



Untersuchung der Thermodynamik
eindimensionaler Quantensysteme
mittels Transfermatrix-Renormierungsgruppe

Dissertation

zur Erlangung des Grades eines
Doktors der Naturwissenschaften
des Fachbereichs C - Mathematik und Naturwissenschaften
(Fachgruppe Physik)
der Bergischen Universität Wuppertal

vorgelegt von

Stefan Michael Glocke

WUB-DIS 2007-09
September 2007

Die Dissertation kann wie folgt zitiert werden:

urn:nbn:de:hbz:468-20070939

[<http://nbn-resolving.de/urn/resolver.pl?urn=urn%3Anbn%3Ade%3Ahbz%3A468-20070939>]

1. Prüfer: Prof. Dr. A. Klümper

2. Prüfer: Prof. Dr. R. Hentschke

3. Prüfer: Prof. Dr. R. Koppmann

4. Prüfer: Priv.-Doz. Dr. M. Karbach

Dissertation eingereicht am: 25.09.2007

Mündliche Prüfung (Disputation) am: 31.10.2007

für meine Mutter

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Die Transfermatrix-Renormierungsgruppe (TMRG)	7
2.1	Die Dichtematrix-Renormierungsgruppe (DMRG)	7
2.1.1	Die numerische Renormierungsgruppe	7
2.1.2	Die DMRG-Methode	7
2.2	Die TMRG-Methode	9
2.2.1	Die Quanten-Transfermatrix	9
2.2.2	Physikalische Eigenschaften im thermodynamischen Limes	12
2.2.3	Die Methode - DMRG-Algorithmus für die Quanten-Transfermatrix	14
2.2.4	Die Genauigkeit der TMRG-Ergebnisse	17
3	Die antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette	23
3.1	Eindimensionale Quantenmagnete	23
3.1.1	Das Heisenberg-Modell	23
3.1.2	Die XXX-Kette mit gestagertem Magnetfeld	24
3.2	Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat $\text{CuPM}(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$	28
3.2.1	Kristallstruktur von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat	28
3.2.2	Magnetische Eigenschaften von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat	31
3.2.3	Magnetisierung von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat	31
3.2.4	Suszeptibilität von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat	35
3.3	Kupfer-Benzoat $\text{Cu}(\text{C}_6\text{H}_5\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$	37
3.3.1	Kristallstruktur von Kupfer-Benzoat	37
3.3.2	Magnetische Eigenschaften von Kupfer-Benzoat	38
3.3.3	Magnetisierung von Kupfer-Benzoat	38
4	Die dimerisierte antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette	45
4.1	Das physikalische Modell	45
4.1.1	Die Grüneisen-Skalierung	46
4.2	Vanadyl-Diphosphat $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$	47
4.2.1	Die Struktur von $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$	48
4.2.2	Ausdehnungskoeffizienten und die spezifische Wärme von $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$	48
4.2.3	Zwei verschiedene Energieskalen	52

5	Das erweiterte Hubbard-Modell	55
5.1	Das eindimensionale Hubbard-Modell	55
5.1.1	Fermi-Statistik in der TMRG	56
5.2	Das erweiterte Hubbard-Modell	57
5.2.1	Der Bereich starker Kopplung	59
5.2.2	Der trikritische Punkt	67
5.2.3	Der Bereich schwacher Kopplung	67
5.2.4	Das Phasendiagramm	73
5.2.5	Die Existenz der BOW-Phase	75
6	Zusammenfassung	83
A	Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung	87
B	Klassifizierung kritischer Punkte	89
	Literaturverzeichnis	93
	Danksagung	99

1 Einleitung

In der Festkörperphysik gibt es schon seit über 20 Jahren ein besonderes Interesse an *stark korrelierten Elektronensystemen* [1–3]. In diesen Systemen können Materialeigenschaften, wie z.B. die Magnetisierung, mithilfe der starken Coulomb-Wechselwirkung zwischen den Elektronen beschrieben werden, d.h. komplexes makroskopisches Verhalten wird durch eine starke mikroskopische Wechselwirkung erklärt. Insbesondere interessiert man sich für stark korrelierte Elektronensysteme mit einer niedrig-dimensionalen Unterstruktur. Ein Grund dafür sind die auftretenden starken Quanteneffekte in ein- und zweidimensionalen Systemen. So zeigten Mermin, Wagner und Hohenberg [4, 5], dass die Fluktuationen in Spinsystemen mit langreichweitiger antiferromagnetischer oder ferromagnetischer Ordnung bei endlichen Temperaturen ($T > 0$) groß genug sind, um diese Ordnung zu zerstören. Demnach zerfallen für $T > 0$ alle Korrelationsfunktionen exponentiell ($\sim \exp(-r/\xi)$) mit dem Abstand r , wobei der Zerfall durch die Korrelationslänge ξ charakterisiert wird. Folglich gibt es bei niedrig-dimensionalen Quantensystemen keine Phasenübergänge für $T \neq 0$. Ein Phasenübergang [6] trennt zwei unterschiedliche physikalische Bereiche, sog. Phasen. Der Phasenübergang kann an einem (quanten)kritischen Punkt oder an einer (quanten)kritischen Linie stattfinden. Allerdings wird dort immer eine charakteristische Korrelationslänge divergieren und eine verschwindende Energieskala existieren. Ein weiterer Grund für das starke Interesse an niedrig-dimensionalen Quantensystemen ist ihre experimentelle Realisierbarkeit. Das prominenteste Beispiel sind die Kuprate, die eine zweidimensionale Unterstruktur haben. Sie bestehen aus CuO_2 -Ebenen, die untereinander im Vergleich zu den Kopplungen innerhalb der Ebenen kaum wechselwirken. Im Jahr 1986 fanden Bednorz und Müller [7], dass $\text{La}_{2-x}(\text{Ba},\text{Sr})_x\text{CuO}_4$ ein Hoch-Temperatur-Supraleiter mit einer kritischen Temperatur $T_c = 23$ K ist. (Nur unterhalb der kritischen Temperatur ist das Material supraleitend, mittlerweile gibt es Materialien mit einer kritischen Temperatur über $T_c \approx 130 - 160$ K [8, 9].) Lediglich dotierte Kuprate können supraleitend werden. Undotierte Kuprate gehören in die Gruppe der Mott-Isolatoren, die sich gerade dadurch auszeichnen, dass die Coulomb-Wechselwirkung stark genug ist, Doppelbesetzung (d.h. zwei Elektronen pro Einheitszelle) zu unterdrücken. Ein Ladungstransport ist jedoch nur mittels Doppelbesetzung oder Dotierung möglich. Dabei entstehen Löcher im Mott-Isolator, in die die Elektronen hüpfen können. Ein Mott-Isolator besteht also aus zwei Leitungsbändern, einem gefüllten unteren und einem leeren oberen Leitungsband. Ein einfaches und effektives Modell zur Beschreibung bewegter Elektronen in einem schmalen Leitungsband mit großer Coulomb-Wechselwirkung ist das *Hubbard-Modell* (s. Kap. 5).

