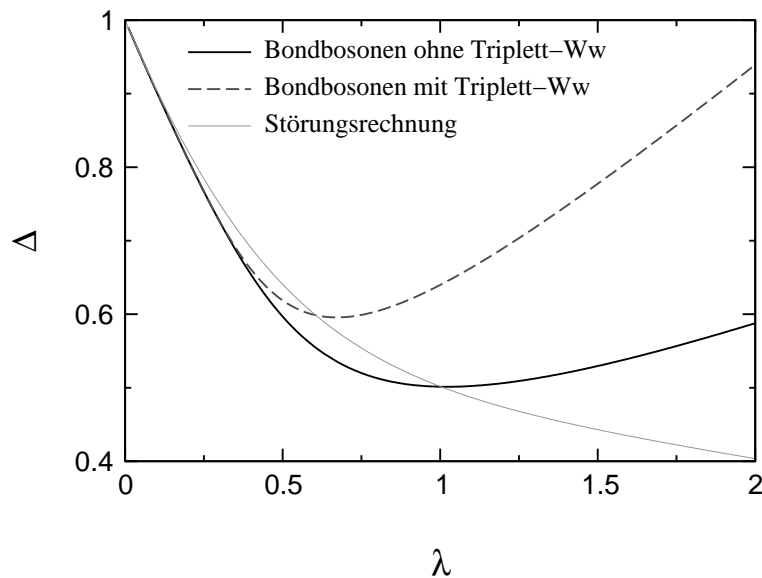


Abbildung 2.3: Ergebnisse für die Anregungslücke der zweibeinigen Leiter mit Sprossendimerisierung aus Störungsrechnung (dünne graue Linie) und Bondbosonen-Untersuchung unter Vernachlässigung (durchgezogene schwarze Linie, Rechnung in Abschnitt 2.1.1) bzw. Berücksichtigung (gestrichelt) der Triplet-Triplet-Wechselwirkungen.

somit das folgende nicht-lineare System von vier Gleichungen für vier Unbekannte:

$$\begin{aligned}
 \bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2} \int_{1. \text{ BZ}} \frac{dk \Lambda_k}{2\pi \omega_k} &= 0 \\
 \frac{3}{2} + 2\frac{\mu}{J} - 3\lambda \int_{1. \text{ BZ}} \frac{dk \Lambda_k - 2\Delta_k}{\pi \omega_k} \cos k &= 0 \\
 P - \frac{3}{2} \int_{1. \text{ BZ}} \frac{dk \Lambda_k}{2\pi \omega_k} \cos k &= 0 \\
 Q + 3 \int_{1. \text{ BZ}} \frac{dk \Delta_k}{2\pi \omega_k} \cos k &= 0 \quad .
 \end{aligned} \tag{2.18}$$

Die Integrale in (2.18) können, wie in Anhang A gezeigt ist, auf vollständige elliptische Integrale zurückgeführt werden. Das Gleichungssystem kann numerisch gelöst werden und liefert zu festem λ die Variationsparameter \bar{s} , μ , P und Q , mit denen schließlich die Anregungslücke und die Grundzustandsenergie berechnet werden können.

Zum Vergleich der Ergebnisse dieser Rechnung und der des vorigen Abschnitts wird aus den Lösungen der Sattelpunktgleichungen die Anregungslücke der zweibeinigen Spinleiter als Funktion von λ untersucht. In Abb. 2.3 ist zusätzlich das Ergebnis der Störungsrechnung gezeigt, wobei der Gap aus einer dlog-Padé-[5,5]-Extrapolation der Störungsreihe 11. Ordnung in λ bestimmt wurde.¹ Die Kurve

¹Sämtliche Störungsrechnungsdaten in diesem Kapitel wurden freundlicherweise von Kai Schmidt und Christian Knetter zur Verfügung gestellt.

fällt monoton ab auf einen in der Darstellung in Einheiten der Sprosskopplung endlichen Wert bei $\lambda \rightarrow \infty$ [15, 39, 40]. Im Gegensatz dazu zeigen die mit der Methode der Bondbosonen berechneten Kurven ein Minimum unterhalb von $\lambda = 1$, so dass darüber hinaus die Näherungen der Bondbosonen-Methode als nicht mehr gerechtfertigt angesehen werden muss. Tatsächlich ist die Abweichung der Lösung dieses Abschnitts von den Ergebnissen der Störungsrechnung bereits für $\lambda > \frac{1}{2}$ erheblich, während sie bei Vernachlässigung der Tripletwechselwirkungen noch bis etwa $\lambda = 1$ im Bereich von wenigen Prozent liegt.

In einer Reihenentwicklung der Lösung um $\lambda = 0$ findet man, dass die Berücksichtigung der Wechselwirkungsterme erst in dritter Ordnung in λ zum Gap beiträgt. Die Abweichung von der Störungsreihe ist aber zweiter Ordnung. Das bedeutet, dass die Näherung des vorigen Abschnitts die Qualität der Ergebnisse nicht beeinträchtigt, da die führende Ordnung der Abweichung von der Störungsreihe davon nicht betroffen ist.

Dieses Verhalten der Methode kann verschiedene Ursachen haben. Zu nennen ist hier, dass mit der Molekularfeld-Näherung die starken Korrelationen der Bosonen nicht angemessen erfasst werden. Die Bewegung eines Teilchens ist stets an die Bewegung der übrigen Teilchen gebunden (hardcore-Bosonen, anschaulich: der Platz, den das Teilchen verlässt, kann nicht leer bleiben, gleichzeitig muss ein anderes Teilchen seinen Platz aufgeben). In dieser Behandlung wird dem Vielteilchencharakter des Systems aber nicht Rechnung getragen, weil die Teilchenzahlerhaltung und die Wechselwirkung der Triplets nur im Mittel berücksichtigt worden sind. In ähnlicher Weise ist die Annahme der Bosekondensation der Singulets und die Bestimmung des Erwartungswertes aus einer Selbstkonsistenzgleichung zu bewerten. Auch hier werden die Singulets behandelt, als ob sie sich in einem statischen Molekularfeld bewegen würden.

Es ist schließlich festzuhalten, dass die Korrektur durch Wechselwirkungen keine systematische Verbesserung der Ergebnisse liefert. Daher soll für folgende Untersuchungen von den Tripletwechselwirkungen abgesehen werden.

2.2 Alternierende Dimerisierung

Um ein besseres Verständnis für den Einfluss des Dimerisierungsmusters auf die Lösung zu bekommen, wird die zweibeinige Spin- $\frac{1}{2}$ -Leiter ein weiteres Mal untersucht, diesmal mit einer alternierenden Dimerisierung. Die Dimere liegen nun auf den Holmen der Leiter, und zwar alternierend, so dass jeder Gitterplatz eindeutig einem Dimer zugeordnet ist, wie in Abbildung 2.4 dargestellt.

Dieses System kann aufgefasst werden als zwei gekoppelte dimerisierte Ketten, wobei die Dimerisierung durch $\lambda = \frac{J'}{J}$ kontrolliert wird,² und die Kopplung der Ketten durch einen zusätzlichen Parameter $x = \frac{J_{\perp}}{J'}$, der das Verhältnis der Sprosskopplung zur *schwachen* Holmkopplung misst. Der Hamiltonoperator lautet

²Häufig wird zur Modellierung einer dimerisierten Kette die Konvention verwendet, eine Kopplung \tilde{J} alternierend durch den Faktor $(1 + (-1)^i \delta)$ zu modulieren; über $J = (1 + \delta)\tilde{J}$, $J' = (1 - \delta)\tilde{J}$ und $\lambda = \frac{1 - \delta}{1 + \delta}$ hängen beide Darstellungen in eindeutiger Weise zusammen.

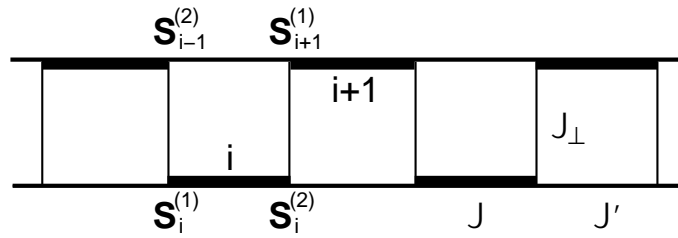


Abbildung 2.4: Spinleiter mit alternierender Dimerisierung; $J' = \lambda J$, $J_\perp = x\lambda J$.

$$\mathcal{H} = J \sum_i [\mathbf{S}_i^{(1)} \mathbf{S}_i^{(2)} + \lambda (\mathbf{S}_i^{(2)} \mathbf{S}_{i+2}^{(1)} + x \mathbf{S}_i^{(2)} \mathbf{S}_{i+1}^{(1)})] . \quad (2.19)$$

Für $\lambda = 1$ beschreibt dieses Modell dieselben Kopplungsverhältnisse wie in Abschnitt 2.1, wobei das dort verwendete λ die Rolle des Inversen von x übernimmt. Der entscheidende Unterschied besteht aber darin, dass die Bondbosonen hier auf den Dimeren entlang der Holme verteilt sind.

Die Translationsinvarianz ist durch die Dimerisierung gebrochen, stattdessen besitzt das System eine Invarianz bezüglich der Translation um *zwei* Sprossen bzw. bezüglich einer kombinierten Symmetrieoperation aus einer Translation um *eine* Sprosse mit einer Spiegelung an der Ebene senkrecht zu den Sprossen in der Mitte der Leiter. Der Hamiltonoperator (2.19) spiegelt diese Symmetrie wider, wobei der Übergang von i nach $i+1$ in dieser Darstellung die Spiegelung schon implizit enthält, da aufeinander folgende Dimere auf gegenüber liegenden Holmen liegen.

Zur Untersuchung werden die in den vorangegangenen Abschnitten vorgestellten Methoden eingesetzt. Das Neue ist hier, dass durch den Ansatz nicht nur nächstbenachbarte Bondbosonen miteinander wechselwirken, sondern auch übernächste (man beachte, dass die Spins nach wie vor ausschließlich mit ihren nächsten Nachbarn wechselwirken, vgl. Abb. 2.4). Dies äußert sich in Beiträgen mit halbiertes Periodizität in den Koeffizienten des Bondbosonen-Hamiltonoperators

$$\begin{aligned} \Lambda_k &= \frac{1}{4}J - \mu - \frac{1}{2}\lambda J \bar{s}^2 (\cos 2k + x \cos k) \\ \Delta_k &= -\frac{1}{4}\lambda J \bar{s}^2 (\cos 2k + x \cos k) . \end{aligned} \quad (2.20)$$

An diesen Ausdrücken erkennt man, dass die Dispersion $\omega_k = \sqrt{\Lambda_k^2 - 4\Delta_k^2}$ ihr Minimum an der Stelle $k_0 = 0$ annimmt, und nicht bei π , wie es in Abschnitt 2.1 der Fall war. Der Grund für diese Verschiebung der Dispersion ist die im Zusammenhang mit der Dimerisierung veränderte Symmetrie des Problems. Man kommt nach der Bogoljubow-Transformation auf die Sattelpunktgleichungen

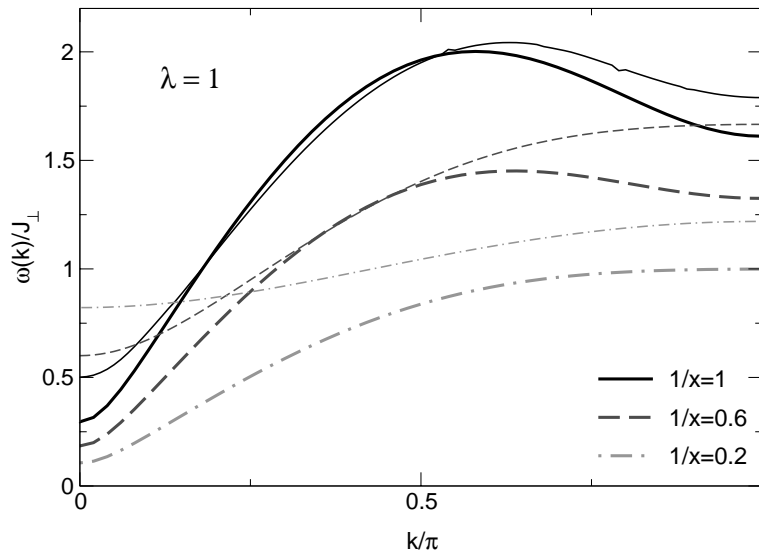


Abbildung 2.5: Dispersion der Leiter mit alternierender Dimerisierung bei $\lambda = 1$ für verschiedene Werte der Zwischenkettenkopplung J_{\perp} . Dicke Linien zeigen Ergebnisse der Bondbosonen-Untersuchung, während dünne Linien Resultate aus Störungsrechnungen wiedergeben. Man erkennt bei $k = 0$ deutlich das unterschiedliche Monotonieverhalten des Gaps

$$\bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2\pi} \int_0^{\pi} dk \frac{\Lambda_k}{\omega_k} = 0 \quad (2.21)$$

$$\frac{3}{2} + 2\frac{\mu}{J} - \frac{3\lambda}{2\pi} \int_0^{\pi} dk \frac{\Lambda_k - 2\Delta_k}{\omega_k} (\cos 2k + x \cos k) = 0 \quad .$$

Sie sind vollkommen analog zu den Gleichungen (2.8) und (2.9) aus Abschnitt 2.1, doch auf Grund der Wechselwirkungen mit übernächsten Nachbardimeren sind die Integranden hier von deutlich komplizierterer Form. Der Einfachheit halber wird im Folgenden das System bei festem $\lambda = 1$ untersucht, also der Fall gekoppelter Ketten ohne Dimerisierung. Das Gleichungssystem kann wie im vorigen Abschnitt behandelt und numerisch gelöst werden.

In Abbildung 2.5 sind die Ergebnisse der Bondbosonen-Untersuchung im Vergleich mit Resultaten aus 10. Ordnung Störungsrechnung in einer [5,5]-Padé-Extrapolation in Einheiten von J_{\perp} gezeigt. Man erkennt, dass der Gap allgemein zu klein ist und insbesondere nicht das richtige Monotonieverhalten aufweist. Das Modell versagt aber nicht völlig, da die Beschreibung der Dispersion für Werte der Zwischenkettenkopplung um Eins qualitativ und in einem Intervall um $k = \frac{\pi}{2}$ auch quantitativ mit den Resultaten der Störungsrechnung übereinstimmt.

Im Anschluss an diese Erkenntnisse soll der Kettenlimes $x = 0$ betrachtet werden. Die Ergebnisse dieser Untersuchung sind in Abbildung 2.6 zu sehen. Zum Vergleich ist für den Gap wiederum eine Kurve aus störungstheoretischem Ansatz gezeigt, sowie das Ergebnis der Rechnung mit der Bondbosonen-Methode mit *festgesetzten* Parametern $\bar{s} = 1$ und $\mu = -\frac{3}{4}$, also den Werten für isolierte Dimere.

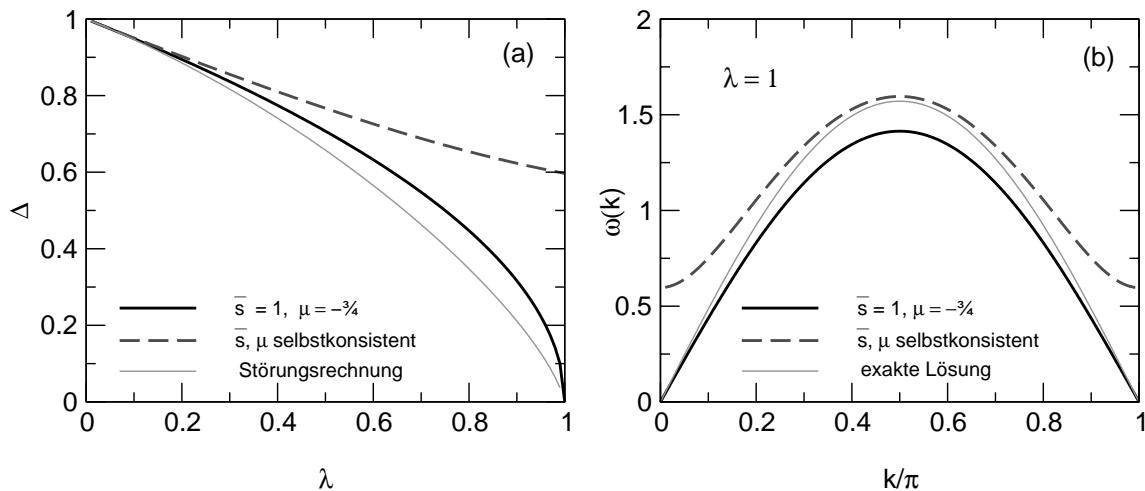


Abbildung 2.6: Ergebnisse der Untersuchung der Spin- $\frac{1}{2}$ -Kette; (a) der Gap aus der Störungsrechnung (dünne Linie) im Vergleich zu den Ergebnissen der Bondbosonen-Berechnung mit festgesetzten Parametern $\bar{s} = 1$ und $\mu = -\frac{3}{4}$ (durchgezogen) sowie mit selbstkonsistent bestimmten (gestrichelt); (b) Dispersion der homogenen Kette aus Bondbosonen-Rechnung (dargestellt wie in (a)) mit fixierten bzw. selbstkonsistent bestimmten Parametern und exakte Lösung (dünne Linie).

Man erkennt nicht nur, dass der Gap für $\lambda > \frac{1}{2}$ deutlich von der Vergleichskurve abweicht, sondern auch, dass die Rechnung mit fixierten Parametern ein besseres Resultat liefert. Überraschenderweise findet man, dass die Bondbosonen-Methode mit selbstkonsistent bestimmten Parametern für eine *homogene* Kette ein gegapptes Spektrum liefert, also tatsächlich ein *dimerisiertes* System beschreibt. Dagegen führt die Rechnung mit den Parameterwerten für isolierte Dimere zu einer Dispersion $\omega_k = \frac{c_s}{a} \sin(ka)$ mit der Gitterkonstanten a und der Spinwellengeschwindigkeit $c_s = \sqrt{2}Ja$. Die Spinwellengeschwindigkeit eindimensionaler Systeme ist exakt bekannt, $c_s^{\text{ex}} = \frac{\pi}{2}Ja$. Lineare Spinwellentheorie findet $c_s^{\text{sw}} = Ja$, also $c_s^{\text{ex}} > c_s > c_s^{\text{sw}}$ [41]. Wie schon bei der Leiter stellt sich heraus, dass die selbstkonsistent bestimmte Lösung nur für mittlere Impulse $k \approx \frac{\pi}{2}$ eine gute Beschreibung darstellt.

Diese Ergebnisse führen zu dem Schluss, dass die alternierende Dimerisierung offenbar kein gutes Modell ist, um die Spinleiter zu beschreiben. Eine Erklärung hierfür lässt sich in jüngsten Untersuchungen an Spinleitern mit Ringaustausch finden. Läuchli *et al.* [42] entdeckten einen Phasenübergang bei endlichem Ringaustausch von einer Phase, die gut durch einen Grundzustand mit Singulett auf den Sprossen (*run-g-singlet-Phase*, vgl. Abschnitt 2.1) beschrieben wird, in eine Phase mit der in diesem Abschnitt behandelten alternierenden Dimerisierung [43–46]. Dabei bricht die Leiter oberhalb einer kritischen Stärke des Ringaustausches spontan die Translationsinvarianz der Leiter und bildet langreichweitige Dimerordnung aus. Am Phasenübergang verschwindet die Anregungslücke [39]. Die Beschreibung der Spinleiter ohne Ringaustausch kann das Modell mit alternierender Dimerisierung folglich nur bedingt leisten, da es nicht die richtigen Symmetrieeigenschaften besitzt.