Neben den Kupraten gibt es noch weitere niedrig-dimensionale Materialien: Spinketten wie Kupfer-Germanat (CuGeO_3), Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat ($\text{CuPM}(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$) und Kupfer-Benzoesäure ($\text{Cu}(\text{C}_6\text{H}_5\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$) (s. Kap. 3), sowie dimerisierte Spinketten und Spinleitern wie Vanadyl-Diphosphat ($(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$) (s. Kap. 4). Die Spinketten haben eine eindimensionale Unterstruktur. Einige von ihnen sind mit dem Bethe-Ansatz [10, 11] exakt lösbar, wie z.B. das Heisenberg-Modell, das Hubbard-Modell und das Kondo-Modell. Da-

durch sind sie besonders für die theoretische Festkörperphysik sehr interessant. Aber auch für die Experimentalphysik sind Materialien, die durch solche Modelle beschrieben werden können, sehr wichtig, weil mit ihrer Hilfe nicht nur die Messmethoden überprüft, sondern auch wichtige physikalische Eigenschaften, wie z.B. die magnetische Struktur, genauer untersucht werden können.

Viele Materialien jedoch können nicht durch integrable Modelle beschrieben werden. Um diese Materialien sinnvoll zu modellieren, müssen die vorhandenen (integrablen) Modelle durch zusätzliche Kopplungen, wie z.B. Anisotropien, Frustrationen, die Spin-Phonon-Kopplung oder die Spin-Orbital-Kopplung, erweitert werden. Diese neuen Modelle sind nun nicht mehr integrabel, können jedoch häufig durch **feldtheoretische** Methoden analytisch gelöst werden. Dazu wird ein Gittermodell mit einer Gitterkonstante $a_0 \ll \xi$ auf ein kontinuierliches Modell abgebildet. Kritische Punkte können dann mit der Renormierungsgruppe (RG) erfolgreich berechnet werden, weil diese mit den Fixpunkten der RG übereinstimmen. Außerdem kann die konforme Feldtheorie, die Bosonisierung und die dynamische *Mean-Field*-Theorie (DMFT) verwendet werden.

Neben den analytischen Methoden gibt es auch noch numerische Methoden wie die vollständige Diagonalisierung. Bei dieser Methode wird der Hamiltonoperator in einer endlichen Basis der Länge L betrachtet. Die aus dem Hamiltonoperator resultierende Matrix wird diagonalisiert, sodass das gesamte Spektrum bekannt ist und alle thermodynamischen Größen berechnet werden können. Leider ist das aufgrund des hochdimensionalen Hilbertraums (Dimension: S^L) nur für kleine Systeme $L \sim 18$ möglich (S ist hier die Dimension des lokalen Hilbertraums). Manchmal ist die Kenntnis des gesamten Spektrums gar nicht erwünscht, sodass mithilfe des *Lanczos-Verfahrens* [12] größere Systeme ($L \sim 40$) behandelt werden können. Wenn man sich nur auf die **wichtigsten** Zustände¹ konzentriert, dann ist die numerische Renormierungsgruppe (NRG) von Wilson [13] zumindest für das Kondogittermodell erfolgreich. Hier werden nur die Eigenzustände mit den m größten Eigenwerten in jedem Renormierungsschritt behalten. White [14] führte zudem eine sog. **reduzierte Dichtematrix** ein, um die **wichtigsten** Zustände zu beschreiben. Damit war eine der erfolgreichsten numerischen Methoden, die *Dichtematrix-Renormierungsgruppe* (DMRG) [15], erfunden.

Eine weitere numerische Methode ist die Quanten-Monte-Carlo-Methode (QMC). Sie zeichnet sich dadurch aus, dass sie zum einen auf Modelle beliebiger Dimension angewandt werden und zum anderen thermodynamische Größen bei endlicher Temperatur berechnen kann. Dazu werden Integrale mittels stochastischer Methoden, wie etwa dem Metropolis-Algorithmus [16], berechnet. Diese Integrale entsprechen beispielsweise der Integration der Schrödinger-Gleichung. Wie bei der Berechnung thermodynamischer Größen mit dem Bethe-Ansatz, kann aber auch eine Gitterpfad-Darstellung betrachtet werden, die die imaginäre Zeit, bzw. die Temperatur, diskretisiert. In diesem Gitter werden verschiedene Wegkonfigurationen betrachtet. Nun werden in jedem QMC-Schritt neue Wegkonfigurationen vorgeschlagen und mittels einer stochastischen Methode entweder akzeptiert oder wieder verworfen. So kann durch eine hohe Anzahl von QMC-Schritten gewährleistet werden, dass der Mittelwert aller betrachteten Wegkonfigurationen dem physikalischen Erwartungswert entspricht. Leider ist diese Methode wieder nur auf endliche Systemgrößen beschränkt, sodass eine Analyse des *finite-size*-Verhaltens, d.h. eine Extrapolation in der Systemgröße,

¹Die Auswahl der wichtigsten Zustände ist sehr komplex (näheres s. Kap. 2.1).

durchgeführt werden muss, um die physikalischen Größen im thermodynamischen Limes zu berechnen.

Während in den feldtheoretischen Methoden nur sehr niedrige Temperaturen, bei denen $a_0 \ll \xi$ gilt, betrachtet werden können und der Bethe-Ansatz auf integrable Modelle beschränkt ist, ist die QMC-Methode ein sehr wichtiges Instrument, um physikalische Eigenschaften bei endlicher Temperatur zu bestimmen. Dadurch können nicht nur temperaturabhängige Übergänge, wie von einem ungeordneten System bei hoher Temperatur in ein geordnetes quantenkritisches System bei tiefen Temperaturen betrachtet werden, sondern es ist auch möglich experimentelle Daten, die bei endlicher Temperatur gemessen wurden, mit der Theorie zu vergleichen.

Thermodynamische Eigenschaften bei endlicher Temperatur können auch mit der Transfermatrix-Renormierungsgruppe (TMRG) berechnet werden. Während mit der DMRG nur Grundzustandseigenschaften ($T = 0$) von eindimensionalen Quantensystemen untersucht werden können [14], zeigte Nishino [17] einige Jahre nach der Erfindung der DMRG, dass die DMRG-Methode auch auf zweidimensionale klassische Systeme angewandt werden kann, um die Zustandssumme bei endlichen Temperaturen zu berechnen. Nach der gleichen Idee können thermodynamische Eigenschaften eindimensionaler Quantensysteme berechnet werden. Dazu wird das eindimensionale Quantensystem zunächst mithilfe der Trotter-Suzuki-Zerlegung [18–20] auf ein zweidimensionales klassisches System abgebildet. Bursill *et al.* [21] benutzten zuerst diese Idee, aber die ausgewählte Dichtematrix wurde nicht optimal gewählt, so dass das wahre Potential dieser Methode nicht sofort klar wurde. Erst 1997 als Wang und Xiang [22] sowie Shibata [23] einen verbesserten Algorithmus vorstellten, zeigte sich die Dichtematrix-Renormierungsgruppe für Transfermatrizen (oder kurz: Transfermatrix-Renormierungsgruppe) als eine konkurrenzfähige Methode gegenüber der QMC-Methode. Sie ist außerdem eine der präzisesten numerischen Methoden, um thermodynamische Eigenschaften eindimensionaler Quantensysteme zu berechnen. Seitdem ist die TMRG erfolgreich auf viele Quantensysteme wie Spinketten, Kondo-Gitter-Modelle, die t-J-Kette und Spin-Orbital-Modelle [24–32] angewandt worden.

Der größte Vorteil der TMRG ist, dass der thermodynamische Limes **exakt** durchgeführt werden kann. Somit kann die übliche Extrapolation in der Systemgröße vermieden werden. Weiterhin gibt es keine statistischen Fehler, wie in der QMC-Methode. In einem großen Temperaturbereich können Ergebnisse erzielt werden, deren Genauigkeit ebenso hoch ist wie in $T=0$ -DMRG-Berechnungen. Vergleichbar mit dem üblichen DMRG-Algorithmus, ist die TMRG-Methode am besten für eindimensionale Systeme mit kurzreichweitiger Wechselwirkung geeignet. Außerdem gibt es **kein Minuszeichen**-Problem wie in der QMC-Methode, sodass das Quantensystem sowohl fermionisch als auch bosonisch sein kann. Die TMRG scheint sogar einen Vorteil gegenüber anderen numerischen Methoden zu haben. Es ist nämlich möglich, Störstellen- oder Randbeiträge und sogar reelle-Zeit-Dynamik bei endlichen Temperaturen zu berechnen. Rommer und Eggert [33] zeigten, dass es möglich ist, Störstellen- oder Randbeiträge von den *Bulk*-Beiträgen zu trennen. Es gelang ihnen, Größen der Ordnung² $\mathcal{O}(1/L)$ im Vergleich zu *Bulk*-Größen der Ordnung $\mathcal{O}(1)$ direkt zu ermitteln. Die Dynamik eindimensionaler Quantensysteme zu bestimmen, ist ein besonders schweres Problem, weil sowohl mit der QMC- als auch mit der TMRG-Methode nur Korrelationsfunktionen in der imaginären Zeit direkt berechnet werden können. Demnach müssen diese

²Hier bezeichnet L die Systemgröße.

Daten zu reellen Zeiten analytisch fortgesetzt werden. Die analytische Fortsetzung numerischer Daten ist allerdings ein schlecht gestelltes Problem, sodass diese Ergebnisse nicht sehr vertrauenswürdig sind. Mit einer weiteren Trotter-Suzuki-Zerlegung ist es aber möglich, den TMRG-Algorithmus so zu modifizieren, dass eine direkte Berechnung von Korrelationen zu reellen Zeiten und bei endlicher Temperatur möglich ist [34].

Der Aufbau dieser Arbeit ist wie folgt: In Kapitel 2 wird die in dieser Arbeit verwendete numerische Methode, die TMRG, genauer beschrieben. Dazu wird zuerst die DMRG-Methode kurz erläutert, weil sie das Grundgerüst der TMRG ist (s. Kap 2.2.3). Danach werden zwei verschiedene Trotter-Suzuki-Zerlegungen [15, 30, 31] erläutert. Mit den zugehörigen Quanten-Transfermatrizen wird erklärt, wie physikalische Eigenschaften im thermodynamischen Limes berechnet werden können. Zuletzt wird die Qualität der TMRG-Methode am eindimensionalen Hubbard-Modell gezeigt.

Zwei eindimensionale Quantenmagnete, Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat und Kupfer-Benzolat, werden in Kapitel 3 untersucht. Die beiden Materialien verhalten sich wie zwei eindimensionale gestaggerte antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Ketten. Nun werden experimentelle Daten, wie z.B. die Magnetisierung, mit den numerischen Ergebnissen der TMRG verglichen, um die physikalischen Konstanten zu überprüfen und zu bestimmen.

In Kapitel 4 werden wiederum numerische TMRG-Ergebnisse mit experimentellen Daten, wie z.B. der spezifischen Wärme, verglichen. Ziel dieser Arbeit ist die Modellierung von Vanadyl-Diphosphat ($(VO)_2P_2O_7$). Demnach soll geklärt werden, ob Vanadyl-Diphosphat eine eindimensionale dimerisierte Spin-1/2 Heisenberg-Kette ist, oder ob es noch zusätzliche zweidimensionale Kopplungen gibt. Es kann gezeigt werden, dass das Modell einer eindimensionalen schwach dimerisierten Spin-1/2 Heisenberg-Kette die Messergebnisse gut beschreibt und somit keine zusätzlichen Kopplungen nötig sind. Außerdem wird die Existenz zweier verschiedener Energieskalen bewiesen, die natürlicherweise in dimerisierten Spin-1/2 Heisenberg-Ketten enthalten sind.

Die Thermodynamik des halbgefüllten erweiterten Hubbard-Modells (EHM) wird in Kapitel 5 untersucht. Das EHM zeigt verschiedene Phasenübergänge, die durch übliche thermodynamische Größen wie die isotherme Kompressibilität und die magnetische Suszeptibilität bestimmt werden können. Durch die Betrachtung verschiedener Korrelationsfunktionen kann die Existenz einer Phase mit langreichweitiger Dimer-Ordnung gezeigt werden. Diese Phase wird seit einigen Jahren kontrovers in der Literatur diskutiert. Außerdem wird das gesamte Phasendiagramm in dieser Arbeit bestimmt.