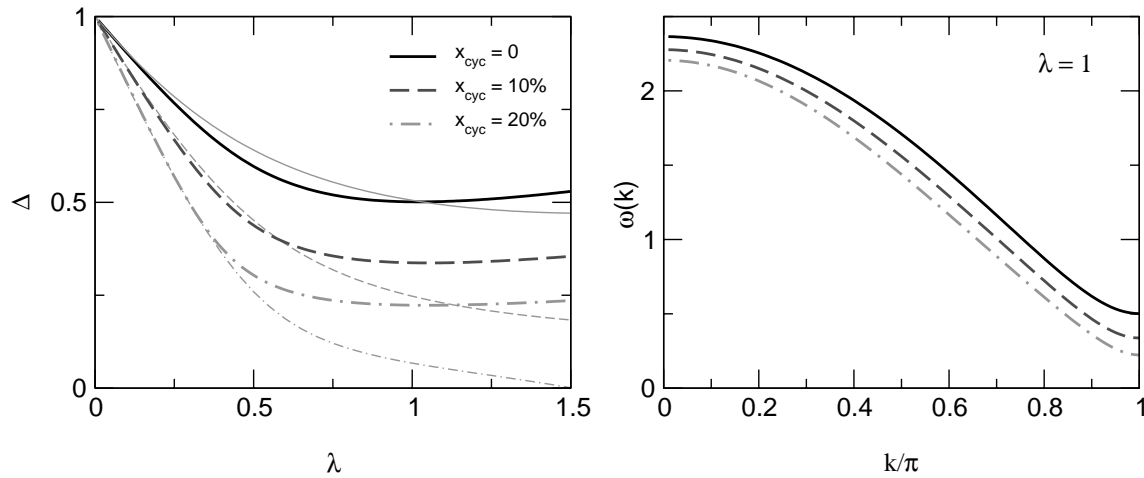


Abbildung 2.7: Ringaustausch senkt Spektren und Anregungslücke ab; links: der Gap ohne (durchgezogene Linie) sowie mit 10% (gestrichelt) und 20% (gestrichpunktet) Ringaustausch, dünne Linien geben die entsprechenden Ergebnisse aus Störungsrechnung wieder; rechts: Dispersionen bei $\lambda = 1$ mit Ringaustausch wie links

2.3 Spinleiter mit Ringaustausch

Vor dem Hintergrund der Erkenntnisse aus Abschnitt 2.2 ist es sinnvoll, den Einfluss von Ringaustausch auf die Eigenschaften der Spinleiter zu untersuchen. Die bisherigen Ergebnisse legen es nahe, von einer Sprossendimerisierung auszugehen und Beiträge vierter Ordnung in Triplettoperatoren zu vernachlässigen. Ähnlich der Vorgehensweise in Abschnitt 2.1.2, wird die Molekularfeld-Näherung und die Fourier-Transformation auf den Operator des Ringaustauschs (1.5) angewendet, der in zweiter Quantisierung durch Bondbosonen ausgedrückt wird

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_\square = & \frac{1}{8} J_{\text{cyc}} \sum_i \left\{ 9 s_i^\dagger s_i s_{i+1}^\dagger s_{i+1} - 3 \sum_\alpha (s_i^\dagger s_i t_{i+1,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} + s_{i+1}^\dagger s_{i+1} t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha}) \right. \\ & \left. + 4 \sum_\alpha \alpha ((s_i s_{i+1}^\dagger t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} - s_i s_{i+1} t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}) + \text{h.c.}) \right\} . \end{aligned} \quad (2.22)$$

Die Stärke des Ringaustausches wird in Einheiten der Holmkopplung gemessen, $J_{\text{cyc}} = x_{\text{cyc}} \lambda J$, so dass mit dieser auch der Ringaustausch verschwindet und der Limes nicht wechselwirkender Dimere erhalten bleibt. Durch die Ringaustauschbeiträge werden die Koeffizienten im Hamiltonoperator (2.4) renormiert, die unmittelbar in Grundzustandsenergie und Dispersion eingehen.

$$\begin{aligned} E_0 &= N \left(-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu + \frac{9}{8} J_{\text{cyc}} \bar{s}^4 \right) \\ \Lambda_k &= \frac{1}{2} J - \mu - \frac{3}{4} J_{\text{cyc}} \bar{s}^2 + (\lambda J + J_{\text{cyc}}) \bar{s}^2 \cos k \\ \Delta_k &= \frac{1}{2} (\lambda J - J_{\text{cyc}}) \bar{s}^2 \cos k \end{aligned} \quad (2.23)$$

Über die Sattelpunktgleichungen geht der Ringaustausch auch in die selbstkonsistent zu bestimmenden Parameter \bar{s} und μ ein. Insgesamt wird die Grundzustandsenergie angehoben, während die Dispersion abgesenkt wird. In Abbildung 2.7 ist auf der linken Seite der Gap ohne Ringaustausch aus Abschnitt 2.1 zum Vergleich mit den Ergebnissen mit einem Ringaustausch von 10% bzw. 20% der Holmkopplung gezeigt. Der Vergleich mit den Ergebnissen aus Störungsrechnungen zeigt, dass mit zunehmendem Ringaustausch die Übereinstimmung bei schwacher Holmkopplung zwar besser wird, jedoch machen sich die Abweichungen in höheren Ordnungen schon für kleinere Werte von λ bemerkbar. Aus diesem Grund findet die Bondbosonen-Methode auch noch für 80% Ringaustausch einen endlichen Gap, obwohl aus den Ergebnissen anderer Methoden bekannt ist, dass es stets einen Phasenübergang gibt und der Gap sich schließt [39, 42, 47, 48] – in Abbildung 2.7 zu sehen für 20% Ringaustausch.

Kapitel 3

Quadratgitter

3.1 Kolumnare Dimerisierung

Da das zweidimensionale System formal als aus Leitern zusammengesetzt aufgefasst werden kann, können die grundlegenden Ansätze des vorigen Kapitels übernommen werden. Die verschiedenen dort untersuchten Dimerisierungsschemata liefern entsprechende Darstellungsmöglichkeiten für das Quadratgitter. Bei der *kolumnaren* Dimerisierung sind Leitern mit Sprossendimerisierung über die Verlängerung der Sprossen miteinander gekoppelt, wie in Abbildung 3.1 dargestellt. Die Wechselwirkung der Leitern untereinander hat dieselbe Stärke wie die Holmkopplung. Dieses System zeichnet sich durch eine im Vergleich zum nicht dimerisierten Gitter vergrößerte Einheitszelle aus, wobei die Gitterkonstante in Richtung senkrecht zu den Leitern, die als y -Richtung bezeichnet werden soll, verdoppelt ist.

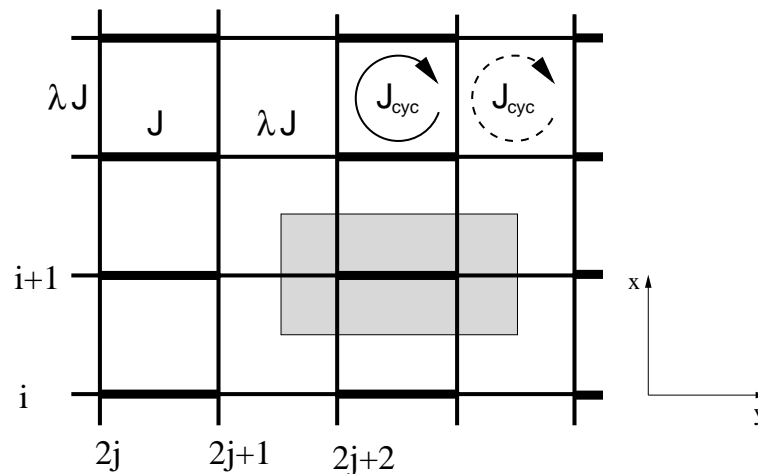


Abbildung 3.1: Kolumnar dimerisiertes Quadratgitter; der graue Kasten umschließt eine Einheitszelle.

Das bedeutet, dass das System in y -Richtung translationsinvariant gegenüber Verschiebung um *zwei* Spins ist, und geradzahlige von ungeradzahligen Gitterplätzen zu unterscheiden sind. Um die Unterscheidung zwischen dem Gitter der Spins und dem der Dimere deutlich zu machen, wird der Gitterplatzindex in y -Richtung durch

$2j \rightarrow k$ substituiert. Zu jedem Dimer (i, k) gibt es im Hamiltonoperator einen Beitrag vom Spin $\mathbf{S}_{i,2j} = \mathbf{S}_{i,k}^{(1)}$ und einen von $\mathbf{S}_{i,2j+1} = \mathbf{S}_{i,k}^{(2)}$ in der bei den Leitern eingeführten Notation,

$$\mathcal{H} = J \sum_{i,k} [\mathbf{S}_{i,k}^{(1)} \mathbf{S}_{i,k}^{(2)} + \lambda (\mathbf{S}_{i,k}^{(2)} \mathbf{S}_{i,k+1}^{(1)} + \mathbf{S}_{i,k}^{(1)} \mathbf{S}_{i+1,k}^{(1)} + \mathbf{S}_{i,k}^{(2)} \mathbf{S}_{i+1,k}^{(2)})] \quad (3.1)$$

Ein Gitter, das aus insgesamt N_2 gekoppelten Leitern mit N_1 Sprossen auf den Leitern besteht, enthält somit $2N_1N_2$ Spins, oder $N = N_1N_2$ Dimere, wobei N die Anzahl der Einheitszellen im System ist.

Man erhält den Bondbosonen-Hamiltonoperator vollkommen analog zu der in Kapitel 2 präsentierten Vorgehensweise, wobei die Fouriertransformation hier über zwei Richtungen geht und zu einer Abhängigkeit der Operatoren von einem Wellenvektor \mathbf{k} in der Ebene führt

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_b &= E_0 + \sum_{\mathbf{k},\alpha} [\Lambda_{\mathbf{k}} t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{\mathbf{k},\alpha} + \Delta_{\mathbf{k}} (t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{-\mathbf{k},\alpha}^\dagger + t_{\mathbf{k},\alpha} t_{-\mathbf{k},\alpha})] \\ E_0 &= N \left(-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu \right) \\ \Lambda_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{4} J - \mu + 2\Delta_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{2} \lambda J \bar{s}^2 \alpha_{\mathbf{k}} \\ \alpha_{\mathbf{k}} &= \cos k_x - \frac{1}{2} \cos k_y \quad . \end{aligned} \quad (3.2)$$

Ausgehend von dieser Darstellung lässt sich der Formalismus des vorigen Kapitels anwenden, um den Hamiltonoperator zu diagonalisieren und die Bestimmungsgleichungen für die Variationsparameter aufzustellen. Diese sind gegeben durch

$$\bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2k}{4\pi^2} \frac{\Lambda_{\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{k}}} = 0 \quad (3.3)$$

$$\frac{3}{4} J + \mu - \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2k}{4\pi^2} \frac{\lambda J (\frac{1}{4} J - \mu) \alpha_{\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{k}}} = 0 \quad . \quad (3.4)$$

Die Integrale in (3.3) und (3.4) erstrecken sich über die zweidimensionale erste Brillouin-Zone. Man kann die Integration in einer Richtung analog zum Vorgehen in Abschnitt 2.1.1 analytisch ausführen (s. Anhang A) und beide Gleichungen durch $2\lambda[\text{Gleichung}(3.3)] + d[\text{Gleichung}(3.4)]/J$ zu einer einzigen Bestimmungsgleichung für die abgeleitete Größe d zusammenfassen. Damit erhält man

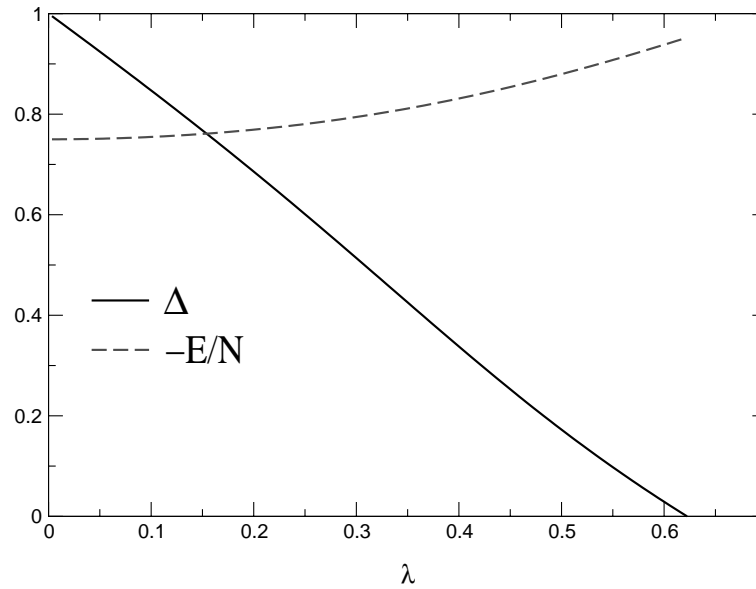


Abbildung 3.2: Die ungeordnete Phase des Spin- $\frac{1}{2}$ -Quadratgitters: Gap (durchgezogene Linie) und Grundzustandsenergie (gestrichelt).

$$d - \lambda \left(5 - \frac{3}{\pi^2 \sqrt{2d}} \int_{-\pi}^{\pi} dk_y t K(t) \right) = 0$$

mit $d = \frac{2\lambda J \bar{s}^2}{\frac{1}{4}J - \mu}$ (3.5)

$$t = \sqrt{\frac{2d}{1 + d(1 - \frac{1}{2} \cos k_y)}}$$

Die Dispersion nimmt bei $\mathbf{k}_0 = (\pi, 0)$ ein Minimum an, denn man findet

$$\omega_{\mathbf{k}} = \left(\frac{1}{4}J - \mu \right) \sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}}$$

mit linearem Verhalten um \mathbf{k}_0 . Offenbar verschwindet der Gap bei $d = \frac{2}{3}$. Das bedeutet, dass an dieser Stelle die Begriffe „Grundzustand“ und „erster angeregter Zustand“ ihre Bedeutung verlieren: Jenseits dieser Stelle müsste die Anregungslücke negativ werden, so dass das Niveau des ersten angeregten Zustands unterhalb der Grundzustandsenergie liegen würde. Da dies aber physikalisch keinen Sinn macht, gibt es also einen *kritischen Punkt* λ_c , oberhalb dessen der Grundzustand grundsätzlich andere Eigenschaften hat und nicht mehr mit den bisherigen Annahmen beschrieben werden kann. Folglich können zwei verschiedene Phasen des Systems unterschieden werden, die nicht von thermischen Fluktuationen abhängen, da beide bei $T = 0$ existieren. Man erwartet, dass die starke Kopplung der Dimere oberhalb des quantenkritischen Punktes den Einfluss der Quantenfluktuationen der Spins abschwächt und dadurch langreichweitige magnetische Ordnung ermöglicht [49]. In

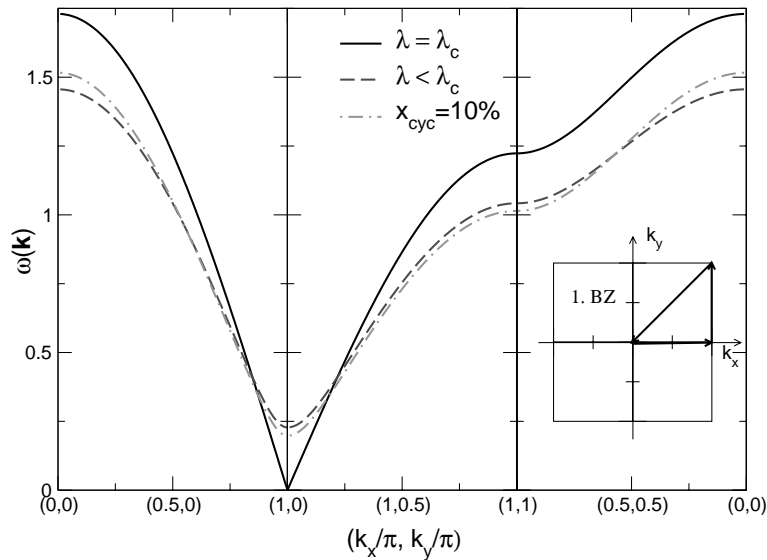


Abbildung 3.3: Dispersion am kritischen Punkt (durchgezogene Linie) und bei $\lambda < \lambda_c$ ohne (gestrichelt) und mit 10% Ringaustausch (gestrichpunktet).

diesem Falle wird am kritischen Punkt die Spinrotationsinvarianz spontan gebrochen. Außerdem verschwindet d bei $\lambda = 0$, so dass das System in dieser Phase vollständig durch die Lösungen von (3.5) im Bereich $0 \leq d \leq \frac{2}{3}$ beschrieben wird. Diese können numerisch bestimmt werden, und man findet den kritischen Punkt bei $\lambda_c = 0.622$ (s. Abbildung 3.2).

Mit einer Untersuchung der Eigenschaften des Grundzustands allein haben Sachdev und Bhatt ebenfalls mit dem Bondbosonen-Formalismus in etwa dasselbe Ergebnis gefunden (ein quantitativer Vergleich ist nicht möglich, da keine numerischen Werte für den kritischen Punkt angegeben werden) [9]. Katoh und Imada haben das System mit linearer Spinwellentheorie (LSW), Störungsrechnung zweiter Ordnung in $1 - \delta$ mit $\delta = \frac{1-\lambda}{1+\lambda}$ sowie Quanten-Monte-Carlo-Simulationen (QMC) behandelt [49] und bekommen sehr unterschiedliche Ergebnisse für die verschiedenen Ansätze. Während die LSW-Behandlung den kritischen Punkt bei $\lambda_c^{\text{LSW}} = 0.106$ sehr nahe bei Null findet, liefert die Störungsrechnung einen Wert von $\lambda_c^{(2)} = 0.633$, der gut mit der Lösung der Bondbosonenmethode übereinstimmt. Sie bewerten den kritischen Punkt aus QMC-Rechnungen bei $\lambda_c^{\text{QMC}} = 0.535$ als das zuverlässigste Ergebnis. Es deckt sich mit früheren Resultaten aus Störungsrechnung höherer Ordnung, $\lambda_c^{(6)} = 0.54 \pm 0.02$ [50]. In Abschnitt 2.1 hatte sich bereits gezeigt, dass die Bondbosonenmethode schon die zweite Ordnung nicht mehr korrekt erfasst.

In Abbildung 3.3 ist die Dispersion in der ungeordneten Phase ($\lambda = 0.47$) und am kritischen Punkt gezeigt. Die Bandbreite ist am kritischen Punkt offenbar maximal, da nicht nur der Gap sich an dieser Stelle schließt, sondern auch die obere Bandkante hier höher liegt als für $\lambda < \lambda_c$.

3.1.1 Einfluss von Ringaustausch

Der Operator für den Ringaustausch (1.5) enthält zwei Anteile, von denen der erste auf Plaketten wirkt, welche von Bondbosonen „eingerahmt“ sind (durchgezogener Ring in Abbildung 3.1), und der zweite auf solche, auf denen keine Bosonen sitzen (gestrichelt). Es zeigt sich, dass der zweite Anteil von vierter Ordnung in den Triplettoperatoren ist und in der in Abschnitt 2.1 begründeten Näherung nicht beiträgt. Der Anteil von Plaketten mit Bosonen auf den Kanten hat in Bondbosonen-Darstellung die Form

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\square}^b = & \frac{1}{8} J_{\text{cyc}} \left\{ 9N \bar{s}^4 - 6\bar{s}^2 \sum_{\mathbf{k}\alpha} t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{\mathbf{k},\alpha} \right. \\ & \left. + 4\bar{s}^2 \sum_{\mathbf{k}\alpha} [2t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{\mathbf{k},\alpha} - (t_{\mathbf{k},\alpha} t_{-\mathbf{k},\alpha} + \text{h.c.})] \cos k_x \right\} . \end{aligned} \quad (3.6)$$

Das vollständige Problem einschließlich Ringaustausch nimmt in Bondoperatoren-Darstellung die gewohnte Form an und unterscheidet sich von (3.2) durch die Ringaustauschbeiträge (3.6). Der Hamiltonoperator nimmt folgende Gestalt an

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_b = & E_0 + \sum_{\mathbf{k},\alpha} [\Lambda_{\mathbf{k}} t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{\mathbf{k},\alpha} + \Delta_{\mathbf{k}} (t_{\mathbf{k},\alpha}^\dagger t_{-\mathbf{k},\alpha}^\dagger + t_{\mathbf{k},\alpha} t_{-\mathbf{k},\alpha})] \\ E_0 = & N \left(-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu + \frac{9}{8} J_{\text{cyc}} \bar{s}^4 \right) \\ \Lambda_{\mathbf{k}} = & \frac{1}{4} J - \mu - \frac{3}{4} J_{\text{cyc}} \bar{s}^2 + \lambda J \bar{s}^2 \alpha_{\mathbf{k}} + J_{\text{cyc}} \bar{s}^2 \cos k_x \\ \Delta_{\mathbf{k}} = & \frac{1}{2} \lambda J \bar{s}^2 \alpha_{\mathbf{k}} - \frac{1}{2} J_{\text{cyc}} \bar{s}^2 \cos k_x . \end{aligned} \quad (3.7)$$

Die Grundzustandsenergie wird durch den Ringaustauschbeitrag angehoben, während in der Dispersion $\omega_{\mathbf{k}} = \sqrt{\Lambda_{\mathbf{k}}^2 - 4\Delta_{\mathbf{k}}^2}$ konkurrierende Anteile auftreten, die die Dispersion am Rand der ersten Brillouin-Zone absenken und im Zentrum anheben, wie in Abbildung 3.3 zu sehen ist. Mit dem Hamiltonoperator werden auch die Sattelpunktgleichungen um Ringaustauschbeiträge angepasst. Sie verändern sich dadurch formal in einer Weise, dass es nicht mehr möglich ist, sie zu einer einzigen Bestimmungsgleichung für eine abgeleitete Größe zusammenzufassen, da die k_x -Abhängigkeit von $\Lambda_{\mathbf{k}}$ und $\Delta_{\mathbf{k}}$ verschieden ist. Man untersucht daher das Gleichungssystem

$$\bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{\Lambda_{\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{k}}} = 0 \quad (3.8)$$

$$\frac{3}{4} J + \mu - \frac{9}{8} J_{\text{cyc}} (2\bar{s}^2 + 1) - \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{1}{\bar{s}^2} \left[\omega_{\mathbf{k}} - \left(\frac{1}{4} J - \mu \right) \frac{\Lambda_{\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{k}}} \right] = 0 \quad (3.9)$$

In Abschnitt 2.3 hatte sich gezeigt, dass die Anregungsenergien der Spinleiter durch den Einfluss von Vierspinwechselwirkungen vermindert werden. Auf Grund

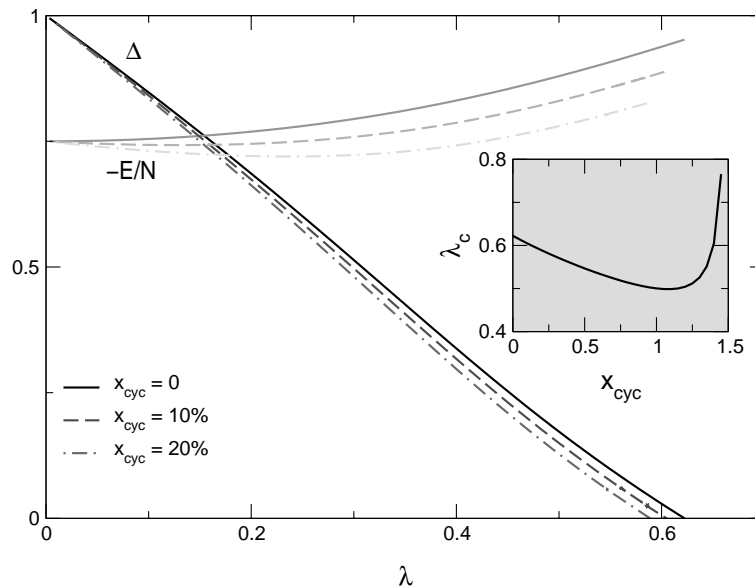


Abbildung 3.4: Ringaustausch bei kolumnarer Dimerisierung: Gap (schwarz) und Grundzustandsenergie (grau) ohne sowie mit 10% und 20% Ringaustausch in Einheiten von J (vgl. Abb. 3.2); Inset: Position des kritischen Punktes in Abhängigkeit vom Ringaustausch.

seiner Verwandtschaft mit der Spinleiter erwartet man beim zweidimensionalen System mit kolumnarer Dimerisierung qualitativ denselben Effekt. Diese Vermutung wird dadurch gestützt, dass von den drei Beiträgen zum Ringaustausch (1.5) in der Näherung *schwach* wechselwirkender Dimere ($\lambda \approx 0$) nur der erste Summand (in der symbolischen Schreibweise \sqsupset) beiträgt, der sich mit der kolumnaren Dimerisierung deckt. Dieser zerfällt bei Molekularfeld-Entkopplung in das Produkt des Erwartungswertes der beiden Spins auf dem einen Dimer $\langle \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2 \rangle = -\frac{3}{4}$ mit den Spinoperatoren auf dem anderen Dimer. Der Ringaustausch schwächt also die Heisenbergwechselwirkung $\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$ ab, die für die Dimerisierung verantwortlich ist. In diesem Sinne destabilisiert der Ringaustausch die ungeordnete Phase und verschiebt den kritischen Punkt zu kleineren Werten von λ .

Diese anschaulichen Überlegungen werden durch die in Abbildung 3.4 gezeigten Ergebnisse der Rechnung mit 10% und 20% Ringaustausch zum Vergleich mit dem System ohne Ringaustausch bestätigt. Die eingefügte Abbildung zeigt die Lage des kritischen Punktes als Funktion des Verhältnisses von Ringaustausch zu Holmkopplung $x_{\text{cyc}} = \frac{J_{\text{cyc}}}{\lambda J}$. Im relevanten Bereich ist es eine monoton fallende Funktion, der Ringaustausch verschiebt den kritischen Punkt also zu Null hin. Ansteigende Werte für Ringaustausch oberhalb von 100% können nicht mehr als zuverlässig angesehen werden, da die Gültigkeit des Formalismus in diesem Bereich in Frage gestellt werden muss. Wie oben mit anschaulichen Argumenten gezeigt wurde, schwächt Vier-spinwechselwirkung die Dimerisierung, die das Ergebnis starker Kopplung zwischen jeweils *zwei* Spins ist. Wenn der Ringaustausch die dominierende Wechselwirkung im System ist, lässt es sich daher nicht mehr rechtfertigen, von einem dimerisierten Zustand auszugehen.

3.1.2 Gekoppelte Leitern

Ein leicht modifiziertes Modell geht von miteinander wechselwirkenden Leitern aus, bei denen Holm- und Sprosskopplung dieselbe Stärke haben (s. Abbildung 3.5). Dieses System ist einerseits als Modell in der theoretischen Physik interessant, da es aus einfachen, quasi-eindimensionalen Einheiten besteht – im Gegensatz zur kolumnaren Dimerisierung, bei der sich die Eigenschaften der Leitern mit der Stärke ihrer gegenseitigen Kopplung ändern. Andererseits ist es speziell im Hinblick auf reale Systeme von Interesse.

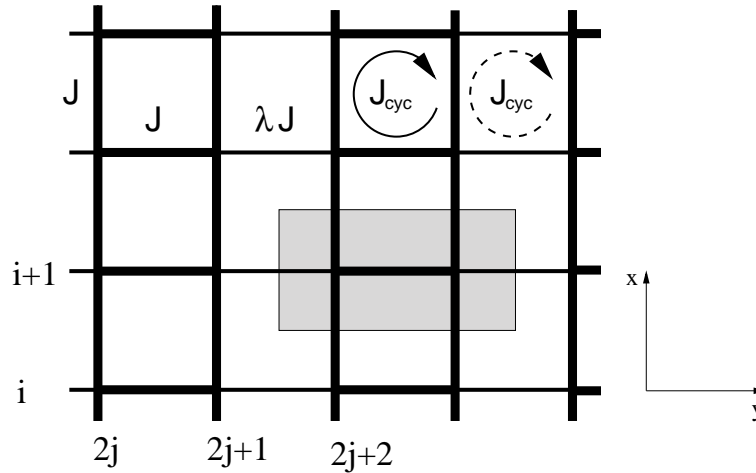


Abbildung 3.5: Gekoppelte Leitern mit grau eingefärbter Einheitszelle.

Dieses System unterscheidet sich nur in der Stärke der Wechselwirkung in x -Richtung von dem kolumnar dimerisierten Quadratgitter, Form und Größe der Einheitszelle sind identisch. In der Notation von (3.1) wird das System beschrieben durch

$$\mathcal{H} = J \sum_{i,k} \left(\mathbf{s}_{i,k}^{(1)} \mathbf{s}_{i,k}^{(2)} + \lambda \mathbf{s}_{i,k}^{(2)} \mathbf{s}_{i,k+1}^{(1)} + \mathbf{s}_{i,k}^{(1)} \mathbf{s}_{i+1,k}^{(1)} + \mathbf{s}_{i,k}^{(2)} \mathbf{s}_{i+1,k}^{(2)} \right) \quad (3.10)$$

Die Wahl des Dimerisierungsmusters ist für dieses Modell nicht wie bisher durch die Kopplungsverhältnisse vorgegeben. Man hat die Wahl einer Belegung des Gitters mit Bondbosonen wie bei der Leiter mit Sprossendimerisierung oder einer alternierenden Dimerisierung. Um die Ähnlichkeit des Systems mit der kolumnaren Dimerisierung auszunutzen, wird hier die Sprossendimerisierung betrachtet. Dabei ist darauf hinzuweisen, dass der Limes ungekoppelter Leitern $\lambda = 0$, der hier als Ausgangspunkt der Untersuchung dient, isolierte Systeme beschreibt, die nicht exakt gelöst sind. Die Dimere entkoppeln nicht, da die Holmkopplung der einzelnen Leitern endlich ist. Die Wechselwirkung der Dimere längs der Holme wird hier genauso behandelt wie bei der Untersuchung einer einzelnen Spinleiter mit Sprossendimerisierung in Abschnitt 2.1. Der Fehler, der dort mit zunehmender Holmkopplung erst angewachsen war, ist also in diesem Modell schon bei $\lambda = 0$ enthalten.

Die Rechnung läuft über weite Strecken nahezu identisch zum vorigen Abschnitt ab. Der Bondbosonen-Hamiltonoperator unterscheidet sich von (3.2) nur in

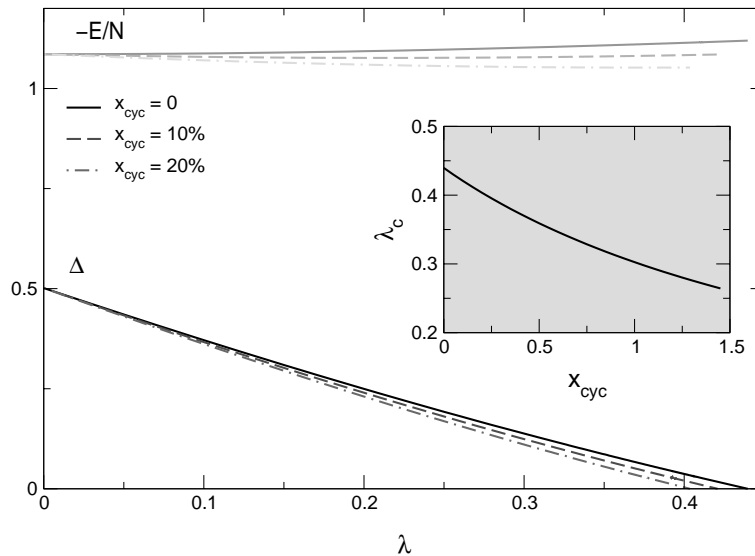


Abbildung 3.6: gekoppelte Leitern, wie Abbildung 3.4

$$\Delta_{\mathbf{k}} = \frac{1}{2} J \bar{s}^2 \left(\cos k_x - \lambda \frac{1}{2} \cos k_y \right) \quad (3.11)$$

Der Ringaustauschbeitrag ist von den veränderten Kopplungsverhältnissen nicht betroffen.

In Abbildung 3.6 sind die Ergebnisse dieser Behandlung zu sehen. Der Gap beginnt bei dem Wert für ungekoppelte Leitern von ungefähr der Hälfte der Sprossenkopplung. Mit zunehmender Wechselwirkung der Leitern wird die Anregungslücke kleiner und schließt sich an einem kritischen Punkt, der für das System ohne Ringaustausch bei $\lambda_c = 0.440$ liegt. Jüngste Untersuchungen dieses Systems mit QMC-Methoden [51] finden den Wert $\lambda_c^{\text{QMC}} = 0.314$, der eine Abweichung in derselben Größenordnung zeigt wie bei der Untersuchung im vorigen Abschnitt. Analog zur Situation bei kolumnarer Dimerisierung senkt ein endlicher Ringaustausch den Gap ab, womit auch der kritische Punkt zu Null hin verschoben wird.

3.2 Alternierende Dimerisierung

Man kann sich in analoger Weise zur kolumnaren Dimerisierung das Quadratgitter aus Leitern mit alternierender Dimerisierung (vgl. Abschnitt 2.2) aufgebaut vorstellen, was zu einer alternierenden Dimerisierung in der Ebene führt.

Wie man in Abbildung 3.7 sieht, ist dieses System offenbar translationsinvariant entlang der Diagonalen, die durch die Mitten der Bonds gehen, auf denen die Dimere sitzen. Deshalb wählt man zur Beschreibung zweckmäßigerweise ein um 45° gedrehtes Quadratgitter, auf dessen Gitterplätzen jeweils genau ein Dimer und zwei Spins sitzen, die durch ihre Lage in der Einheitszelle unterschieden werden können. Dieses Modell wird durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben

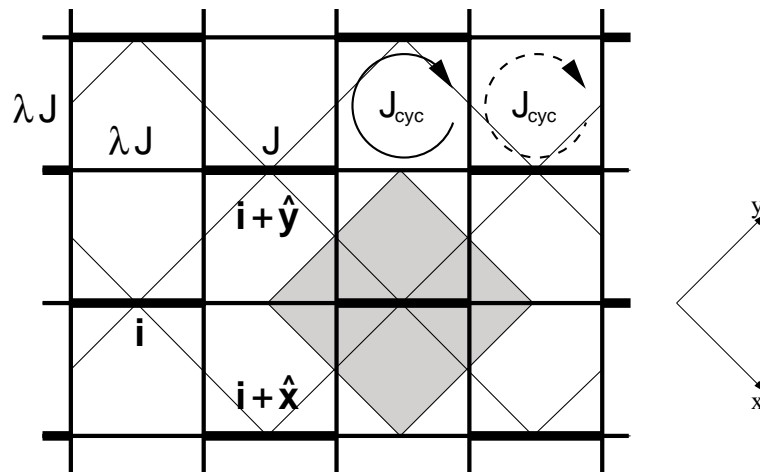


Abbildung 3.7: Quadratgitter mit alternierender Dimerisierung

$$\mathcal{H} = J \sum_{\mathbf{i}} [\mathbf{S}_{\mathbf{i}}^{(1)} \mathbf{S}_{\mathbf{i}}^{(2)} + \lambda (\mathbf{S}_{\mathbf{i}}^{(2)} \mathbf{S}_{\mathbf{i}+\hat{\mathbf{x}}+\hat{\mathbf{y}}}^{(1)} + \mathbf{S}_{\mathbf{i}}^{(2)} \mathbf{S}_{\mathbf{i}+\hat{\mathbf{x}}}^{(1)} + \mathbf{S}_{\mathbf{i}}^{(2)} \mathbf{S}_{\mathbf{i}+\hat{\mathbf{y}}}^{(1)})] \quad (3.12)$$

Hier bezeichnen $\mathbf{i} = (i_x, i_y)$ den Gitterplatz des Dimers und $\hat{\mathbf{x}}, \hat{\mathbf{y}}$ Vektoren vom Betrag der Gitterkonstanten in Richtung der (gedrehten) Koordinatenachsen. Der obere Index der Spins bezeichnet ihre Position auf dem Bond. Die Gitterkonstante ist im Vergleich zum nicht dimerisierten Gitter um einen Faktor $\sqrt{2}$ vergrößert. Damit hat die Einheitszelle dasselbe Volumen wie bei der kolumnaren Dimerisierung, nämlich das doppelte Volumen des undimerisierten Gitters. Aber sie ist quadratisch ($\sqrt{2} \times \sqrt{2}$ statt 2×1). In den folgenden Betrachtungen wird die Gitterkonstante wie üblich auf Eins gesetzt. Der Hamiltonoperator in Bondbosonen-Darstellung lautet

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_b &= E_0 + \sum_{\mathbf{k}, \alpha} [\Lambda_{\mathbf{k}} t_{\mathbf{k}, \alpha}^\dagger t_{\mathbf{k}, \alpha} + \Delta_{\mathbf{k}} (t_{\mathbf{k}, \alpha}^\dagger t_{-\mathbf{k}, \alpha}^\dagger + t_{\mathbf{k}, \alpha} t_{-\mathbf{k}, \alpha})] \\ E_0 &= N \left(-\frac{3}{4} J \bar{s}^2 - \mu \bar{s}^2 + \mu \right) \\ \Lambda_{\mathbf{k}} &= \frac{1}{4} J - \mu + 2\Delta_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k}} &= -\frac{1}{4} \lambda J \bar{s}^2 \alpha_{\mathbf{k}} \\ \alpha_{\mathbf{k}} &= \cos k_x + \cos k_y + \cos(k_x + k_y) \quad . \end{aligned} \quad (3.13)$$

Der Bondbosonen-Hamiltonoperator unterscheidet sich von dem entsprechenden Ausdruck für kolumnare Dimerisierung (3.2) vor allem durch die Symmetrie bezüglich k_x und k_y als Konsequenz der Symmetrie des Gitters. Es sei an dieser Stelle ausdrücklich darauf hingewiesen, dass auf Grund der Drehung des Koordinatensystems die Richtungen x und y hier verschieden sind von den Richtungen, die in Abschnitt 3.1 betrachtet worden sind. Ferner erkennt man, dass das Minimum des Anregungsspektrums $\omega_{\mathbf{k}} = \sqrt{\Lambda_{\mathbf{k}}^2 - 4\Delta_{\mathbf{k}}^2}$ für dieses System – anders als bei kolumnarer Dimerisierung – bei dem Wellenvektor $\mathbf{k}_0 = (0, 0)$ liegt, also im Zentrum

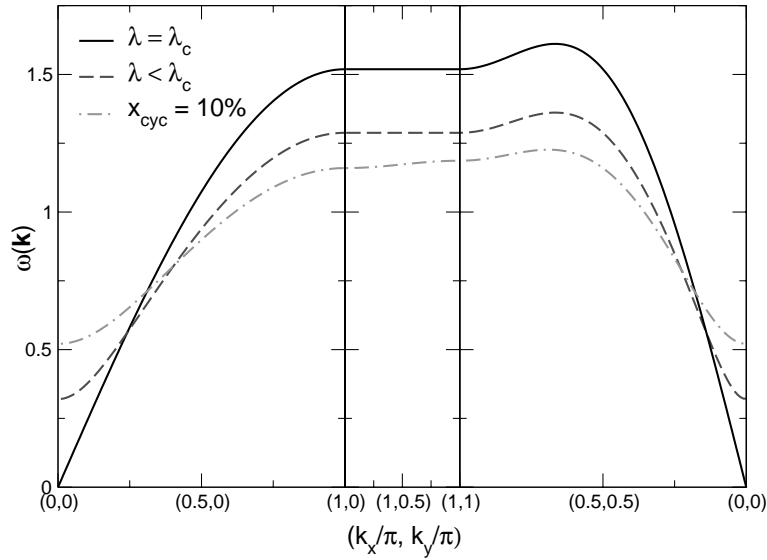


Abbildung 3.8: Dispersion des alternierend dimerisierten Quadratgitters am kritischen Punkt (durchgezogene Linie) sowie bei $\lambda = 0.37$ ohne (gestrichelt) und mit 10% Ringaustausch (gestrichpunktet) in Einheiten von J

der ersten Brillouin-Zone, denn man findet

$$\omega_{\mathbf{k}} = \left(\frac{1}{4}J - \mu \right) \sqrt{1 - \frac{\lambda J \bar{s}^2}{\frac{1}{4}J - \mu} \alpha_{\mathbf{k}}} \quad . \quad (3.14)$$

In Abbildung 3.8 ist das Anregungsspektrum am kritischen Punkt und für ein λ in der ungeordneten Phase gezeigt. Die Bandbreite ist wie bei der kolumnaren Dimerisierung am kritischen Punkt maximal. Am Rand der ersten Brillouin-Zone ist die Dispersion konstant.