Zuletzt werden die Ergebnisse der Arbeit im Kapitel 6 zusammengefasst.

Veröffentlichungen, die auf dieser Arbeit basieren:

- S. Glocke, A. Klümper, H. Rakoto, J. M. Broto, A. U. B. Wolter und S. Süllo, *S = 1/2 antiferromagnetic Heisenberg chain with staggered fields: Copper pyrimidine and copper benzoate using the density matrix renormalization group for transfer matrices*, Phys. Rev. B **73**, 220403 (2006)
- S. Süllo, A. U. B. Wolter, R. Feyerherm, H. Rakoto, J. M. Broto, S. Glocke, A. Honecker und W. Brenig, *Magnetization of staggered S = 1/2 antiferromagnetic Heisenberg chain systems*, J. Phys.: Conf. Ser. **51**, 183-186 (2006)
- S. Glocke, A. Klümper, J. Sirker, *Density-Matrix Renormalization Group for Transfer Matrices: Static and Dynamical Properties of 1D Quantum Systems at Finite Temperature*, Lect. Notes Phys. **739**, 665-677 (2008)
- A. Brühl, B. Wolf, V. Pashchenko, M. Anton, C. Gross, W. Assmus, R. Valenti, S. Glocke, A. Klümper, T. Saha-Dasgupta, B. Rahaman und M. Lang, *Effects of Two Energy Scales in Weakly Dimerized Antiferromagnetic Quantum Spin Chains*, Phys. Rev. Lett. **99**, 057204 (2007)
- S. Glocke, A. Klümper, J. Sirker, *The Half-Filled One-Dimensional Extended Hubbard Model: Phase diagram and Thermodynamics*, Phys. Rev. B **76**, 155121 (2007)³

³eingereicht am 06.07.2007, veröffentlicht am 24.10.2007 (nach Abgabe der Dissertationsschrift)

2 Die Transfermatrix-Renormierungsgruppe (TMRG)

Die in dieser Arbeit verwendete TMRG-Methode kombiniert die Idee der Dichtematrix-Renormierungsgruppe (DMRG) von White [14] mit dem Transfermatrix-Zugang von Suzuki und Inoue [35]. Die DMRG-Methode ist eine sehr präzise numerische Methode zur Berechnung von niedrigdimensionalen stark korrelierten Systemen. Besonders der Grundzustand und die nächstführenden angeregten Zustände können berechnet werden. Während mit der DMRG-Methode nur Eigenschaften bei $T = 0$ untersucht werden können, ist es mit der TMRG-Methode möglich die thermodynamischen Eigenschaften bei endlicher Temperatur ($T > 0$) zu berechnen.

In diesem Abschnitt wird ein Überblick über die DMRG- und die TMRG-Methode gegeben. Die DMRG-Methode ist eine Weiterentwicklung der numerischen Renormierungsgruppe (NRG) von Wilson und die TMRG-Methode eine Erweiterung der DMRG-Methode durch die Transfermatrix. Ein detaillierter Überblick nach Xiang *et al.* [21, 36] und Sirker und Klümper [30, 37] wird in Abschnitt 2.2 gegeben.

2.1 Die Dichtematrix-Renormierungsgruppe (DMRG)

2.1.1 Die numerische Renormierungsgruppe

Wilson schlug die NRG im Jahr 1975 vor, um den Grundzustand des Kondo-Modells zu berechnen [13]. Der Algorithmus startet mit einer Quantenspinkette der Länge L (auch „Block“ genannt), wobei L so groß ist, dass dieses System exakt diagonalisiert werden kann. Dieser Block wird schrittweise um einen Platz erweitert, sodass sich die Systemgröße von L auf $L + 1$ vergrößert. Da der Hilbertraum bei jedem Schritt exponentiell wachsen würde, wird der erweiterte Block renormalisiert, indem immer nur eine feste Anzahl m von Zuständen im Hilbertraum behalten wird. Alle übrigen Zustände werden nicht weiter berücksichtigt. Die geeignete Auswahl der m Zustände ist das zu lösende Problem bei dieser Methode. In der NRG werden immer die m Zustände mit der kleinsten Energie ausgewählt. Für das Kondo-Problem werden damit gute Ergebnisse erzielt. Für andere Systeme wie z.B. das Heisenberg- oder das Hubbard-Modell werden allerdings nur schlechte numerische Ergebnisse produziert.

2.1.2 Die DMRG-Methode

White verwendete die Dichtematrix-Projektion, um die richtige Auswahl der m Zustände in jedem Renormierungsschritt zu gewährleisten. Dadurch kann der Grundzustand sehr genau numerisch berechnet werden. Ein System der Größe L , auch Superblock genannt, wird in ein System- und einen Umgebungsblock geteilt. Die Zustände des System- bzw. des Umgebungsblocks werden als $|i\rangle$ bzw. $|j\rangle$ bezeichnet. Somit kann ein Zustand des Superblocks

als

$$|\Psi\rangle = \sum_{ij} \Psi_{ij} |i\rangle |j\rangle \quad (2.1)$$

geschrieben werden. Die reduzierte Dichtematrix ρ_S für einen Systemblock wird durch

$$\rho_S := \rho_{ii'} = \sum_j \Psi_{ij}^* \Psi_{i'j} \quad (2.2)$$

definiert. Dabei ist \sum_j eine Teilspur über den Umgebungsblock. Normalisiert man die reduzierte Dichtematrix, d.h. $\text{Tr} \rho_S = 1$, so enthält die reduzierte Dichtematrix alle Informationen, um alle Eigenschaften des Systemblocks zu berechnen. In Ref. [15] wird gezeigt, dass die m Eigenvektoren, die zu den m größten Eigenwerten der reduzierten Dichtematrix gehören, die optimale Auswahl sind, um den Grundzustand in jedem Renormalisierungsschritt beschreiben zu können.