Der Ringaustausch besteht wie schon bei der kolumnaren Dimerisierung aus zwei Anteilen von nicht-äquivalenten Plaketten, welche diesmal aber beide Beiträge zweiter Ordnung enthalten, da jede Plakette auf einer Kante ein Boson trägt. Anhand von Abbildung 3.7 wird deutlich, dass bei Vertauschung von x und y (diese Symmetrieoperation führt das Gitter in sich selbst über) die beiden Beiträge die Rollen tauschen, so dass der eine durch diese Vertauschung aus dem anderen hervorgehen muss. Im Fourier-Raum besitzt daher auch der Ringaustausch Symmetrie bezüglich k_x und k_y , wie man an folgendem Ausdruck erkennt

$$\mathcal{H}_{\square}^b = \frac{3}{8} J_{\text{cyc}} \bar{s}^4 \sum_{\mathbf{k}, \alpha} [2t_{\mathbf{k}, \alpha}^{\dagger} t_{\mathbf{k}, \alpha} + (t_{\mathbf{k}, \alpha} t_{-\mathbf{k}, \alpha} + h.c.)] \cos(k_x + k_y) \quad . \quad (3.15)$$

Durch die Beiträge des Ringaustausches werden die Koeffizienten im Bondbosonen-Hamiltonoperator renormiert. Dies betrifft nur den \mathbf{k} -abhängigen Anteil

$$\Delta_{\mathbf{k}} = -\frac{1}{4} \lambda J \bar{s}^2 \alpha_{\mathbf{k}} + \frac{3}{8} J_{\text{cyc}} \bar{s}^4 \cos(k_x + k_y) \quad (3.16)$$

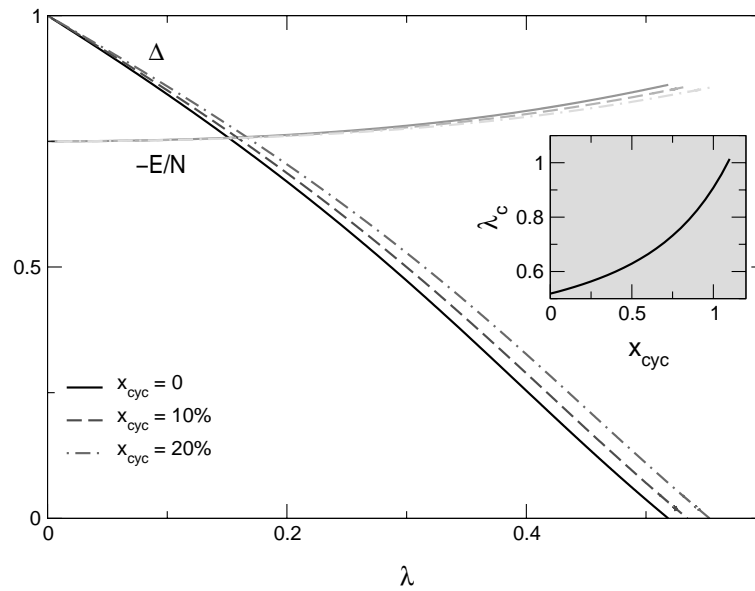


Abbildung 3.9: Quadratgitter mit alternierender Dimerisierung: Gap (schwarz) und Grundzustandsenergie (grau) in Einheiten von J ; Inset: kritischer Punkt als Funktion des Ringaustauschs (vgl. Abbildung 3.4).

Die Sattelpunktgleichungen zur Bestimmung der Variationsparameter werden aus der Grundzustandsenergie $E = E_0 + \frac{3}{2} \sum_{\mathbf{k}} (\omega_{\mathbf{k}} - \Lambda_{\mathbf{k}})$ abgeleitet

$$\bar{s}^2 - \frac{5}{2} + \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2 k \Lambda_{\mathbf{k}}}{4\pi^2 \omega_{\mathbf{k}}} = 0 \quad (3.17)$$

$$\frac{3}{2} J + 2\mu - \left(\frac{1}{4} J - \mu \right) \frac{3}{2} \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2 k 3J_{\text{cyc}} \bar{s}^2 \cos(k_x + k_y) - \lambda J \alpha_{\mathbf{k}}}{4\pi^2 \omega_{\mathbf{k}}} = 0 \quad .$$

Das Gleichungssystem (3.17) kann durch analytische Integration einer Dimension auf eine numerisch leichter lösbare Form gebracht werden (s. Anhang A). Nur für das System ohne Ringaustausch kann man wie in Abschnitt 3.1 die Lösung durch eine einzige Bestimmungsgleichung ermitteln und findet analog zum Quadratgitter mit kolumnarer Dimerisierung einen Phasenübergang bei einem kritischen Punkt $\lambda_c = 0.519$. Dieser Wert bestätigt die Ergebnisse früherer Untersuchungen mit der Bondbosonen-Methode [9], zeigt jedoch wieder eine quantitative Abweichung von den Ergebnissen aus Störungsrechnungen, $\lambda_c^{(5)} = 0.39 \pm 0.01$ [50].

In Abbildung 3.8 sieht man, dass das Anregungsspektrum bei Anwesenheit von Ringaustausch am Rand der ersten Brillouin-Zone wie in allen bisher betrachteten Systemen abgesenkt wird. Im Zentrum wird es im Gegensatz dazu angehoben, womit der Gap durch den Ringaustausch vergrößert wird. Der kritische Punkt wird folglich zu höheren Werten verschoben, d. h. die ungeordnete Phase wird durch Vier-spinwechselwirkung bei alternierender Dimerisierung stabilisiert.

Man kann die im Vergleich zur kolumnaren Dimerisierung qualitativ verschiedene Wirkung des Ringaustausches mit ähnlichen Überlegungen wie in Abschnitt 3.1.1

aus der Sichtweise schwacher Kopplungen verstehen. In erster Ordnung tragen zum Ringaustausch nur Anteile bei, die zwei Spins auf einem Dimer koppeln. Auf einer Plakette, bei der die Spins \mathbf{S}_1 und \mathbf{S}_2 auf einem Dimer sitzen, sind die Spin-Paarungswerte in erster Ordnung gegeben durch

$$\begin{aligned}\langle \mathbf{S}_1 \mathbf{S}_2 \rangle &= -\frac{3}{4} \\ \langle S_{1,\alpha} S_{2,\beta} \rangle &= -\frac{1}{4} \delta_{\alpha\beta} \quad ,\end{aligned}\tag{3.18}$$

mit $\alpha, \beta \in \{x, y, z\}$, während die Erwartungswerte von \mathbf{S}_3 und \mathbf{S}_4 in erster Ordnung verschwinden. Deshalb nimmt der erste Summand im Ringaustausch in Molekularfeld-Näherung die Form $-\frac{3}{4}\mathbf{S}_3\mathbf{S}_4$ an, während die beiden anderen mit verschiedenem Vorzeichen gleich sind und sich daher gegenseitig aufheben. Tatsächlich trägt in (3.15) nur der erste Summand des Ringaustausches bei, da die anderen sich in der Näherung der Bondbosonen-Methode kompensieren. Der Ringaustausch schwächt bei alternierender Dimerisierung also *schwache* Bonds, im Gegensatz zu dem Ergebnis derselben Betrachtung für die kolumnare Dimerisierung.

Diese Zusammenhänge können auch in der Bondoperator-Darstellung betrachtet werden. Der erste Summand im Ringaustauschoperator (1.5) $\sim (\mathbf{S}_i^{(1)} \mathbf{S}_i^{(2)}) (\mathbf{S}_{i+\hat{x}}^{(1)} \mathbf{S}_{i-\hat{y}}^{(2)})$ zerfällt bei Molekularfeld-Entkopplung in

$$\begin{aligned}&\langle \mathbf{S}_i^{(1)} \mathbf{S}_i^{(2)} \rangle (\mathbf{S}_{i+\hat{x}}^{(1)} \mathbf{S}_{i-\hat{y}}^{(2)}) + (\mathbf{S}_i^{(1)} \mathbf{S}_i^{(2)}) \langle \mathbf{S}_{i+\hat{x}}^{(1)} \mathbf{S}_{i-\hat{y}}^{(2)} \rangle + \text{const.} \\ \text{mit } \mathbf{S}_i^{(1)} \mathbf{S}_i^{(2)} &= -\frac{3}{4} \bar{s}^2 + \frac{1}{4} \sum_{\alpha} t_{i,\alpha}^{\dagger} t_{i,\alpha} \\ \mathbf{S}_{i+\hat{x}}^{(1)} \mathbf{S}_{i-\hat{y}}^{(2)} &= -\frac{1}{4} \bar{s}^2 \sum_{\alpha} (t_{i+\hat{x},\alpha}^{\dagger} t_{i-\hat{y},\alpha} + t_{i+\hat{x},\alpha} t_{i-\hat{y},\alpha} + \text{h.c.}) + \mathcal{O}(t^3) \quad .\end{aligned}\tag{3.19}$$

Da Triplettpaarerwartungswerte der Form (2.15) vernachlässigt werden, bleibt von diesem Operator nur der *positive* Energiebeitrag $-\frac{3}{4}\bar{s}^2\mathbf{S}_{i+\hat{x}}^{(1)}\mathbf{S}_{i-\hat{y}}^{(2)}$, der das Hüpfen der Triplets dämpft. Das bedeutet, die Wechselwirkung zwischen benachbarten Dimeren wird durch Ringaustausch abgeschwächt und damit die ungeordnete Phase stabilisiert. Im Gegensatz dazu besteht der Ringaustauschoperator im kolumnar dimerisierten System nur aus Produkten von Spins, die auf demselben Dimer sitzen (mittlere Zeile in (3.19)). In zweiter Quantisierung hat er die Gestalt $-\frac{3}{4}\bar{s}^2 t_{\alpha}^{\dagger} t_{\alpha} + \text{const.}$, d. h. die Energie zur Erzeugung von Triplets wird abgesenkt. Damit verringert sich auch die Anregungslücke, und der kritische Punkt nimmt dort kleinere Werte an.

Tatsächlich hat also Vierspinwechselwirkung ganz unterschiedlichen Einfluss auf die Eigenschaften des Systems mit einerseits kolumnarer und andererseits alternierender Dimerisierung. In Abbildung 3.9 sind Grundzustandsenergie und Anregungslücke des alternierend dimerisierten Gitters ohne sowie mit 10% und 20% Ringaustausch gezeigt. In der kleinen eingesetzten Abbildung ist zu sehen, dass der kritische Punkt mit zunehmendem Ringaustausch zu höheren Werten von λ verschoben wird. Der Vergleich mit Abbildung 3.4 zeigt deutlich das gegensätzliche Verhalten der Anregungslücke bei kolumnarer Dimerisierung.

Jüngste Untersuchungen des Anregungsspektrums von La_2CuO_4 in Spinwellentheorie der Ordnung $1/S$ zeigen, dass die experimentellen Ergebnisse durch ein Modell mit $\lambda = 1$ und $x_{\text{cyc}} = 24\%$ sowie Zweit- und Drittnächstenachbar-Kopplung von rund 2% gut beschrieben werden [34]. Die Spinsteifigkeit, die ein (inverses) Maß für die Stärke der Quantenfluktuationen darstellt, ist im Vergleich zum 2D-Heisenberg-Modell reduziert. Der Ringaustausch wirkt hier also langreichweitiger magnetischer Ordnung entgegen, wie es das Modell mit alternierender Dimerisierung vorhersagt.

3.3 Geordnete Phase

Die Beschreibung des dimerisierten Spin- $\frac{1}{2}$ -Quadratgitters als Spinflüssigkeit hat sich als brauchbar erwiesen für nicht zu starke Kopplung zwischen den Dimeren. Für alle betrachteten Dimerisierungsmuster liefert die Bondbosonen-Untersuchung einen kritischen Punkt, an dem diese Beschreibung zusammenbricht und das System einen Phasenübergang durchläuft. Der kritische Wert der Dimer-Dimer-Kopplung hängt vom Dimerisierungsmuster und der Größe der Vierspinwechselwirkung ab. Da diese Abhängigkeiten in den vorigen Abschnitten sorgfältig untersucht worden sind, soll die geordnete Phase nur in dem System mit alternierender Dimerisierung ohne den Einfluss von Ringaustausch betrachtet werden. Diese Dimerisierung bietet sich an, weil sie dieselben Translationseigenschaften wie der Néel-Zustand besitzt: Man kann sich an Abbildung 3.1 klar machen, dass das Spingitter durch Verschiebung um zwei Gitterplätze (im Spingitter, das gegenüber dem Gitter der Bondbosonen gedreht ist) in sich selbst übergeht.

Aus Untersuchungen mit anderen Methoden ist bekannt, dass das dimerisierte 2D-Heisenberg-Modell in eine langreichweitig magnetisch geordnete Phase mit endlicher Untergittermagnetisierung übergeht, in der die Spinrotationsinvarianz spontan gebrochen ist. Der bisherige Ansatz zur Beschreibung von Quantenspinsystemen als Spinflüssigkeiten muss also für ein System mit endlicher Untergittermagnetisierung angepasst werden. Das Modell beschreibt dann per Konstruktion ein langreichweitig magnetisch geordnetes und gleichzeitig dimerisiertes System. Hierzu gibt es gerade in jüngster Zeit Untersuchungen [51, 52].

Um die Wirkung einer endlichen Untergittermagnetisierung auf die Zustände der Dimere zu untersuchen, modelliert man ihren Einfluss auf Molekularfeld-Niveau. Ein einzelner Spin nimmt also von den magnetischen Momenten der anderen Spins nur ein gemittelttes Magnetfeld h_M wahr, dessen Richtung als z -Richtung bezeichnet werden soll. Dieses Magnetfeld wechselt wie die lokalen magnetischen Momente mit der Gitterperiode das Vorzeichen. Das System wird beschrieben durch den Hamiltonoperator \mathcal{H} des Heisenberg-Modells mit alternierender Dimerisierung, der um eine *Störung* durch das Magnetfeld h_M erweitert ist,

$$\mathcal{H}_M = \mathcal{H} + h_M \sum_{\mathbf{i}} (S_{\mathbf{i},z}^{(1)} - S_{\mathbf{i},z}^{(2)}) \quad , \quad (3.20)$$

mit den z -Komponenten $S_{\mathbf{i},z}^{(u)}$ der Spinoperatoren auf dem Dimer \mathbf{i} und dem Untergitter u . Der gestörte Hamiltonoperator geht durch adiabatisches Einschalten des gemittelten Feldes h_M aus dem ungestörten Modell (3.12) hervor und liefert dieses

wieder zurück, wenn die Störung verschwindet. Außerdem kommutiert (3.20) offenbar nicht mehr mit dem Quadrat des Gesamtdrehimpulses $\mathbf{S}_{\text{tot}}^2$, wohl aber mit der z -Komponente $S_{\text{tot},z}$

$$[\mathcal{H}_M, \mathbf{S}_{\text{tot}}^2] \neq 0 \quad [\mathcal{H}_M, S_{\text{tot},z}] = 0 \quad (3.21)$$

Betrachtet man zunächst den lokalen Hamiltonoperator auf einem Dimer, so wird das ungestörte Problem durch die vollständige Basis der Bondbosonen beschrieben. Durch die Störung werden die Zustände vermischt, da die z -Komponente des Gesamtspins aber erhalten bleibt, können nur solche Zustände mischen, die in $S_z = S_z^{(1)} + S_z^{(2)}$ übereinstimmen. Zur Darstellung bietet sich hier zweckmäßigerweise die Basis der Eigenzustände des Operators S_z an, $\{|s\rangle, |\tilde{t}_0\rangle, |t_{+1}\rangle, |t_{-1}\rangle\}$ mit

$$\begin{aligned} |\tilde{t}_0\rangle &= |t_z\rangle \\ |t_{+1}\rangle &= |\uparrow\uparrow\rangle \\ |t_{-1}\rangle &= |\downarrow\downarrow\rangle \quad , \end{aligned} \quad (3.22)$$

und $S_z|t_\sigma\rangle = \sigma|t_\sigma\rangle$ [51]. Die Triplets mit den z -Komponenten $\sigma = \pm 1$ werden wegen (3.21) von der Störung nicht beeinträchtigt. Dagegen wird das Triplet $|\tilde{t}_0\rangle$ mit dem Singulett vermischt, da beides Zustände mit $S_z = 0$ sind. In erster Ordnung Störungsrechnung in h_M lässt sich der lokale Hamiltonoperator darstellen als

$$\mathcal{H}_M^{\text{lok}} = \begin{pmatrix} -\frac{3}{4} & h_M & 0 & 0 \\ h_M & \frac{1}{4} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \frac{1}{4} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{1}{4} \end{pmatrix} \quad , \quad (3.23)$$

mit den Eigenwerten

$$\begin{aligned} \varepsilon_0^{(1)} &= -\frac{1}{4} \mp \sqrt{\frac{1}{4} + h_M^2} \\ \varepsilon_{+1}^{(1)} &= \varepsilon_{-1}^{(1)} = \frac{1}{4} \end{aligned} \quad (3.24)$$

d. h. die Energie des Singulett wird durch die Beimischung des Triplets $|\tilde{t}_0\rangle$ abgesenkt, während die Energie dieses Triplets im selben Maße angehoben wird. Es ist damit nicht mehr mit den beiden übrigen Triplets entartet.