DMRG-Algorithmus

Im Folgenden wird kurz der *infinite* DMRG-Algorithmus anhand einer eindimensionalen Quantenkette mit einer Wechselwirkung nur zwischen den nächsten Nachbarn (NN-WW)¹ vorgestellt. Mit diesem Algorithmus können der Grundzustand, niedrigliegende angeregte Zustände sowie lokale Erwartungswerte $\langle A \rangle$ eines beliebigen lokalen Operators A berechnet werden. Dazu werden die folgenden Schritte (s. Abb. 2.1) durchgeführt:

1. Bilde den Systemblock der Größe L

$$H_S = \sum_{i=1}^{L-1} h_{i,i+1}. \quad (2.3)$$

2. Bilde den erweiterten Systemblock H_{S+1} .
3. Konstruiere den Superblock und berechne den Grundzustand $|\Psi\rangle$ sowie niedrigliegende angeregte Zustände, falls benötigt. Dabei kann der erweiterte Umgebungsblock H_{U+1} durch eine Spiegelung des erweiterten Systemblocks gebildet werden.
4. Bestimme die reduzierte Dichtematrix ρ_S und das vollständige Eigenspektrum. Bilde den Projektionsoperator U , indem in die Spalten der Matrix U die orthonormalen Eigenvektoren zu den m größten Eigenwerten geschrieben werden.
5. Berechne alle lokalen Erwartungswerte

$$\langle A \rangle = \text{Tr} \rho_S A. \quad (2.4)$$

6. Projiziere alle Operatoren auf die reduzierte Basis

$$H_S = U^\dagger H_{S+1} U. \quad (2.5)$$

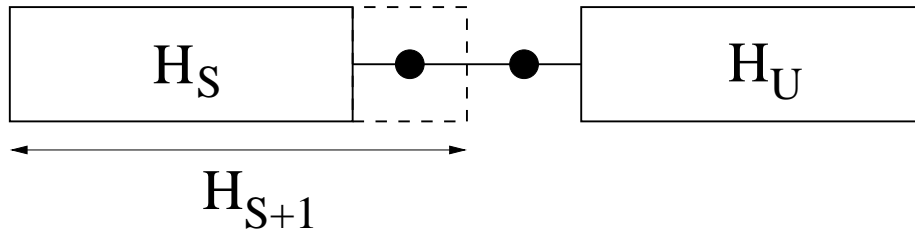


Abbildung 2.1: Der Superblock eines DMRG-Schritts. H_S ist der Systemblock, H_U der Umgebungsblock und H_{S+1} der erweiterte Systemblock.

Somit ist der Systemblock um einen Platz vergrößert worden und der Algorithmus kann mit Schritt 2 fortgesetzt werden.

Durch eine sorgfältige Analyse des *finite-size*-Verhaltens können mit diesem Algorithmus Rückschlüsse auf Ergebnisse im thermodynamischen Limes gemacht werden. Genauere Ergebnisse werden erzielt, wenn dieser Algorithmus mit dem *finite* DMRG-Algorithmus kombiniert wird. Dieser Algorithmus wird hier nicht verwendet. Details kann der Leser in Ref. [15] finden.

2.2 Die TMRG-Methode

Ein D -dimensionales Quantensystem kann prinzipiell durch exakte Diagonalisierung des Hamiltonoperators gelöst werden. Mit derselben Methode können auch die thermodynamischen Eigenschaften des Systems berechnet werden. Allerdings können nur endliche Systeme betrachtet werden, sodass eine *finite-size*-Analyse der Daten notwendig ist, um thermodynamische Eigenschaften im thermodynamischen Limes zu bestimmen. Eine alternative Methode ist die Quanten-Transfermatrix-Methode, die auf einer Trotter-Suzuki-Zerlegung basiert. Dort wird das D -dimensionale Quantensystem auf ein $(D + 1)$ -dimensionales klassisches System abgebildet. Durch Berechnung des größten Eigenwerts der Quanten-Transfermatrix kann das $(D+1)$ -dimensionale klassische System im thermodynamischen Limes gelöst werden. Somit sind auch die thermodynamischen Eigenschaften des D -dimensionalen Quantensystems bekannt. Eine schematische Darstellung ist in Abb. 2.2 zu sehen.

Im folgenden Abschnitt wird dieses Verfahren für eindimensionale Quantensysteme genauer beschrieben, da es die Basis der in dieser Arbeit verwendeten TMRG-Methode bildet.

2.2.1 Die Quanten-Transfermatrix

Die TMRG-Methode basiert auf einer Trotter-Suzuki-Zerlegung der Zustandssumme. Dabei wird ein eindimensionales Quantensystem auf ein zweidimensionales klassisches System abgebildet [18–20]. Im Folgenden wird sowohl die traditionelle Zerlegung nach Suzuki [20] als auch eine alternative Zerlegung [30, 38] beschrieben. Zur Veranschaulichung betrachtet man einen beliebigen Hamiltonoperator H eines eindimensionalen Quantensystems der Länge L

¹In diesem Zusammenhang wird häufig auch von Nächste-Nachbar-Wechselwirkung (NN-WW) gesprochen.

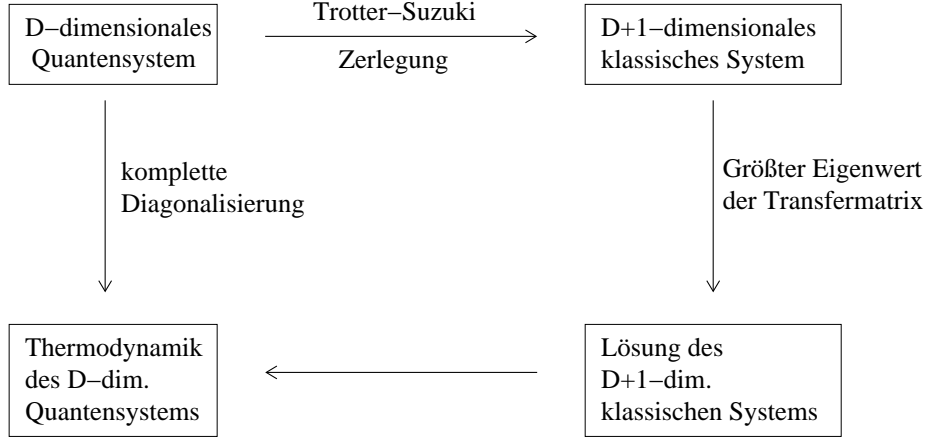


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung zweier Lösungswege, um die thermodynamischen Eigenschaften eines D-dimensionalen Quantensystems zu bestimmen.

mit NN-WW und periodischen Randbedingungen

$$H = \sum_{i=1}^L h_{i,i+1}. \quad (2.6)$$

Da die traditionelle Zerlegung häufig in Quanten-Monte-Carlo- (QMC) und TMRG-Rechnungen benutzt wird und in Ref. [15] detailliert beschrieben wurde, wird diese Zerlegung hier nur kurz erläutert, um das Prinzip der Trotter-Suzuki-Zerlegung zu verdeutlichen.