Eine sinnvolle Parametrisierung der Zustände im Magnetfeld, die das Vermischen von Singulett und \tilde{t}_0 -Triplet beschreibt und dem Umstand Rechnung trägt, dass die Zustände sich mit adiabatischem Einschalten der Störung stetig aus den ungestörten Zuständen entwickeln, liefert der folgende Ansatz:

$$\begin{aligned} |s'\rangle &= \cos \vartheta |s\rangle + \sin \vartheta |\tilde{t}_0\rangle \\ |t'_0\rangle &= \cos \vartheta |\tilde{t}_0\rangle - \sin \vartheta |s\rangle \\ |t_{+1}\rangle &= |\uparrow\uparrow\rangle \\ |t_{-1}\rangle &= |\downarrow\downarrow\rangle \quad . \end{aligned} \quad (3.25)$$

Diese Zustände sind orthogonal und normiert und stellen somit eine Basis des lokalen Problems dar. Insbesondere sind das Singulett $|s'\rangle$ und das Triplett $|t'_0\rangle$ wegen (3.21) keine Eigenzustände mehr zum lokalen Operator des Drehimpulsquadrats, so dass die Bezeichnungen „Singulett“ und „Triplett“ in diesem Sinne nicht mehr korrekt sind und im Folgenden zu verstehen sind als Zustände, die aus dem ungestörten Singulett durch Beimischung des Triplets in der ungeordneten Phase bzw. umgekehrt hervorgehen. Der Parameter ϑ misst die Beimischung des Triplets zum Singulett und umgekehrt. Er wird eine Funktion des externen Felds sein, und man erwartet, dass ϑ bei $h_M = 0$ verschwindet und mit der Störung monoton wächst, bis bei $\vartheta = \frac{\pi}{2}$ Singulett und Triplett die Rollen tauschen.

Nach diesen Molekularfeld-Betrachtungen an einem isolierten Dimer soll nun wieder das Quadratgitter behandelt werden. In der geordneten Phase erfahren die Spins infolge der endlichen Untergittermagnetisierung eine Störung, wie sie in obigen Betrachtungen durch ein gemitteltes Feld simuliert wurde. Zur Beschreibung dieser Phase werden also nicht die Bondbosonen (1.6) benutzt, die für die Beschreibung einer Spinflüssigkeit konstruiert worden sind, sondern die Basis (3.25). Im Grundzustand kondensieren die Singulettts. Der erste angeregte Zustand ist in dieser Basis nur noch zweifach entartet und ein dritter angeregter Zustand liegt energetisch darüber. Es gibt also genau wie in der ungeordneten Phase drei Moden von Einteilchenanregungen, da sich die Anzahl der Zustände nicht ändert. Diese drei Moden lassen sich in der geordneten Phase als Fluktuationen in der Untergittermagnetisierung interpretieren. Wie in der Einleitung ausgeführt wurde sind die Elementaranregungen aus dem Néel-Zustand heraus masselose Spinwellen, Goldstone-Bosonen. Die beiden Triplets mit $S_z = \pm 1$ sollten also ein lückenloses Spektrum zeigen. Dagegen liegt die dritte Mode energetisch über diesen beiden, und man erwartet, dass sie einen endlichen Gap besitzt. Man kann sich die Goldstone-Moden nämlich als Fluktuationen in der Phase der Untergittermagnetisierung (z. B. bezüglich einer Kristallachse) vorstellen. Offenbar gibt es zwei transversale Moden, die solche Anregungen beschreiben können. Die Amplitude dieser Fluktuationen kann beliebig klein werden, da die Untergittermagnetisierung makroskopisch ist. Die dritte Anregung muss dann eine longitudinale Spinwelle sein, die einer Fluktuation des Betrages der Untergittermagnetisierung entspricht. Solche Anregungen sind mit einer endlichen Energie verbunden, dem Gap der longitudinalen Mode, solange es sich dabei um wechselwirkungsfreie, scharfe Zustände handelt. Es können also zwei Anregungsspektren bestimmt werden, ein nicht entartetes mit endlicher Anregungslücke und ein zweifach entartetes lückenloses [53].

In letzter Zeit ist ein longitudinales Magnon als stabiler Anregungszustand diskutiert worden [54–56]. Es ist ein aktueller Forschungsgegenstand, ob diese Mode im Experiment nachweisbar ist, oder ob sie instabil gegen Zerfall in zwei transversale Magnonen mit entgegengesetzten S_z -Komponenten ist. Es ist anzumerken, dass dieser Zerfall mit der Bondbosonen-Methode nicht modelliert werden kann, weshalb sie eine scharfe longitudinale Mode liefert. Der Zerfall wird aber stets zu einer mit der endlichen Lebensdauer verbundenen Linienverbreiterung führen.

3.3.1 Erster Zugang

Die Vorgehensweise ist prinzipiell dieselbe wie in den vorigen Abschnitten, mit dem Unterschied, dass die Basis der Einteilchenzustände durch (3.25) gegeben ist und einen weiteren Variationsparameter enthält, der ein Maß dafür angibt, wie stark die Zustände vermischt sind. Der Hamiltonoperator des Systems ist unverändert durch (3.12) gegeben, doch mit der Basistransformation auf die Zustände der geordneten Phase nimmt dieser Operator in zweiter Quantisierung eine andere Gestalt an als im vorigen Abschnitt. Insbesondere bekommt er eine Abhängigkeit von ϑ und lässt sich darstellen als

$$\begin{aligned}
\mathcal{H} &= \mathcal{H}_0 + \frac{1}{4}\lambda J \sum_{\mathbf{i}} (h_{\mathbf{i}}^{(0)} + h_{\mathbf{i}}^{(1)} + h_{\mathbf{i}}^{(2)} + h_{\mathbf{i}}^{(3)} + h_{\mathbf{i}}^{(4)}) \\
\mathcal{H}_0 &= J \sum_{\mathbf{i}} \left[\left(-\frac{3}{4} + \sin^2 \vartheta \right) s_{\mathbf{i}}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}} + \left(\frac{1}{4} - \sin^2 \vartheta \right) t'_{\mathbf{i},0}{}^{\dagger} t'_{\mathbf{i},0} \right. \\
&\quad \left. + \frac{1}{2} \sin 2\vartheta (s_{\mathbf{i}}^{\dagger} t'_{\mathbf{i},0} + t'_{\mathbf{i},0}{}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}}) + \frac{1}{4} (t_{\mathbf{i},+1}^{\dagger} t_{\mathbf{i},+1} + t_{\mathbf{i},-1}^{\dagger} t_{\mathbf{i},-1}) \right] \\
&\quad - \mu \sum_{\mathbf{i}} (s_{\mathbf{i}}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}} + t'_{\mathbf{i},0}{}^{\dagger} t'_{\mathbf{i},0} + t_{\mathbf{i},+1}^{\dagger} t_{\mathbf{i},+1} + t_{\mathbf{i},-1}^{\dagger} t_{\mathbf{i},-1} - 1) \tag{3.26} \\
h_{\mathbf{i}}^{(0)} &= -\frac{1}{2} \sin^2 2\vartheta \sum_{\eta=(\hat{x},\hat{y},\hat{x}+\hat{y})} s_{\mathbf{i}}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}} s'_{\mathbf{i}+\eta}{}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}+\eta} + h.c. \\
h_{\mathbf{i}}^{(1)} &= -\frac{1}{2} \sin 4\vartheta \sum_{\eta} (s_{\mathbf{i}}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}} s'_{\mathbf{i}+\eta}{}^{\dagger} t'_{(\mathbf{i}+\eta),0} + s_{\mathbf{i}}^{\dagger} t'_{\mathbf{i},0}{}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}+\eta}{}^{\dagger} s'_{\mathbf{i}+\eta}) + h.c. \\
h_{\mathbf{i}}^{(p)} &= \mathcal{O}(t^p) \quad .
\end{aligned}$$

Der Anteil \mathcal{H}_0 ist nichts anderes als der basistransformierte Ausdruck des entsprechenden Anteils der ungeordneten Phase (vgl. (2.2)¹). Wie man sieht treten nach der Transformation auf die Basis der geordneten Phase lineare Anteile in den $t'_{\mathbf{i},0}$ -Tripletts im Hamiltonoperator auf, von denen nach der Fourier-Transformation noch der Beitrag zu $\mathbf{k} = \mathbf{0}$ übrig bleibt (endliche Impulse können wegen Impulserhaltung nicht vorkommen). In dieser Form kann der Hamiltonoperator nicht diagonalisiert werden. Wie bei einem verschobenen Oszillator lässt sich der lineare Beitrag durch eine Transformation $t_{\mathbf{i},0} = t'_{\mathbf{i},0} - \tau$ mit $\tau \in \mathbb{R}$ eliminieren, um folgenden diagonal-

¹Der Operator (2.2) ist allerdings für Spinleitern definiert, daher geht die Summe dort über eine Dimension. In beiden Fällen wird über alle Dimere im System summiert.

sierbaren Hamiltonoperator zu erhalten

$$\begin{aligned}
\mathcal{H} &= E_0 + A(t_{\mathbf{0},0}^\dagger + t_{\mathbf{0},0}) + \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\sigma=-1}^1 [\Lambda_{\mathbf{k},\sigma} t_{\mathbf{k},\sigma}^\dagger t_{\mathbf{k},\sigma} + (\Delta_{\mathbf{k},\sigma} t_{\mathbf{k},\sigma} t_{-\mathbf{k},-\sigma} + h.c.)] \\
\Lambda_{\mathbf{k},0} &= \Lambda_0 + 2\Delta_{\mathbf{k},0} \\
\Delta_{\mathbf{k},0} &= -\frac{1}{4}\lambda J(\bar{s} \cos 2\vartheta + \tau \sin 2\vartheta)^2 \alpha_{\mathbf{k}} \\
\Lambda_{\mathbf{k},+1} &= \frac{1}{4}J - \mu - \frac{1}{2}\lambda J((\bar{s}^2 - \tau^2) \cos 2\vartheta + 2\bar{s}\tau \sin 2\vartheta) \alpha_{\mathbf{k}} \\
&= \Lambda_{\mathbf{k},-1} \\
\Delta_{\mathbf{k},+1} &= \frac{1}{4}\lambda J \left\{ (\bar{s}^2 + \tau^2) \alpha_{\mathbf{k}} + i[(\bar{s}^2 - \tau^2) - \bar{s}\tau \cos 2\vartheta] \beta_{\mathbf{k}} \right\} \\
&= \Delta_{\mathbf{k},-1}^*
\end{aligned} \tag{3.27}$$

mit $\alpha_{\mathbf{k}} = \cos k_x + \cos k_y + \cos(k_x + k_y)$, $\beta_{\mathbf{k}} = \sin k_x + \sin k_y + \sin(k_x + k_y)$. Die Singulettoperatoren werden wie üblich als Kondensat mit dem Erwartungswert \bar{s} aufgefasst. E_0 , A und Λ_0 sind Funktionen der Variationsparameter $(\vartheta, \mu, \bar{s}, \tau)$.

Wie man an der Struktur des Hamiltonoperators erkennen kann, beschreibt er ein System mit zwei Sorten von Teilchen, von denen eine zweifach entartet ist. Damit entspricht er dem Bild der transversalen und longitudinalen Magnonen. Da die beiden Arten von Teilchen auf verschiedene Weise in den Hamiltonoperator eingehen, müssen zwei separate Bogoljubow-Transformationen für die unterschiedlichen Teilchen durchgeführt werden, um (3.27) zu diagonalisieren. Auf die $t_{\mathbf{k},0}$ -Tripletts kann unmittelbar die in Abschnitt 2.1.1 vorgestellte Transformation angewandt werden. Für die $t_{\mathbf{k},\pm 1}$ -Tripletts muss zuvor jedoch eine weitere Transformation durchgeführt werden, da die Koeffizienten $\Delta_{\mathbf{k},\pm 1}$ komplexe Zahlen sind. Mit $\Delta_{\mathbf{k},\pm 1} = |\Delta_{\mathbf{k},\pm 1}| e^{\pm i\varphi}$ und der unitären Transformation $t'_{\mathbf{k},+1} = t_{\mathbf{k},+1} \rightarrow t_{\mathbf{k},+1} e^{-i\varphi}$ ergibt sich

$$\Delta_{\mathbf{k},+1} t'_{\mathbf{k},+1} t_{-\mathbf{k},-1} + h.c. = |\Delta_{\mathbf{k},\pm 1}| (t_{\mathbf{k},+1} t_{-\mathbf{k},-1} + h.c.) \tag{3.28}$$

so dass der transformierte Hamiltonoperator keine komplexen Koeffizienten mehr enthält. Nach der Diagonalisierung lautet er

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{\text{eff}} &= E + \sum_{\mathbf{k}} [\omega_{\mathbf{k},0} \gamma_{\mathbf{k},0}^\dagger \gamma_{\mathbf{k},0} + \omega_{\mathbf{k},1} (\gamma_{\mathbf{k},+1}^\dagger \gamma_{\mathbf{k},+1} + \gamma_{\mathbf{k},-1}^\dagger \gamma_{\mathbf{k},-1})] \\
E &= E_0 + \sum_{\mathbf{k}} [\omega_{\mathbf{k},1} - \Lambda_{\mathbf{k},\pm 1} + \frac{1}{2}(\omega_{\mathbf{k},0} - \Lambda_{\mathbf{k},0})] \\
\omega_{\mathbf{k},0} &= \sqrt{\Lambda_{\mathbf{k},0}^2 - 4\Delta_{\mathbf{k},0}^2} \\
\omega_{\mathbf{k},1} &= \sqrt{\Lambda_{\mathbf{k},\pm 1}^2 - 4|\Delta_{\mathbf{k},\pm 1}|^2} \\
\gamma_{\mathbf{k},m} &= u_{\mathbf{k},m} t_{\mathbf{k},m} + v_{\mathbf{k},m} t_{-\mathbf{k},-m}^\dagger
\end{aligned} \tag{3.29}$$

Die Lösung zu finden besteht folglich aus der Bestimmung von nunmehr vier

Variationsparametern ϑ , μ , \bar{s} und τ . Dazu dienen folgende Bedingungen

$$\Delta = 0 \quad (3.30a)$$

$$A = 0 \quad (3.30b)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \mu} = 0 \quad (3.30c)$$

$$\frac{\partial E}{\partial \vartheta} = 0 \quad (3.30d)$$

Die Bedingung (3.30a) bringt zum Ausdruck, dass das Anregungsspektrum lückenlos ist, $\omega_{\mathbf{k},1} = 0$, wie aus den Vorbetrachtungen bekannt ist. Aus dieser Bedingung kann beispielsweise der Erwartungswert der Singulettoperatoren \bar{s} in Abhängigkeit der übrigen drei Parameter bestimmt werden. Das Verschwinden der Anregungslücke liefert eine quadratische Gleichung für \bar{s} . Daher gibt es zwei Lösungen, von denen jedoch eine aus physikalischen Gründen ausgeschlossen werden kann. Da die Singulettlets als Teilchenoperatoren maximal den Erwartungswert Eins annehmen können, ist dieser auf das Intervall $\bar{s} \in [0, 1]$ beschränkt.

Damit der Hamiltonoperator diagonalisiert werden kann, muss der lineare Term in den Triplettoperatoren verschwinden. Nach Konstruktion wird der Tripletterwartungswert τ so bestimmt, dass der Koeffizient A im Hamiltonoperator (3.27) Null wird. Da der Parameter \bar{s} als Funktion von ϑ , μ und τ schon bekannt ist, vereinfacht sich A zu einem Polynom zweiten Grades in τ . Von den beiden Nullstellen von A kann wieder eine ausgeschlossen werden, da der Tripletterwartungswert auf $\tau \in [-1, 1]$ beschränkt ist. Damit ist es gelungen, aus dem Verschwinden der Anregungslücke und des linearen Terms die Parameter \bar{s} und τ zu eliminieren und insbesondere die Grundzustandsenergie als Funktion von ϑ und μ zu bestimmen.

Das chemische Potenzial μ wurde eingeführt, um in der Behandlung mit Bondoperatoren die Teilchenzahlerhaltung auf Molekularfeld-Niveau zu berücksichtigen. Es muss daher aus der Sattelpunktgleichung (3.30c) bestimmt werden. Die Grundzustandsenergie ist nun eine Funktion $E(\vartheta)$ des Parameters ϑ , der das Mischungsverhältnis der Einteilchenzustände misst. Durch Minimierung dieser Funktion findet man schließlich ϑ . Die Lösungen von (3.30) können numerisch in Abhängigkeit von der Dimerisierung λ bestimmt werden.

Neben der Grundzustandsenergie und der Anregungslücke der longitudinalen Mode ist in der geordneten Phase die Untergittermagnetisierung M eine interessante Größe, die in Spindarstellung gegeben ist durch

$$M = \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{i}} (S_{\mathbf{i},z}^{(1)} - S_{\mathbf{i},z}^{(2)}) \quad (3.31)$$

Für die Bondbosonenbehandlung wird die Untergittermagnetisierung in zweiter Quantisierung durch dieselben Zustände ausgedrückt wie der Hamiltonoperator und lautet

$$\begin{aligned} M &= M_0 + A_M (t_{0,0}^\dagger + t_{0,0}) - \sin 2\vartheta \sum_{\mathbf{k}} t_{\mathbf{k},0}^\dagger t_{\mathbf{k},0} \\ M_0 &= N [(\bar{s}^2 - \tau^2) \sin 2\vartheta - 2\bar{s}\tau \cos 2\vartheta] \quad (3.32) \end{aligned}$$

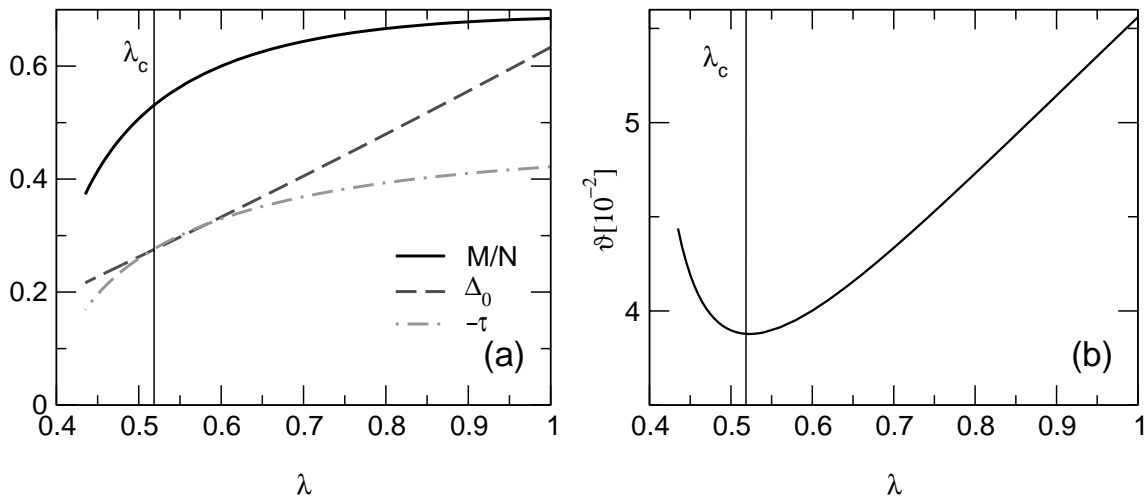


Abbildung 3.10: Ergebnisse des ersten Zugangs: (a) Untergittermagnetisierung pro Dimer M/N , Gap der longitudinalen Mode Δ_0 und Tripletterwartungswert τ ; (b) Parameter der Mischung von Singulett und Triplet; die vertikalen Linien markieren den in Abschnitt 3.2 ermittelten kritischen Punkt.

Wenn im Folgenden von der Untergittermagnetisierung die Rede ist, dann ist damit der Erwartungswert dieser Größe im Grundzustand gemeint. Diesen Erwartungswert bestimmt man wie in Anhang B gezeigt aus

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H}_M &= \mathcal{H} + hM \\
 \langle M \rangle &= \left. \frac{\partial \langle \mathcal{H}_M \rangle}{\partial h} \right|_{h=0} \\
 &= M_0 + \frac{N}{2} \sin 2\vartheta \left(1 - \int_{\text{1. BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{\Lambda_{\mathbf{k},0}}{\omega_{\mathbf{k},0}} \right)
 \end{aligned} \tag{3.33}$$

Wie eingangs erläutert erwartet man, dass $\vartheta = 0$ wird, wenn die Untergittermagnetisierung verschwindet. Da dies am kritischen Punkt passiert, sollte gleichzeitig auch der Tripletterwartungswert τ verschwinden. Man sieht in (3.33) mit M_0 aus (3.32), dass tatsächlich aus $M = 0$ und $\vartheta = 0$ folgt, dass τ verschwindet. In Abbildung 3.10(b) ist der Verlauf von ϑ in Abhängigkeit der Dimerisierungsstärke λ gezeigt. Die vertikale Linie markiert den kritischen Punkt $\lambda_c = 0.519$, der für dasselbe System in der ungeordneten Phase errechnet worden ist. Die Lösung nimmt ein Minimum bei $\lambda = 0.525 \pm 0.005$ an. Dennoch bleibt ϑ endlich, genauso wie die Untergittermagnetisierung, der Tripletterwartungswert τ und die Anregungslücke Δ_0 der longitudinalen Mode. Diese Ergebnis stellt also einen Phasenübergang erster Ordnung dar. Im Widerspruch dazu legen die Erkenntnisse aus der Behandlung der ungeordneten Phase einen kontinuierlichen Phasenübergang nahe. Am kritischen Punkt sollten daher alle in Abbildung 3.10 gezeigten Größen verschwinden. Bei $\lambda = 0.43$ bricht die Beschreibung zusammen, da es keine reellen Lösungen der Bestimmungsgleichungen (3.30) mehr gibt.

Offenbar überschätzt der Ansatz die Neigung des Systems, zu ordnen und ei-

ne endliche Untergittermagnetisierung auszubilden. Anders gesagt, in der Nähe des Phasenübergangs wird die Neigung zur Mischung von Singulett und t_0 -Tripletts überschätzt. Der Grund dafür ist in der Behandlung der Gesamtteilchenzahlerhaltung (Singuletts plus Triplets) mit Hilfe eines chemischen Potentials zu sehen, die eine Tripletanregung mit den Energiekosten $-\mu$ belegt, die aus dem Beitrag $-\mu(s^\dagger s + \sum_\alpha t^\dagger t)$ resultieren. Da die unitäre Basistransformation (3.25) keinen Einfluss auf den Erwartungswert der Gesamtteilchenzahl hat, wird die Beimischung von Triplets zum Grundzustand infolge dieser Drehung der Basiszustände *nicht* durch das chemische Potenzial oder einen anderen Mechanismus kontrolliert. Daher wird diese Verdrehung überschätzt, weil sie eine Anregung ohne Energieaufwand darstellt. Es ist somit möglich, eine Lösung mit langreichweitiger Ordnung schon bei Werten $\lambda < \lambda_c$ zu erreichen, obwohl die Triplets dort noch nicht weich geworden sind.

3.3.2 Alternativer Zugang

Es ist festzuhalten, dass der zuerst gewählte Zugang zur Beschreibung der geordneten Phase nicht in der Lage ist, den Übergang in eine ungeordnete Phase konsistent zu beschreiben. Nach den obigen Betrachtungen vermutet man als Ursache dafür die unzureichende Beschreibung der Energiekosten der Drehung der Basiszustände s und t_0 . Um diesem Schwachpunkt in der Methode entgegen zu wirken, wird ein alternativer Zugang gewählt, der die Tripletanregungen und die Energiekosten der Basisdrehung gleich behandelt. Zur Erläuterung wird die Basis (1.6) der Bondbosonen in der ungeordneten Phase benutzt. In einer an (2.2) angelehnten Schreibweise kann der für den alternativen Zugang modifizierte Hamiltonoperator dargestellt werden als $\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda \mathcal{H}_n$. Hier beschreibt \mathcal{H}_0 die Wechselwirkungen der Spins auf den Dimeren und ist gegeben durch

$$\mathcal{H}_0 = \sum_i \left\{ \sum_\alpha [J t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} - m(t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} - \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \rangle)] - \mu_2 (s_i^\dagger s_i + \sum_\alpha t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} - 1) \right\} . \quad (3.34)$$

Der Diagonalanteil der Wechselwirkung der Singuletts ist durch eine Verschiebung des Energieniveaus um die Grundzustandsenergie der isolierten Dimere $-\frac{3}{4}NJ$ eliminiert worden, so dass Tripletanregungen von diesem Energienullpunkt aus gemessen werden. Außerdem ist ein zusätzlicher Parameter m eingeführt worden, der nur die Tripletanzahl kontrolliert. Er übernimmt in gewissem Sinne die Funktion des chemischen Potentials, indem er die Anregung von Triplets bestraft mit einer Energie $J - m$, die im ursprünglichen Ansatz den Betrag $\frac{1}{4}J - \mu$ hatte. Insofern entspricht m dem um die Energieverschiebung korrigierten chemischen Potenzial. Da m nicht mehr die Gesamtteilchenzahl messen kann, wird der Parameter μ_2 eingeführt. Wie in Anhang B gezeigt wird, ist die Teilchenzahl gemittelt über das ganze System erhalten (vgl. Argumentation in Abschnitt 1.3), wenn

$$\left. \frac{\partial \langle \mathcal{H} \rangle}{\partial \mu_2} \right|_{\mu_2=0} = 0 . \quad (3.35)$$

Insofern dient μ_2 hier nur als Hilfsparameter, der die Teilchenzahlerhaltung misst und am Schluss bei allen Berechnung auf Null wird gesetzt. Dagegen wird die Anhebung der Energie der Tripletanregungen mit dem Parameter m realisiert. Grob

gesprochen wird m so geändert, dass (3.35) erfüllt ist. Der Anteil \mathcal{H}_n des Hamiltonoperators beschreibt die Wechselwirkungen zwischen den Dimeren, die von den Modifikationen nicht betroffen sind und daher dieselbe Gestalt haben wie im vorigen Abschnitt.

Der modifizierte Hamiltonoperator wird in derselben Weise wie beim ursprünglichen Ansatz auf die Basis (3.25) der geordneten Phase, einschließlich der Verschiebung $t_{i,0} = t'_{i,0} - \tau$ transformiert und nimmt folgende Form an

$$\begin{aligned} \mathcal{H} &= E_0 + A(t_{0,0}^\dagger + t_{0,0}) + \sum_{\mathbf{k}} \sum_{\sigma=-1}^1 [\Lambda_{\mathbf{k},\sigma} t_{\mathbf{k},\sigma}^\dagger t_{\mathbf{k},\sigma} + (\Delta_{\mathbf{k},\sigma} t_{\mathbf{k},\sigma} t_{-\mathbf{k},-\sigma} + h.c.)] \\ \Lambda_{\mathbf{k},0} &= (J - m) \cos^2 \vartheta - \mu_2 + 2\Delta_{\mathbf{k},0} \\ \Delta_{\mathbf{k},0} &= -\frac{1}{4} \lambda J (\bar{s} \cos 2\vartheta + \tau \sin 2\vartheta)^2 \alpha_{\mathbf{k}} \\ \Lambda_{\mathbf{k},\pm 1} &= J - m - \mu_2 - \frac{1}{2} \lambda J [(\bar{s}^2 - \tau^2) \cos 2\vartheta + 2\bar{s}\tau \sin 2\vartheta] \alpha_{\mathbf{k}} \\ \Delta_{\mathbf{k},\pm 1} &= \frac{1}{4} \lambda J \left\{ (\bar{s}^2 + \tau^2) \alpha_{\mathbf{k}} + i [(\bar{s}^2 - \tau^2) - \bar{s}\tau \cos 2\vartheta] \beta_{\mathbf{k}} \right\} . \end{aligned} \quad (3.36)$$

Nach Diagonalisierung des Hamiltonoperators mittels zweier Bogoljubow-Transformationen können die Variationsparameter bestimmt werden. Aus $\Delta = 0$ erhält man

$$\bar{s} = \frac{1}{\cos \vartheta} \sqrt{\frac{J - m - \mu_2}{3\lambda J}} - \tau \tan \vartheta . \quad (3.37)$$

Damit kann man τ bestimmen aus $A = 0$ mit

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{2} (J - m) \bar{s} \sin 2\vartheta - (J - m) \tau \cos^2 \vartheta \\ &+ 3\lambda J (\bar{s}^2 \tau \cos^2 2\vartheta - \frac{1}{2} \tau (\bar{s}^2 - \tau^2) \sin^2 2\vartheta - \frac{1}{4} \bar{s} (\bar{s}^2 - 3\tau) \sin 4\vartheta) . \end{aligned} \quad (3.38)$$

Mit den Substitutionen $\bar{t} = \frac{\tau}{\bar{s}}$ und $y = \lambda J \bar{s}^2$ findet man

$$\begin{aligned} \bar{t} &= \tan \vartheta \\ y &= \frac{1}{3} (J - m) \cos^2 \vartheta . \end{aligned} \quad (3.39)$$

Der Hamiltonoperator vereinfacht sich dadurch erheblich. Insbesondere stellt sich heraus, dass die Dispersionen der beiden Triplettsorten gegeben sind durch

$$\begin{aligned} \omega_{\mathbf{k},0} &= \cos^2 \vartheta \omega_{\mathbf{k},1} \\ \omega_{\mathbf{k},1} &= (J - m) \sqrt{1 - \frac{1}{3} \alpha_{\mathbf{k}}} . \end{aligned} \quad (3.40)$$

Das bedeutet, dass alle drei Moden masselos sind und Anregungen der longitudinalen Mode mit beliebig kleiner Energie möglich sind. Diese Eigenschaft des Modells widerspricht den Befunden der Untersuchung der geordneten Phase mit dem

ursprünglichen Zugang und deckt sich nicht mit den Erwartungen, dass die longitudinale Mode massiv sein sollte (wie oben erläutert wurde, ist jedoch die Bedeutung des longitudinalen Magnons noch ungeklärt).

Die Bestimmung von m als Funktion von ϑ geschieht über die Sattelpunktgleichung (3.35), in die über \bar{s} und \bar{t} beide Größen eingehen

$$-\bar{s}^2(1 + \bar{t}^2) + \frac{5}{2} - \frac{3}{2} \int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2k}{4\pi^2} \frac{\Lambda_{\mathbf{k},\pm 1}}{\omega_{\mathbf{k},1}} = 0 \quad . \quad (3.41)$$

Die vollständige Lösung findet man schließlich durch Minimierung der Funktion $E(\vartheta)$ bezüglich ϑ mit der Grundzustandsenergie

$$\begin{aligned} E &= E_0 + \sum_{\mathbf{k}} \left[\omega_{\mathbf{k},1} - \Lambda_{\mathbf{k},\pm 1} + \frac{1}{2}(\omega_{\mathbf{k},0} - \Lambda_{\mathbf{k},0}) \right] - \frac{3}{4}NJ \\ E_0 &= N \left[(J - m)\bar{s}^2(\sin \vartheta - t \cos \vartheta)^2 + m \sum_{\alpha} \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \rangle \right] \quad . \end{aligned} \quad (3.42)$$

In der Grundzustandsenergie E wurde die zu Beginn der Rechnung vorgenommene Verschiebung um $\frac{3}{4}NJ$ wieder rückgängig gemacht, womit der Energiebeitrag der Singulettts in Rechnung gestellt wird. Der Erwartungswert $\langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \rangle$ ist noch zu berechnen. Dazu definiert man

$$\begin{aligned} E_0^{\text{MF}} &= N \left[(J - m)\bar{s}^2(\sin \vartheta - t \cos \vartheta)^2 \right] \\ E^{\text{MF}} &= E_0^{\text{MF}} + \sum_{\mathbf{k}} \left[\omega_{\mathbf{k},1} - \Lambda_{\mathbf{k},\pm 1} + \frac{1}{2}(\omega_{\mathbf{k},0} - \Lambda_{\mathbf{k},0}) \right] \\ &= E_0^{\text{MF}} + N(J - m) \left(1 + \frac{1}{2} \cos^2 \vartheta \right) \int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2k}{4\pi^2} \left[\sqrt{1 - \frac{1}{3}\alpha_{\mathbf{k}}} - \left(1 - \frac{1}{6}\alpha_{\mathbf{k}} \right) \right] \quad . \end{aligned} \quad (3.43)$$

Der Tripletterwartungswert kann mit der in Anhang B beschriebenen Methode aus E_{MF} bestimmt werden. Die Grundzustandsenergie liest sich dann folgendermaßen

$$\begin{aligned} E &= E^{\text{MF}} - m \frac{\partial E^{\text{MF}}}{\partial m} - \frac{3}{4}NJ \\ \frac{\partial E^{\text{MF}}}{\partial m} &= N \left(1 + \frac{1}{2} \cos^2 \vartheta \right) \left(1 - \int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2k}{4\pi^2} \frac{1 - \frac{1}{6}\alpha_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 - \frac{1}{3}\alpha_{\mathbf{k}}}} \right) \quad . \end{aligned} \quad (3.44)$$

Die Integrale in (3.43) und (3.44) sind offenbar von ϑ und m unabhängige Konstanten. Da außerdem E_0^{MF} wegen $\bar{t} = \tan \vartheta$ verschwindet, ergibt sich $E \propto (1 + \frac{1}{2} \cos^2 \vartheta) + \text{const.}$, so dass das Minimum der Grundzustandsenergie für beliebiges m bei $\vartheta = 0$ liegt. Die in (3.25) eingeführt Drehung der Zustände, mit der das System auf eine endliche Untergittermagnetisierung reagiert, findet folglich nicht statt und die Basis ist unverändert zu der in der Beschreibung der ungeordneten Phase eingesetzten. Der alternative Zugang beschreibt also ein magnetisch ungeordnetes System mit masselosen Anregungen.

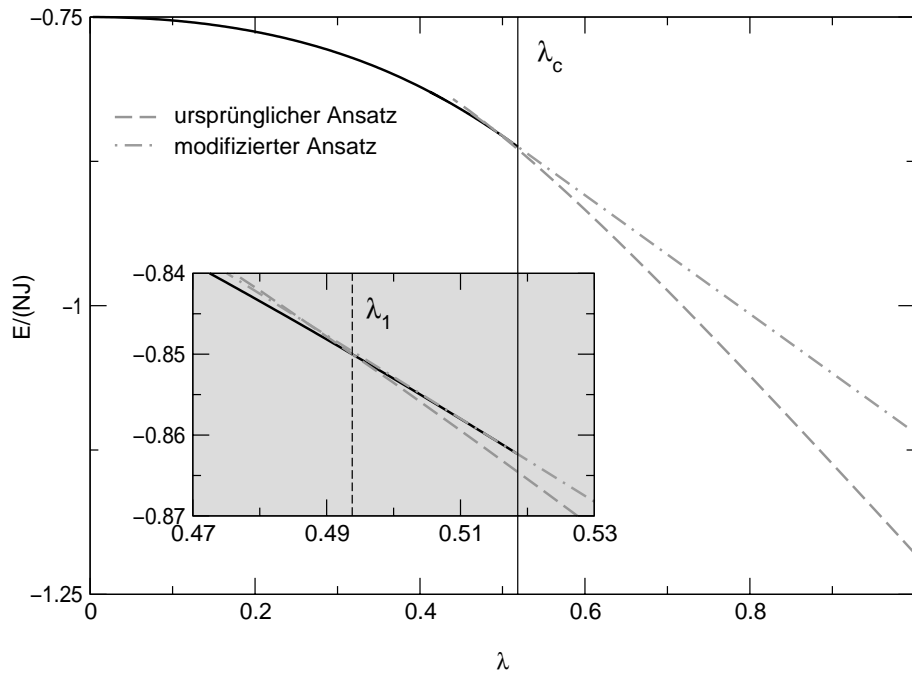


Abbildung 3.11: Grundzustandsenergie des Gitters mit alternierender Dimerisierung. Die geordnete Phase ist mit zwei verschiedenen Methoden untersucht worden. Der Ausschnitt zeigt eine Vergrößerung des Bereiches um den kritischen Punkt.

Wie sich schon anhand der Dispersion der longitudinalen Mode zeigte, ist der modifizierte Ansatz nicht in der Lage, die Physik der geordneten Phase korrekt zu beschreiben. Der Ansatz war so konstruiert, dass die Erzeugung von Triplets in der Nähe des kritischen Punktes durch das chemische Potenzial so stark unterdrückt wird, dass die Untergittermagnetisierung und die Anregungslücke der longitudinalen Mode verschwindet. Tatsächlich ist der Einfluss des chemischen Potenzials in diesem Modell jedoch so stark, dass der Gap der Amplitudenmode, wie oben schon zu sehen war, und die Untergittermagnetisierung für beliebige Dimerisierung exakt verschwinden. Die Energiekosten für die Verdrehung der Basiszustände scheinen zu hoch zu sein, um spontane Symmetriebrechung zu bewirken.

In Abbildung 3.11 ist die Grundzustandsenergie in Einheiten der Austauschkopplung J und der Anzahl der Dimere N als Funktion der Dimerisierungsstärke im Intervall $0 \leq \lambda \leq 1$ dargestellt. Unterhalb des kritischen Punktes ist das Ergebnis der Rechnung zur ungeordneten Phase aus Abschnitt 3.2 gezeigt, das am kritischen Punkt mit dem Ergebnis des modifizierten Ansatzes für die Néel-geordnete Phase zusammentrifft. Offenbar ist die Grundzustandsenergie hier stetig differenzierbar. Damit liegt also ein Phasenübergang zweiter Ordnung vor. Dieses stetige Verhalten der beiden Lösungen ist nicht überraschend, da beide Modelle durch dieselbe Basis beschrieben werden und sehr ähnliche Eigenschaften haben: beide zeigen keine Anregungslücke und keine Untergittermagnetisierung. Dass die Lösungen unterhalb von λ_c wieder auseinanderlaufen, liegt daran, dass bei dieser Untersuchung als zusätzliche Nebenbedingung das Verschwinden der Anregungslücke gefordert worden ist. Diese Nebenbedingung liefert aber in der ungeordneten Phase nicht mehr

die niedrigste Grundzustandsenergie.