Zuerst wird der Hamiltonoperator in zwei Teile $H = H_e + H_o$ zerlegt, die aus kommutierenden Summanden bestehen. Hier besteht H_e (H_o) aus Termen $h_{i,i+1}$ mit i gerade (ungerade). Dadurch kann die Zustandssumme in folgender Form geschrieben werden

$$Z = \text{Tr} e^{-\beta H} = \lim_{M \rightarrow \infty} \text{Tr} \left\{ \left[e^{-\epsilon H_e} e^{-\epsilon H_o} \right]^M \right\}, \quad (2.7)$$

wobei $\epsilon = \beta/M$ der Trotter-Suzuki-Parameter, β die inverse Temperatur und M eine natürliche Zahl, auch Trotterzahl genannt, sind. Nun kann eine Darstellung des Identitätsoperators $2M$ -mal in die Zustandssumme eingefügt werden. Dadurch lässt sie sich durch ein Produkt lokaler Boltzmannengewichte ausdrücken

$$\tau_{k,k+1}^{i,i+1} = \left\langle s_k^i s_k^{i+1} \left| e^{-\epsilon H_{e,o}} \right| s_{k+1}^i s_{k+1}^{i+1} \right\rangle. \quad (2.8)$$

In einer graphischen Sprache lassen sich diese Boltzmannengewichte durch schattierte Plaketten darstellen (s. Abb. 2.3). Die Indices i bzw. k repräsentieren die Spinkoordinate in der Raumrichtung bzw. in der Trotter-Richtung, die auch imaginäre Zeitrichtung genannt wird. Eine Spalten-Transfermatrix \tilde{T}_M , die sog. *Quanten-Transfermatrix* (QTM), kann nun mithilfe dieser lokalen Boltzmannengewichte definiert werden:

$$\tilde{T}_M = (\tau_{1,2}\tau_{3,4} \dots \tau_{2M-1,2M}) (\tau_{2,3}\tau_{4,5} \dots \tau_{2M,1}). \quad (2.9)$$

Diese zweispaltige QTM ist auf der linken Seite der Abb. 2.3 dargestellt. Dadurch ist die Zustandssumme gegeben durch

$$Z = \text{Tr} \tilde{T}_M^{L/2}. \quad (2.10)$$

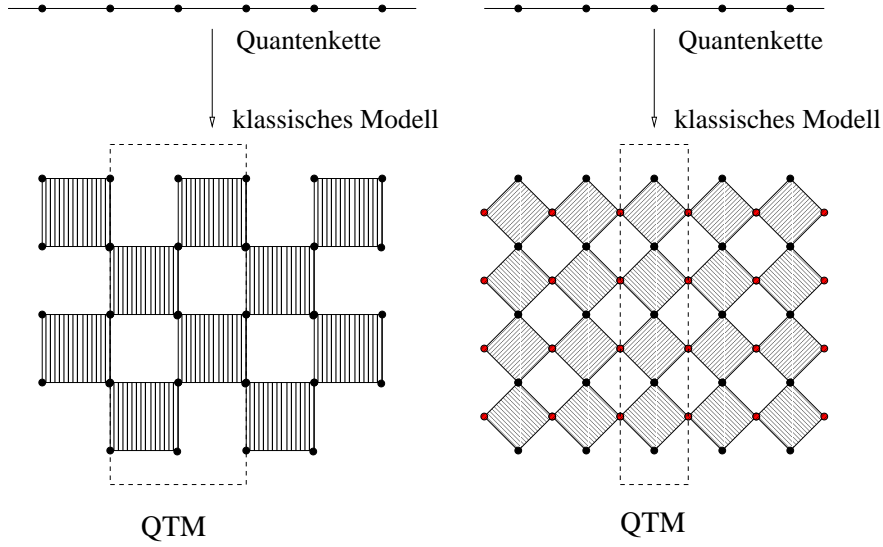


Abbildung 2.3: Die linke Seite veranschaulicht die traditionelle Trotter-Suzuki-Zerlegung. Dabei wird eine eindimensionale Quantenkette auf ein zweidimensionales klassisches Gitter mit Schachbrettstruktur abgebildet. Die vertikale Richtung entspricht der imaginären Zeitrichtung. Die QTM ist zweispaltig. Die rechte Seite zeigt die alternative Trotter-Suzuki-Zerlegung. Dabei ist die QTM einspaltig.

Im Vergleich zur alternativen Zerlegung wird dadurch bei der numerischen Behandlung unnötig viel Arbeitsspeicher benötigt. Ein weiterer Nachteil dieser Trotter-Suzuki-Zerlegung auf ein zweidimensionales Schachbrettgitter ist eine aufwendige Berechnung von Korrelationsfunktionen. Schließlich müssen hier für gerade und ungerade Plätze verschiedene Operatoren definiert werden, wodurch wiederum der Speicherbedarf für numerische Berechnungen ansteigt.

Diese numerischen Nachteile können vermieden werden, indem eine alternative Trotter-Suzuki-Zerlegung [30, 38] verwendet wird. Damit kann die folgende Zustandssumme

$$Z = \lim_{M \rightarrow \infty} \text{Tr} \left\{ [\mathcal{T}_1(\epsilon) \mathcal{T}_2(\epsilon)]^{M/2} \right\} \quad (2.11)$$

definiert werden. Dabei ist $\mathcal{T}_{1,2}(\epsilon) = T_{R,L} \exp[-\epsilon H + \mathcal{O}(\epsilon^2)]$ mit Links- bzw. Rechtsshiftoperatoren $T_{R,L}$. Das so erhaltene klassische Gitter besteht aus alternierenden Reihen sowie zusätzlichen Punkten in einem mathematischen Hilfsgitter. Ein großer Vorteil dieser Trotter-Suzuki-Zerlegung ist, dass eine QTM definiert werden kann, die nur einspaltig ist (s. rechte Seite der Abb. 2.3). Die Herleitung dieser QTM funktioniert analog zur traditionellen QTM, sogar die schattierten Plaketten beschreiben dieselben Boltzmanngewichte. Allerdings sind diese Gewichte von Reihe zu Reihe um 45° im Uhrzeigersinn bzw. im Gegenuhrzeigersinn gedreht. Mit dieser QTM T_M ist die Zustandssumme gegeben durch $Z = \text{Tr} T_M^L$.

2.2.2 Physikalische Eigenschaften im thermodynamischen Limes

Das Eigenspektrum der QTM ist der Grund, dass die Methode der QTM für die numerische Berechnung physikalischer Eigenschaften sehr nützlich ist. Im Grenzfall unendlicher Temperatur ($T \rightarrow \infty$) kann gezeigt werden [37], dass der größte Eigenwert der QTM \tilde{T}_M bzw. T_M durch S^2 bzw. S gegeben ist und alle anderen Eigenwerte gleich null sind. S bezeichnet hier die Anzahl der Freiheitsgrade des physikalischen Systems pro Gitterplatz. Die Lücke zwischen dem führenden Eigenwert Λ_0 und den nächstführenden Eigenwerten Λ_n ($n > 0$) wird immer kleiner, wenn die Temperatur verringert wird. Allerdings wird sich die Lücke erst bei $T = 0$ schließen. Das Verhältnis zwischen dem größten Eigenwert Λ_0 und den anderen Eigenwerten Λ_n definiert nach Gln. (2.16) und (2.17) eine *Korrelationslänge*. Somit divergiert eine Korrelationslänge, wenn sich die Lücke schließt. Das kann aber nur an einem kritischen Punkt oder bei langreichweitiger Ordnung passieren. In einem eindimensionalen Quantensystem mit kurzreichweitiger Wechselwirkung kann es aber keinen Phasenübergang für $T > 0$ geben. Mermin und Wagner [4] haben das für die ferro- und antiferromagnetische Ordnung in eindimensionalen Heisenberg-Modellen gezeigt. Demnach bleibt in eindimensionalen Quantensystemen jede Korrelationslänge und somit auch die Lücke zwischen dem führenden Eigenwert und den nächstführenden Eigenwerten für $T > 0$ endlich. Deswegen kann die freie Energie im thermodynamischen Limes auf die Berechnung des größten Eigenwerts Λ_0 der QTM zurückgeführt werden

$$\begin{aligned}
 f &= - \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{\beta L} \ln Z = - \lim_{L \rightarrow \infty} \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{1}{\beta L} \ln \text{Tr } T_M^L \\
 &= - \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{\beta L} \ln \left\{ \Lambda_0^L \left[1 + \sum_{l>1} \underbrace{(\Lambda_l / \Lambda_0)^L}_{\xrightarrow{L \rightarrow \infty} 0} \right] \right\} \\
 &= - \lim_{\epsilon \rightarrow 0} \frac{\ln \Lambda_0}{\beta} .
 \end{aligned} \tag{2.12}$$

Hier wurde ausgenutzt, dass die Grenzwerte $L \rightarrow \infty$ und $\epsilon \rightarrow 0$ vertauscht werden können [20].

Prinzipiell können nun alle thermodynamischen Größen aus der freien Energie f durch numerische Ableitungen berechnet werden. Allerdings ist es häufig besser, einige Größen, wie z.B. die Magnetisierung, direkt zu berechnen [15, 37]. Der thermische Erwartungswert eines lokalen Operators $O_{1,2}$, der auf die Plätze 1 und 2 wirkt und mit dem lokalen Hamiltonoperator kommutiert, lässt sich wie folgt berechnen

$$\begin{aligned}
 \langle O_{1,2} \rangle &= \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{Z} \text{Tr} \left(O_{1,2} e^{-\beta H} \right) = \lim_{L \rightarrow \infty} \frac{1}{Z} \text{Tr} \left(T_M(O_{1,2}) T_M^{L-1} \right) \\
 &= \frac{\langle \Psi_0^L | T_M(O_{1,2}) | \Psi_0^R \rangle}{\langle \Psi_0^L | \Psi_0^R \rangle} .
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

Hier sind $\langle \Psi_0^L |$ und $| \Psi_0^R \rangle$ die linken und rechten Eigenvektoren, die zum größten Eigenwert Λ_0 der QTM gehören. Die modifizierte QTM ist gegeben durch

$$T_M(O_{1,2}) = (\tau_{1,2}(O_{1,2}) \tau_{3,4} \dots \tau_{L-1,L}) (\tau_{2,3} \tau_{4,5} \dots \tau_{L,1}) \tag{2.14}$$

mit

$$\langle s_1^1 s_1^2 | \tau_{1,2}(O_{1,2}) | s_2^1 s_2^2 \rangle = \langle s_1^1 s_1^2 | \tau_{12} O_{12} | s_2^1 s_2^2 \rangle. \quad (2.15)$$

Es ist auch möglich 2-Punkt-Korrelationsfunktionen

$$\begin{aligned} \langle O_1 O_r \rangle &= \langle \Psi_0^L | T_M(O_1) T_M^{r-1} T_M(O_r) | \Psi_0^R \rangle \\ &= \langle O_1 \rangle \langle O_r \rangle + \sum_{\substack{n \\ n \neq 0}} \frac{\langle \Psi_0^L | T_M(O_1) | \Psi_n^R \rangle \langle \Psi_n^L | T_M(O_r) | \Psi_0^R \rangle}{\Lambda_0 \Lambda_n} \left(\frac{\Lambda_n}{\Lambda_0} \right)^r \\ &= \langle O_1 \rangle \langle O_r \rangle + \sum_{\substack{n \\ n \neq 0}} \underbrace{\frac{\langle \Psi_0^L | T_M(O_1) | \Psi_n^R \rangle \langle \Psi_n^L | T_M(O_r) | \Psi_0^R \rangle}{\Lambda_0 \Lambda_n}}_{M_n} e^{-r/\xi_n} e^{i k_n r} \end{aligned} \quad (2.16)$$

zu berechnen. Die Korrelationslängen ξ_n und Wellenvektoren k_n sind gegeben durch

$$\xi_n^{-1} = \ln \left| \frac{\Lambda_0}{\Lambda_n} \right|, \quad k_n = \arg \left(\frac{\Lambda_n}{\Lambda_0} \right), \quad (2.17)$$

wobei Λ_n der nächstführende Eigenwert mit nicht-verschwindendem Matrixelement $M_n \neq 0$ ist.