Die Lösung des ursprünglichen Zuganges läuft ebenfalls in der Nähe des kritischen Punktes mit der Grundzustandsenergie der Néel-Phase zusammen, schneidet diese jedoch in einem endlichen Winkel, wie man in der Vergrößerung in der Abbildung sehen kann. Der Schnittpunkt liegt bei $\lambda_1 = 0.494$, also nur dicht bei dem in Abschnitt 3.2 bestimmten kritischen Punkt $\lambda_c = 0.519$. Dieses Modell beschreibt also einen Phasenübergang erster Ordnung, wie schon durch die Befunde für die Untergittermagnetisierung im vorigen Abschnitt gezeigt wurde. Am Punkt $\lambda = 1$, an dem die Dimerisierung verschwindet, sind die Ergebnisse der beiden Methoden deutlich verschieden. Man findet mit dem *ursprünglichen* Ansatz einen Wert der Grundzustandsenergie pro *Spin* von $E_0 = -0.607$, die mit einer Reihe anderer Methoden, unter anderem QMC [57] auf einen Wert von $E_0^{QMC} = -0.669$ bestimmt worden ist. Damit weicht das Ergebnis der Bondoperator-Untersuchung um 9% vom gängigen Literaturwert ab. Die Abweichung bei der Untergittermagnetisierung ist von derselben Größenordnung: Die Bondoperatoren-Methode liefert $M = 0.342$ pro Spin, dagegen $M^{QMC} = 0.307$. Der *modifizierte* Zugang liefert mit $E_0 = -0.555$ und $M \equiv 0$ ein noch schlechteres Resultat.

Wir halten fest, dass die beiden Ansätze zur Modellierung der geordneten Phase gleichermaßen, aber in verschiedener Weise scheitern, alle Aspekte der Physik dieses Systems zu erfassen. Insbesondere ist es nicht gelungen, aus der Behandlung der geordneten Phase eine präzise Aussage über die Lage des kritischen Punktes zu gewinnen, um die Ergebnisse der ungeordneten Phase daran zu prüfen. Daraus kann die Schlussfolgerung gezogen werden, dass die Näherungen der Bondbosonen-Methode in der hier verwendeten Form zu grob sind, um den Phasenübergang und die Néel-Phase zu beschreiben. Der Einfluss der Wechselwirkungen zwischen den Triplets, der bei dieser Untersuchung vernachlässigt wurde, ist offenbar wichtig [23].

Kapitel 4

Diskussion

Fassen wir noch einmal kurz die Ergebnisse dieser Arbeit zusammen. Untersucht worden sind die Grundzustandseigenschaften ($T = 0$) und Anregungsspektren zweidimensionaler und quasi-eindimensionaler Quantenspinsysteme auf der Grundlage des Heisenberg-Modells mit Nächstnachbar-Wechselwirkung

$$\mathcal{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \quad . \quad (4.1)$$

Wir haben den Zugang der Bondoperatoren-Methode gewählt, die statisch dimerisierte Systeme im Sinne von Einteilchenzuständen auf den Dimeren beschreibt, und haben in dieser Formulierung eine Molekularfeld-Näherung gemacht. Die wesentlichen Gesichtspunkte dieser Näherung sind die Annahme, dass die Singulets als Bosekondensat vorliegen mit einem makroskopischen Erwartungswert, sowie die Reduktion der Forderung nach lokaler Teilchenzahlerhaltung auf eine global und in Molekularfeld-Näherung zu erfüllende Bedingung. Während die erste Annahme gerechtfertigt werden kann mit der Vorstellung, dass der Grundzustand – entweder als Spinflüssigkeit oder als dimerisierter Néel-Zustand – primär aus Singulets aufgebaut ist, die in großer Zahl ständig vernichtet und wieder erzeugt werden können, muss die Behandlung der Teilchenzahlerhaltung durch ein chemisches Potenzial als problematisch angesehen werden. Zum einen ist auf Grund der Molekularfeld-Näherung nur der *Erwartungswert* der Teilchenzahl an jedem Gitterplatz Eins, während die Fluktuationen der Bondbosonen die Teilchenzahlerhaltung verletzen können. Für diese Problematik sind verschiedene Lösungen vorgeschlagen worden [23, 51]. Zum anderen erlaubt die globale Nebenbedingung die physikalisch unsinnige Situation, dass an manchen Gitterplätzen mehrere Teilchen sitzen, während andere leer sind.

Wir haben alle Systeme in zwei unterschiedlichen Dimerisierungsmustern untersucht, um so den Einfluss des Dimerisierungsmusters auf die Eigenschaften des Systems bestimmen zu können. Anhand der Resultate für die Spin- $\frac{1}{2}$ -Leiter haben wir die Näherung begründet, dass Wechselwirkungen von Triplets miteinander vernachlässigt werden können. Im Rahmen dieser Näherung erzielen wir für die Leiter mit Sprossendimerisierung keine quantitative, aber zumindest in Anbetracht der Vereinfachungen des Ansatzes zufriedenstellende Übereinstimmung mit Störungsrechnungsuntersuchungen im Bereich von Dimerisierungsstärken bis $\frac{J_{\parallel}}{J_{\perp}} \approx 1$. Die Ergebnisse stimmen in erster Ordnung überein. Es herrscht weitgehend Einigkeit

darüber, dass die Spinleiter eine endliche Anregungslücke besitzt [15, 40, 58]. Dieses Ergebnis kann mit der Bondbosonen-Methode reproduziert werden, wohingegen lineare Spinwellentheorie für beliebige Dimerisierung ein lückeloses Spektrum liefert [49].

Darüber hinaus wurde gezeigt, dass eine alternierende Dimerisierung nicht geeignet ist, die Spinleiter zu beschreiben, da eine Variation der Zwischenkettenkopplung die Form der Dispersion nicht stark genug beeinflusst und insbesondere ein falsches Verhalten des Gaps vorhersagt. Jüngste Erkenntnisse im Zusammenhang mit der Untersuchung des Ringaustausches in Spinleitern machen dieses Ergebnis plausibel, da das untersuchte Dimerisierungsmuster tatsächlich eine Spinleiter mit endlichen Vierspinwechselwirkungen beschreibt. Dieses System zeigt langreichweitige Dimerordnung und ist durch einen quantenkritischen Punkt von der Spinflüssigkeitsphase, in der Sprossendimerisierung vorliegt, getrennt [42]. Es besitzt also andere Symmetrieeigenschaften und kann daher die Physik der Spinleiter ohne Ringaustausch nicht beschreiben.

Mit einer Untersuchung des sprossendimerisierten Systems unter Berücksichtigung des Ringaustausches konnten wir zeigen, dass die Bondoperatoren-Methode die Physik der Spinleiter insofern richtig wiedergibt, als die Dispersion abgesenkt wird. Sie scheitert aber vorherzusagen, dass der Gap sich bei endlichem Ringaustausch $J_{\text{cyc}} > 0$ und endlicher Holmkopplung $J_{\parallel} < \infty$ schließt und ein Quantenphasenübergang auftritt [39, 42, 47, 48]. Da man erwartet, dass das System oberhalb des quantenkritischen Punktes in einer dimergeordneten Phase mit alternierender Dimerisierung vorliegt, bietet sich für zukünftige Untersuchungen eine Behandlung dieses Systems mit endlichem Ringaustausch im Bereich um den Phasenübergang bei $\lambda = 1$, $x_{\text{cyc}} \approx 20\%$ an [42].

Vor dem Hintergrund der einigermaßen befriedigenden Resultate für die Spinleiter haben wir die Bondoperatoren-Methode auf ein zweidimensionales Quadratgitter in verschiedenen Dimerisierungsmustern angewendet. Diese Systeme sind schon in der Arbeit, in welcher der Formalismus erstmals vorgestellt worden ist, Gegenstand der Untersuchung gewesen, in deren Mittelpunkt jedoch die Charakterisierung des Grundzustandes und das Phasendiagramm lag [9]. Wir haben zwei verschiedene Systeme mit kolumnarer Dimerisierung und ein weiteres mit alternierender Dimerisierung betrachtet und die Eigenschaften dieser Systeme ausgehend von der magnetisch ungeordneten Phase isolierter Dimere untersucht. Wir finden in allen Systemen einen kritischen Punkt, an dem die Anregungslücke verschwindet und ein Quantenphasenübergang auftritt. Die Übereinstimmung der Lage des kritischen Punktes aus Untersuchungen mit der Bondbosonen-Methode (BMF) mit den Ergebnissen aus QMC-Untersuchungen, linearer Spinwellentheorie (LSW) und Störungstheorie (ST) ist zufriedenstellend, wenn auch die Streuung der Werte für die unterschiedlichen Verfahren recht groß ist, wie die folgende Tabelle für kolumnare Dimerisierung (k.D.), gekoppelte Leitern (g. L.) und alternierende Dimerisierung (a. D.) zeigt.

	k. D.	g. L.	a. D.
BMF	0.622	0.440	0.519
QMC	0.535	0.314	
LSW	0.106		
ST	0.54 ± 0.02		0.39 ± 0.01

Der entscheidende Unterschied zwischen den beiden untersuchten Dimerisierungsmustern zeigt sich bei Anwesenheit von Ringaustausch. Es stellt sich heraus, dass im Rahmen der Näherung das System mit kolumnarer Dimerisierung durch Ringaustauschbeiträge in die geordnete Phase getrieben wird, während die Quantenfluktuationen im alternierend dimerisierten System stärkeren Einfluss bekommen und die Spinflüssigkeitsphase bevorzugt wird. Dieses Ergebnis ist konsistent mit den Erkenntnissen bei der Spinleiter, bei der durch endlichen Ringaustausch die sprossendimerisierte (kolumnare) Spinflüssigkeitsphase destabilisiert wird.

Ein Hauptaugenmerk dieser Arbeit lag in der Bestimmung der Position des kritischen Punktes. Daher wurde der Versuch unternommen, mit der derselben Methode auch die Néel-geordnete Phase zu beschreiben, um zu sehen, ob die Ergebnisse konsistent sind. Die geordnete Phase ist unter anderem deshalb reizvoll, weil sie die Anwesenheit einer massiven longitudinalen Mode zeigen sollte, die in letzter Zeit viel diskutiert wird [54–56]. Bislang ist unklar, ob diese Mode experimentell zugänglich ist. Durch Zerfall in zwei transversale Magnonen ist damit zu rechnen, dass das longitudinale Magnon zumindest verbreitert sein wird.

Wir stellen fest, dass eine naheliegende Verallgemeinerung des Formalismus aus der ungeordneten Phase zwar eine massive longitudinale Mode liefert, aber keine vollständige Beschreibung ermöglicht. Die Lösung zeigt nämlich einen Phasenübergang *erster* Ordnung. Es stellt sich heraus, dass die Tripletfluktuationen mit diesem Zugang nicht richtig erfasst werden, da die mit der Drehung der Basiszustände verbundene Beimischung keine Energie kostet. Ein alternativer Ansatz ist entwickelt worden, in dem die Tripletfluktuationen durch einen separaten Kontrollparameter behandelt werden. Dieser scheint jedoch das Manko des ursprünglichen Verfahrens so stark zu überkompensieren, dass dieses Modell keine magnetische Ordnung enthält. Wir ziehen hieraus die Schlussfolgerung, dass die Wechselwirkungen der Triplets in der geordneten Phase des Quadratgitters nicht mehr vernachlässigt werden können.

Für das 2D-Heisenberg-Modell auf einem nicht-dimerisierten ($\lambda = 1$) Quadratgitter gibt es Literaturwerte für die Grundzustandsenergie pro Spin und die Untergittermagnetisierung pro Spin. Die folgende Tabelle stellt die Ergebnisse aus QMC-Rechnungen [57] den in dieser Arbeit in Bondbosonen-Molekularfeld-Behandlung mit dem ursprünglichen (BMF1) und dem alternativen Zugang (BMF2) gefundenen Resultaten gegenüber.

	E_0	M
QMC	-0.669	0.307
BMF1	-0.607	0.342
BMF2	-0.555	0

Die Abweichung der mit der Bondbosonen-Methode ermittelten Werte von den Ergebnissen anderer Methoden ist im Bereich von 10%.

Frühere Untersuchungen des 2D-Heisenberg-Modells mit der Bondbosonen-Methode, welche der Natur des Grundzustandes und dem Phasendiagramm nachgegangen waren, hatten vergleichbare Ergebnisse für den kritischen Punkt ergeben. Sie berichten jedoch von einem weiteren Phasenübergang innerhalb der geordneten Phase bei alternierender Dimerisierung des Gitters [9]. Demnach verteilen sich die Bondbosonen oberhalb des Phasenübergangs, der als erster Ordnung klassifiziert

wird, gemäß einer kolumnaren Dimerisierung, also abweichend von der Dimerisierung des Gitters, die durch die Anordnung von stark und schwach gekoppelten Gitterplätzen gegeben ist. Mit anderen Worten sitzen in dieser Phase nur die Hälfte aller Dimere auf Bonds mit starker Wechselwirkung, und die andere Hälfte auf schwachen Bonds. Diese kuriose Situation hat eine sehr attraktive Eigenschaft: am Punkt $\lambda = 1$ führen alternierende und kolumnare Dimerisierung zum selben Ergebnis. Die kolumnare Dimerisierung zeigt diesen Phasenübergang erster Ordnung klarerweise nicht. Daher wäre es interessant zu untersuchen, ob die Bondbosonen-Methode für dieses Modell bessere Resultate liefert.

Andere Autoren schlagen weitere Dimerisierungsmuster vor, die eine größere Einheitszelle besitzen, beispielsweise das Plaketten-Modell [52]. Diese sind nicht immer unmittelbar auf die Bondoperatoren-Darstellung übertragbar, so besteht eine Plakette aus vier Bonds mit starker Kopplung, während maximal zwei Bosonen auf ihr sitzen können. In der aktuellen Forschung wird diesen Dimerisierungen große Bedeutung beigemessen. Die Tatsache, dass wir eine Koexistenz von Dimerisierung und langreichweitiger Ordnung finden, ist zu erwarten gewesen, da von der Konzeption her die Neigung des Systems, Dimerisierung zu zeigen, stark betont wird. Eine Untersuchung von Korrelationsfunktionen und Struktur Faktoren könnte hier ein klareres Bild von der Zuverlässigkeit dieser Ergebnisse liefern.

Untersuchungen von $\text{LaCuO}_{2.5}$, einem Leitersystem mit relevanten Wechselwirkungen zwischen CuO-Ebenen, das in der Nähe eines quantenkritischen Punktes liegt, wurden mit Erfolg auf endliche Temperaturen ausgedehnt [53]. Die Beschreibung der geordneten Phase erlaubt den Zugang zu Dispersion, Néel-Temperatur und statischer Suszeptibilität für verschiedene Werte der Zwischenleiter-Kopplung. Eine Behandlung des Quadratgitters mit Bondoperatoren bei endlichen Temperaturen ist aber nur dann als sinnvoll anzusehen, wenn es gelingt, in angemessener Weise den Grundzustand zu beschreiben.

Anhang A

Analytische Integrationen

In den Sattelpunktgleichungen der verschiedenen Systeme treten Integrale auf, die zum Teil analytisch lösbar sind und als Ausdrücke von vollständigen elliptischen Integralen angegeben werden können. Es werden drei Gattungen von vollständigen elliptischen Integralen unterschieden,

$$\begin{aligned} K(t) &= \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\varphi}{\sqrt{1-t^2 \sin^2 \varphi}} \quad (\text{erste Gattung}), \\ E(t) &= \int_0^{\frac{\pi}{2}} d\varphi \sqrt{1-t^2 \sin^2 \varphi} \quad (\text{zweite Gattung}), \\ \Pi(t, \nu) &= \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\varphi}{(1-\nu \sin^2 \varphi) \sqrt{1-t^2 \sin^2 \varphi}} \quad (\text{dritte Gattung}). \end{aligned} \tag{A.1}$$

A.1 Integrale mit linearem Radikanden

Bei den Spinleitern sind die Integrale eindimensional. Daher können sie vollständig auf die elliptischen Integrale (A.1) zurückgeführt werden. Die Ausdrücke in Abschnitt 2.1 sind besonders einfach, da $\omega_k \propto \sqrt{1+d \cos k}$. Der Integrand der Sattelpunktgleichung (2.8) lautet

$$\begin{aligned} \frac{\Lambda_k}{\omega_k} &= \frac{1 + \frac{1}{2}d \cos k}{\sqrt{1 + d \cos k}} \\ \text{mit } d &= \frac{2\lambda J \bar{s}^2}{\frac{1}{4}J - \mu} \quad . \end{aligned} \tag{A.2}$$

Da er nur über $\cos k$ von der Integrationsvariablen abhängt, ist er symmetrisch im Integrationsintervall und unter Ausnutzung von $\cos k = 1 - 2 \sin^2 \frac{k}{2}$ erhält man

$$\begin{aligned}
\int_{-\pi}^{\pi} dk \frac{\Lambda_k}{\omega_k} &= 2 \int_0^{\pi} dk \frac{1 + \frac{1}{2}d - d \sin^2 \frac{k}{2}}{\sqrt{(1+d)(1 - \frac{2d}{1+d} \sin^2 \frac{k}{2})}} \\
&= \frac{2}{\sqrt{1+d}} \int_0^{\pi} dk \frac{\frac{1}{2} + \frac{1+d}{2}(1 - \frac{2d}{1+d} \sin^2 \frac{k}{2})}{\sqrt{1 - \frac{2d}{1+d} \sin^2 \frac{k}{2}}} .
\end{aligned} \tag{A.3}$$

Mit den Substitutionen

$$t = \sqrt{\frac{2d}{1+d}} \quad \text{und} \quad \varphi = \frac{k}{2} \tag{A.4}$$

findet man schließlich das gesuchte Integral als Ausdruck von vollständigen elliptischen Integralen:

$$\begin{aligned}
\int_{-\pi}^{\pi} dk \frac{\Lambda_k}{\omega_k} &= \frac{2}{\sqrt{1+d}} \int_0^{\frac{\pi}{2}} \frac{d\varphi}{\sqrt{1-t^2 \sin^2 \varphi}} + 2\sqrt{1+d} \int_0^{\frac{\pi}{2}} d\varphi \sqrt{1-t^2 \sin^2 \varphi} \\
&= 2 \left[\frac{1}{\sqrt{1+d}} K(t) + \sqrt{1+d} E(t) \right]
\end{aligned} \tag{A.5}$$

Für das Integral in der zweiten Sattelpunktgleichung (2.9) findet man auf ähnliche Weise einen entsprechenden Ausdruck in elliptischen Integralen mit demselben Parameter t .

A.2 Quadratische Radikanden

Bei der Spinleiter mit Triplett-Triplett-Wechselwirkung enthält ω_k auf Grund der Triplettenerwartungswerte P und Q quadratischen Beiträge in $\cos k$. Bei der Spinleiter mit alternierender Dimerisierung fallen diese quadratischen Anteile unter Vernachlässigung der Wechselwirkungsterme wieder heraus, doch über die Kopplungen von übernächsten Nachbartripletts bekommt die Dispersion Beiträge in $\cos 2k = 2 \cos^2 k - 1$. Die Integranden in den Sattelpunktgleichungen (2.18) und (2.21) haben deshalb die Form

$$\frac{a + b \cos k + c \cos^2 k}{\sqrt{\alpha + \beta \cos k + \gamma \cos^2 k}} . \tag{A.6}$$

Mit der Substitution $x = \cos k$ und $\sin k = -\sqrt{1 - \cos^2 k}$ für $k \in [0, \pi]$ nehmen die Integrale folgende Gestalt an

$$\int_0^{\pi} dk \frac{a + b \cos k + c \cos^2 k}{\sqrt{\alpha + \beta \cos k + \gamma \cos^2 k}} = \int_{-1}^1 dk \frac{\bar{a} + \bar{b}x + \bar{c}x^2}{\sqrt{(1-x^2)(x-x_1)(x-x_2)}} , \tag{A.7}$$

mit den Nullstellen x_1 und x_2 des Radikanden der linken Seite, wobei ein Faktor $\sqrt{\gamma}$ aus dem Nenner in die Koeffizienten des Zählerpolynoms gezogen wurde

($\bar{a} = a/\sqrt{\gamma}, \dots$). Die Nullstellen dürfen nicht im Integrationsgebiet liegen, da sonst der Radikand, der die Dispersion darstellt, negativ werden kann. Man findet beispielsweise in [59] tabelliert Darstellungen durch elliptische Integrale für Integrale der Form

$$\mathcal{I}_p = \int_a^b dx \frac{x^p}{\sqrt{(x-x_1)(x-a)(b-x)(x_2-x)}} \quad , \quad (\text{A.8})$$

mit $p = 0, 1, 2$ und $x_1 < a < b < x_2$, oder ähnliche Ausdrücke für eine andere Anordnung der Nullstellen. Mit diesen Lösungen lassen sich die Sattelpunktgleichungen in geschlossener Form durch die vollständigen elliptischen Integrale angeben. Dazu genügt es, die Anordnung der Nullstellen zu kennen, was häufig schon mit einfachen Abschätzungen möglich ist.

A.3 Gemischte Integranden

Bei der Untersuchung der Quadratgitter tauchen stets zweidimensionale Integrale auf. Die Integration einer Richtung ist mit ähnlichen Methoden wie oben möglich. Die zweite Integration ist dann zwar nur noch eindimensional, doch ihr Integrand ist ein Ausdruck von elliptischen Integralen, der nicht mehr geschlossen integrierbar ist. Diese Integrale sind nur noch numerisch lösbar. Die Integranden der zweidimensionalen Integrale haben typischerweise die Form

$$\frac{a + b\alpha_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}}} \quad , \quad (\text{A.9})$$

wobei der Parameter d und $\alpha_{\mathbf{k}}$ wie im Text definiert modellabhängig sind.

Bei kolumnarer Dimerisierung ist $\alpha_{\mathbf{k}} = \cos k_x - \frac{1}{2}\eta \cos k_y$ (vgl. Abschnitt 3.1). Der Radikand kann daher folgendermaßen umgeformt werden:

$$1 + d\alpha_{\mathbf{k}} = \frac{2d}{t^2} \left(1 - t^2 \sin^2 \frac{k_x}{2}\right) \quad (\text{A.10})$$

mit $t^2 = \frac{2d}{1 + d(1 - \frac{1}{2}\eta \cos k_y)}$.

Damit erhält man sofort

$$\int_{-\pi}^{\pi} \frac{dk_x}{\sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}}} = \frac{4t}{\sqrt{2d}} K(t) \quad (\text{A.11})$$

$$\int_{-\pi}^{\pi} dk_x \sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}} = 4 \frac{\sqrt{2d}}{t} E(t) \quad .$$

Mit diesen beiden Integralen lassen sich alle k_x -Integrationen ausführen. Dies

wird exemplarisch für das Integral in der Sattelpunktgleichung (3.3) gezeigt:

$$\begin{aligned}
\int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{\Lambda_{\mathbf{k}}}{\omega_{\mathbf{k}}} &= \int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{1 + \frac{1}{2}d\alpha_{\mathbf{k}}}{\sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}}} \\
&= \int_{1. \text{ BZ}} \frac{d^2 k}{4\pi^2} \frac{1}{2} \left(\frac{1}{\sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}}} + \sqrt{1 + d\alpha_{\mathbf{k}}} \right) \\
&= \int_0^\pi \frac{dk_y}{\pi^2} \left(\frac{t}{\sqrt{2d}} K(t) + \frac{\sqrt{2d}}{t} E(t) \right) .
\end{aligned} \tag{A.12}$$

Hier ist ausgenutzt worden, dass der Integrand nur über $\cos k_y$ von der Integrationsvariablen abhängt und daher symmetrisch ist. Wie man sieht ist der Integrand abhängig von vollständigen elliptischen Integralen, die über t eine Abhängigkeit von k_y tragen.

Bei alternierender Dimerisierung tritt eine weitere Komplikation hinzu, da die \mathbf{k} -Abhängigkeit in den Integranden hier wegen $\alpha_{\mathbf{k}} = \cos k_x + \cos k_y + \cos(k_x + k_y)$ verschränkt ist. Unter Berücksichtigung des Ringaustausches hat der Radikand in den Sattelpunktgleichungen (3.17) die Form

$$\begin{aligned}
\omega_{\mathbf{k}}^2 &= a^2 + ab(\cos k_x + \cos k_y) + ac \cos(k_x + k_y) \\
&= \bar{a} + \bar{b} \cos k_x + \bar{c} \sin k_x ,
\end{aligned} \tag{A.13}$$

wobei das Additionstheorem für den Kosinus benutzt wurde und die Koeffizienten

$$\begin{aligned}
\bar{a} &= a(a + b \cos k_y) \\
\bar{b} &= a(b + c \cos k_y) \\
\bar{c} &= -ac \sin k_y
\end{aligned} \tag{A.14}$$

eingeführt wurden. Man definiert eine komplexe Zahl z mit

$$\begin{aligned}
z &= \bar{b} + i\bar{c} \\
&= |z| e^{i\phi_z} \\
\text{mit } |z| &= \sqrt{\bar{b}^2 + \bar{c}^2} \\
\phi_z &= \arctan \frac{\bar{c}}{\bar{b}}
\end{aligned} \tag{A.15}$$

und erhält mit $\bar{b} \cos k_x + \bar{c} \sin k_x = |z| \cos(k_x - \phi_z)$ die folgende Form für den Radikanden

$$\omega_{\mathbf{k}}^2 = \bar{a} + |z| \cos(k_x - \phi_z) . \tag{A.16}$$

Mit einer Verschiebung der Integrationsvariablen um ϕ_z nehmen die k_x -Integrale eine Form an, die mit den oben beschriebenen Umformungen auf die vollständigen elliptischen Integrale zurückgeführt werden können.

Anhang B

Erwartungswerte

Der Erwartungswert eines Operators \mathcal{A} bei $T = 0$ ist gegeben durch das Matrixelement $\langle \phi_0 | \mathcal{A} | \phi_0 \rangle$ des Operators mit dem Grundzustand $|\phi_0\rangle$. Ist der Grundzustand nicht bekannt, kann man den Erwartungswert dennoch bestimmen, wenn es möglich ist, die Grundzustandsenergie $E_0 = \langle \phi_0 | \mathcal{H}_0 | \phi_0 \rangle$ zum Hamiltonoperator \mathcal{H}_0 des Systems zu berechnen. Man führt den Operator \mathcal{A} als Störung ein (\mathcal{A} sei hermitesch, so dass der Erwartungswert reell ist). Die Grundzustandsenergie des gestörten Problems $\mathcal{H}_p = \mathcal{H}_0 + p\mathcal{A}$ lautet dann

$$\begin{aligned} E_p &= \langle \phi_p | \mathcal{H}_p | \phi_p \rangle \\ &= \langle \phi_p | \mathcal{H}_0 | \phi_p \rangle + p \langle \phi_p | \mathcal{A} | \phi_p \rangle \end{aligned} \quad (\text{B.1})$$

mit dem Grundzustand des gestörten Problems $|\phi_p\rangle$. In erster Ordnung Störungsrechnung gilt

$$E_p = E_0 + p \langle \phi_0 | \mathcal{A} | \phi_0 \rangle \quad (\text{B.2})$$

mit dem gesuchten Erwartungswert von \mathcal{A} im Grundzustand des ungestörten Problems. Daraus ergibt sich schließlich

$$\left. \frac{\partial E_p}{\partial p} \right|_{p=0} = \langle \phi_0 | \mathcal{A} | \phi_0 \rangle \quad . \quad (\text{B.3})$$

Ist also E_p als Funktion von p und die partielle Ableitung nach p an der Stelle $p = 0$ berechenbar, so kann man damit den Erwartungswert von \mathcal{A} angeben. Es sollen nun spezielle Anwendungen betrachtet werden.

In Abschnitt 3.3.2 wird der Erwartungswert $\langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \rangle$ berechnet. Dieser Erwartungswert tritt selbst im Hamiltonoperator auf, so dass er nicht direkt aus diesem bestimmt werden kann. Er liefert aber nur einen konstanten Beitrag zur Grundzustandsenergie, der von dem Operator $t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha}$ nicht abhängt. Da bei der Bestimmung des Erwartungswertes alle konstanten Anteile im Hamiltonoperator weggelassen werden können, definiert man $\mathcal{H}_{\text{MF}} = \mathcal{H} - E_0$ mit dem Hamiltonoperator \mathcal{H} und der Molekularfeld-Grundzustandsenergie E_0 aus (3.36). Den Erwartungswert des Operators $t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha}$ kann man mit der oben beschriebenen Methode berechnen. Da man den Anteil $-mt_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha}$ in \mathcal{H}_{MF} als Störung auffassen kann, findet man den gesuchten Erwartungswert direkt aus

$$\langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} \rangle = \left. \frac{\partial \langle \mathcal{H}_{\text{MF}} \rangle}{\partial m} \right|_{m=0} \quad . \quad (\text{B.4})$$

In Abschnitt 2.1.2 werden Erwartungswerte der Operatoren $t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}$ und $t_{i,\alpha} t_{i+1,\alpha}$ betrachtet. Der Hamiltonoperator (2.2) kann in Molekularfeld-Näherung dargestellt werden als

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_P &= E_0 + \mathcal{H}_s + \lambda \mathcal{H}_2^{\text{MF}} \\ \mathcal{H}_s &= \sum_{i,\alpha} \left[\left(\frac{1}{4} J - \mu \right) t_{i,\alpha}^\dagger t_{i,\alpha} + \frac{1}{2} \lambda J \bar{s}^2 (t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} + t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha}^\dagger + \text{h.c.}) \right] \\ \mathcal{H}_2^{\text{MF}} &= J \sum_{i,\alpha} [P(t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - P) - Q(t_{i,\alpha} t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - Q)] \quad .\end{aligned}\tag{B.5}$$

Der Beitrag von \mathcal{H}_s zur Grundzustandsenergie ist unabhängig von P und Q . Betrachtet man als Störung die Operatoren $\mathcal{A}_P = t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - P$ bzw. $\mathcal{A}_Q = t_{i,\alpha} t_{i+1,\alpha} + \text{h.c.} - Q$, so findet man die Erwartungswerte dieser Operatoren durch partielle Ableitung des Erwartungswertes von $\mathcal{H}_2^{\text{MF}}$ nach P bzw. Q . Aus (B.5) entnimmt man

$$\begin{aligned}\langle \mathcal{A}_P \rangle &= \langle t_{i,\alpha}^\dagger t_{i+1,\alpha} \rangle + \text{h.c.} - 2P \\ \langle \mathcal{A}_Q \rangle &= \langle t_{i,\alpha} t_{i+1,\alpha} \rangle + \text{h.c.} - 2Q \quad .\end{aligned}\tag{B.6}$$

Diese Erwartungswerte verschwinden offenbar, wenn (2.15) gilt. Damit sind die Sattelpunktgleichungen (2.18) hergeleitet.

Literaturverzeichnis

- [1] J. G. Bednorz und K. A. Müller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [2] Y. Endoh, K. Yamada, R. J. Birgeneau, D. R. Gabbe, M. A. Kastner, C. J. Peters, P. J. Picone, T. R. Thurston, J. M. Tranquada, G. Shirane, Y. Hidaka, M. Oda, Y. Enomoto, M. Suzuki und T. Murakami, *Phys. Rev. B* **37**, 7443 (1988).
- [3] D. Vaknin, S. K. Sinha, D. E. Moncton, D. C. Johnston und J. M. Newsam, *Phys. Rev. Lett.* **58**, 2802 (1987).
- [4] M. Azuma, Z. Hiroi, M. Takano, K. Ishida und Y. Kitaoka, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3463 (1994).
- [5] M. Hase, I. Terasaki und K. Uchinokura, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 3651 (1993).
- [6] D. A. Tennant, R. A. Cowley, S. E. Nagler und A. M. Tsvelik, *Phys. Rev. B* **52**, 13368 (1995).
- [7] E. Manousakis, *Rev. Mod. Phys.* **63**, 1 (1991).
- [8] S. Sachdev, *Quantum Phase Transitions* (Cambridge University Press, Cambridge, UK, 1999).
- [9] S. Sachdev und R. N. Bhatt, *Phys. Rev. B* **41**, 9323 (1990).
- [10] A. B. Harris und R. V. Lange, *Phys. Rev.* **157**, 295 (1967).
- [11] A. Auerbach, *Interacting Electrons and Quantum Magnetism, Graduate Texts in Contemporary Physics* (Springer, New York, 1994).
- [12] H. Bethe, *Z. Phys.* **71**, 205 (1931).
- [13] F. D. M. Haldane, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1153 (1983).
- [14] P. W. Anderson, *Science* **235**, 1196 (1987).
- [15] D. G. Shelton, A. A. Nersesyan und A. M. Tsvelik, *Phys. Rev. B* **53**, 8521 (1996).
- [16] P. W. Anderson, cond-mat/0104332 (2001).

- [17] C. Knetter, K. P. Schmidt, M. Grüninger und G. S. Uhrig, Phys. Rev. Lett. **87**, 167204 (2001).
- [18] S. Liang, B. Douçot und P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **61**, 365 (1988).
- [19] M. Grüninger, M. Windt, T. Nunner, C. Knetter, K. P. Schmidt, G. S. Uhrig, T. Kopp, A. Freimuth, U. Ammerahl, B. Büchner und A. Revcolevschi, Physica **B312-313**, 617 (2002).
- [20] E. Dagotto und T. M. Rice, Science **271**, 618 (1996).
- [21] A. W. Garrett, S. E. Nagler, D. A. Tennant, B. C. Sales und T. Barnes, Phys. Rev. Lett. **79**, 745 (1997).
- [22] G. S. Uhrig und B. Normand, Phys. Rev. B **58**, R14705 (1998).
- [23] R. Eder, Phys. Rev. B **57**, 12832 (1998).
- [24] P. W. Anderson, Phys. Rev. **86**, 694 (1952).
- [25] R. Kubo, Phys. Rev. **87**, 568 (1952).
- [26] T. Oguchi, Phys. Rev. **117**, 117 (1960).
- [27] S. Sachdev, Science **288**, 475 (2000).
- [28] S. Chakravarty, B. I. Halperin und D. R. Nelson, Phys. Rev. Lett. **60**, 1057 (1988).
- [29] K. P. Schmidt, C. Knetter und G. S. Uhrig, Europhys. Lett. **56**, 877 (2001).
- [30] S. Brehmer, H. Mikeska, M. Müller, N. Nagaosa und S. Uchida, Phys. Rev. B **60**, 329 (1999).
- [31] M. Matsuda, K. Katsumata, R. S. Eccleston, S. Brehmer und H.-J. Mikeska, J. Appl. Phys. **87**, 6271 (2000).
- [32] Y. Honda, Y. Kuramoto und T. Watanabe, Phys. Rev. B **47**, 11329 (1993).
- [33] E. Müller-Hartmann und A. Reischl, Eur. Phys. J. B **28**, 173 (2002).
- [34] A. A. Katanin und A. P. Kampf, Phys. Rev. B **66**, 100403 (2002).
- [35] M. Matsumoto, B. Normand, T. M. Rice und M. Sigrist, Phys. Rev. Lett. **89**, 77203 (2002).
- [36] K. Park und S. Sachdev, Phys. Rev. B **64**, 184510 (2001).
- [37] S. Gopalan, T. M. Rice und M. Sigrist, Phys. Rev. B **49**, 8901 (1994).
- [38] T. Barnes, E. Dagotto, J. Riera und E. S. Swanson, Phys. Rev. B **47**, 3196 (1993).

- [39] K. P. Schmidt, H. Monien und G. S. Uhrig, cond-mat/0211429 (2002).
- [40] M. Greven, R. J. Birgeneau und U.-J. Wiese, Phys. Rev. Lett. **77**, 1865 (1996).
- [41] T. Barnes, Int. J. Mod. Phys. **2**, 659 (1991).
- [42] A. Läuchli, G. Schmid und M. Troyer, cond-mat/0206153 (2002).
- [43] T. Hikihara, T. Momoi und X. Hu, cond-mat/0206102 (2002).
- [44] Y. Honda und T. Horiguchi, cond-mat/0106426 (2001).
- [45] K. Hijii und K. Nomura, Phys. Rev. B **65**, 104413 (2001).
- [46] A. Nakasu, K. Totsuka, Y. Hasegawa, K. Okamoto und T. Sakai, J. Phys.: Condens. Matter **13**, 7421 (2001).
- [47] M. Müller, T. Vekua und H.-J. Mikeska, Phys. Rev. B **66**, 134423 (2002).
- [48] A. A. Nersesyan und A. M. Tsvelik, Phys. Rev. Lett. **78**, 3939 (1997).
- [49] N. Katoh und M. Imada, J. Phys. Soc. Jpn. **62**, 3728 (1993).
- [50] R. R. P. Singh, M. P. Gelfand und D. A. Huse, Phys. Rev. Lett. **61**, 2484 (1988).
- [51] M. Matsumoto, C. Yasuda, S. Todo und H. Takayama, Phys. Rev. B **65**, 14407 (2002).
- [52] J. Sirker, A. Klümper und K. Hamacher, Phys. Rev. B **65**, 134409 (2002).
- [53] B. Normand und T. M. Rice, Phys. Rev. B **56**, 8760 (1997).
- [54] B. Lake, D. A. Tennant und S. E. Nagler, Phys. Rev. Lett. **85**, 832 (2000).
- [55] H. J. Schulz, Phys. Rev. Lett. **77**, 2790 (1996).
- [56] A. Zheludev, K. Kakurai, T. Masuda, K. Uchinokura und K. Nakajima, Phys. Rev. Lett. **89**, 197205 (2002).
- [57] A. W. Sandvik, Phys. Rev. B **56**, 11678 (1997).
- [58] S. R. White, R. M. Noack und D. J. Scalapino, Phys. Rev. Lett. **73**, 886 (1994).
- [59] M. Abramowitz und I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions* (Dover Publisher, New York, 1964).

Danksagung

Ich bedanke mich bei Prof. Dr. E. Müller-Hartmann und Priv.-Doz. Götz Uhrig für die Vergabe und Betreuung dieser Arbeit.

Für den Vergleich von Ergebnissen und den Austausch von Daten bedanke ich mich bei Bruce Normand, sowie bei Christian Knetter und Kai Schmidt, die mir ihre Störungsrechnungsergebnisse zur Verfügung gestellt haben. Mein Dank für die freundliche Bereitschaft, meine vielfältigen Fragen zu beantworten, geht an die ganze Müller-Hartmann-Gruppe.

Ich danke Carsten Raas, Carsten Aits und Robert Schmitz für die angenehme Atmosphäre in Zimmer 104 und die sorgfältige Durchsicht der Arbeit.

Für ihre Unterstützung in jeder Hinsicht danke ich meinen Eltern, und Mdm dafür, dass sie durchgehalten hat. . .

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass die vorliegende Arbeit von mir selbstständig angefertigt wurde und außer den angegebenen Quellen keine weiteren Hilfsmittel benutzt wurden.

Thomas Koethe