Ebenso können statische Korrelationsfunktionen berechnet werden, die durch

$$G(r, z=0) = \int_0^\beta d\tau G(r, \tau) \quad (2.18)$$

definiert sind. Auch hier werden nur der größte Eigenwert sowie die zugehörigen linken und rechten Eigenvektoren der QTM benötigt. Die statischen Korrelationsfunktionen lassen sich mit der QTM für Abstände $r > 0$ schreiben als

$$G(r, z=0) = \frac{\epsilon}{M \Lambda_0^{r+1}} \langle \Psi_0^L | \tilde{T}_M T_M^{r-1} \tilde{T}_M | \Psi_0^R \rangle \quad \text{mit} \quad \tilde{T}_M = \sum_{k=0}^M T_M(O_{\epsilon \cdot k}). \quad (2.19)$$

Hier ist $T_M(O_{\epsilon \cdot k})$ die QTM, an die ein Operator O zur imaginären Zeit $\tau = \epsilon \cdot k$ (Trotterzahl k) angehängt wird. Die statische Autokorrelationsfunktion muss allerdings getrennt berechnet werden

$$G(r=0, z=0) = \frac{\epsilon}{\Lambda_0} \langle \Psi_0^L | \hat{T}_M | \Psi_0^R \rangle \quad \text{mit} \quad \hat{T}_M = \sum_{k=0}^M T_M(O_0, O_{\epsilon \cdot k}). \quad (2.20)$$

Im nächsten Abschnitt wird gezeigt, wie die QTM mit der DMRG-Methode kombiniert wird. Das funktioniert nur, weil die QTM aus lokalen Operatoren besteht, die nicht aufsummiert sondern multipliziert werden (s. Gl. (2.8)). Dennoch gibt es einige Unterschiede, wenn die QTM anstelle eines Hamiltonoperators untersucht wird. Diese Unterschiede sind nicht nur technisch relevant, sondern haben sogar einen wichtigen physikalischen Hintergrund.

Die oben definierte QTM hat nur reelle Einträge, ist aber nicht symmetrisch. Für die Numerik bedeutet das zumindest einen größeren Aufwand, um die QTM zu behandeln. Es

stellt sich also die Frage, ob die QTM symmetrisiert werden kann. Leider ist das nicht der Fall. Könnte die QTM nämlich in eine reelle symmetrische (oder hermitesche) Matrix transformiert werden, wären alle Eigenwerte reell und somit auch die Verhältnisse der nächstführenden Eigenwerte zum führenden Eigenwert. Demnach wären alle Korrelationsfunktionen kommensurabel mit dem Gitter. Es ist aber bekannt, dass ein beliebiges Quantensystem bei hinreichend tiefen Temperaturen inkommensurable Oszillationen zeigt. Dabei kann der Wellenvektor ein beliebiges Vielfaches des Fermi-Vektors sein.

Deshalb ist bekannt, dass das Spektrum der QTM aus reellen Eigenwerten oder aus komplex-konjugierten Eigenwertpaaren besteht. Demnach kann die QTM als eine *normale Matrix* mit einem geeigneten Skalarprodukt verstanden werden. Leider sind die oben eingeführten Matrizen nicht *normal* im Bezug zum gewöhnlichen Skalarprodukt, d.h. es gilt nicht $[T_M, T_M^\dagger] = 0$.

In der Numerik wäre es sicherlich günstiger *normale* Matrizen zu diagonalisieren, allerdings würde es den numerischen Aufwand nur verlagern. Schließlich müsste dann in jedem DMRG-Schritt eine geeignete Basis gefunden werden, um die QTM in eine *normale* Form zu transformieren. Zusätzlich kann nicht beantwortet werden, ob die TMRG-Methode dadurch stabiler oder sogar instabiler werden würde. Im Fall der TMRG-Methode auf dem Schachbrettgitter kann die QTM durch $T_1^{1/2} T_2 T_1^{1/2}$ symmetrisiert werden, wenn sowohl $T_1 = (\tau_{1,2} \tau_{3,4} \dots \tau_{2M-1,2M})$ als auch $T_2 = (\tau_{2,3} \tau_{4,5} \dots \tau_{2M,1})$ symmetrisch und positiv-semidefinit² sind (s. Gl. (2.10)). Diese symmetrisierte QTM zeigte in der Numerik allerdings keinen positiven Effekt (s. Ref. [15]).

2.2.3 Die Methode - DMRG-Algorithmus für die Quanten-Transfermatrix

In diesem Abschnitt wird die in dieser Arbeit verwendete numerische Methode genauer beschrieben. Dazu wird gezeigt, wie der DMRG-Algorithmus mit den Quanten-Transfermatrizen kombiniert wird. Der DMRG-Algorithmus wird benutzt, um die Länge der QTM in der imaginären Zeitrichtung, bzw. in der inversen Temperatur β , schrittweise zu vergrößern. Wie in der gewöhnlichen DMRG (s. Kap. 2.1.2) wird die QTM zuerst in zwei Teile, den Systemblock S und den Umgebungsblock E , aufgeteilt. Die Dichtematrix wird definiert durch

$$\rho = T_M^L, \quad (2.21)$$

wobei T_M die QTM ist. Im thermodynamischen Limes reduziert sich die Dichtematrix bis auf eine Normierungskonstante zu $\rho = |\Psi_0^R\rangle \langle \Psi_0^L|$. Die reduzierte Dichtematrix ρ_S wird wie in der ($T = 0$)-DMRG durch eine Teilspur über den Umgebungsblock

$$\rho_S = \text{Tr}_E \{ |\Psi_0^R\rangle \langle \Psi_0^L| \} \quad (2.22)$$

berechnet. Diese Matrix hat zwar nur reelle Einträge, ist aber nicht symmetrisch, sodass eine numerische Diagonalisierung schwieriger ist als in der üblichen DMRG. Es können sogar komplex-konjugierte Eigenwerte auftreten, die allerdings gesondert behandelt werden können (s. Ref. [15, 37] für Details). Der Trotter-Suzuki-Parameter $\epsilon = \beta/M$ wird in der numerischen Behandlung festgehalten. Für $0.025 \leq \epsilon \leq 0.1$ werden gute numerische Ergebnisse erzielt (s. Kap. 2.2.4). Demnach kann die Temperatur $T = 1/\epsilon M$ in jedem Schritt

²Alle Eigenwerte sind größer oder gleich null.

des DMRG-Algorithmus ($M \rightarrow M + 1$) verringert werden. Im Folgenden werden die Blöcke der QTM T_M um 90° gedreht abgebildet.³ Nun wird der benutzte Algorithmus genauer beschrieben. Es sollte allerdings beachtet werden, dass in der numerischen Behandlung die Fälle M gerade und M ungerade getrennt behandelt werden müssen.

1. Zuerst wird der erste Systemblock Γ konstruiert, der aus M Plaketten besteht. M wird so gewählt, dass die Relation $S^M \leq N < S^{M+1}$ erfüllt wird. S ist die Dimension des lokalen Hilbertraums und N die maximale Anzahl der Zustände, die in allen Iterationsschritten behalten werden. n_s und n'_s sind sog. Block-Spin-Variablen und enthalten $\tilde{N} = S^M$ viele Zustände. Das $S^2 \cdot \tilde{N}^2$ -dimensionale Feld $\Gamma(\sigma, n_s, \tau, n'_s)$ wird gespeichert (s. Abb. 2.4).

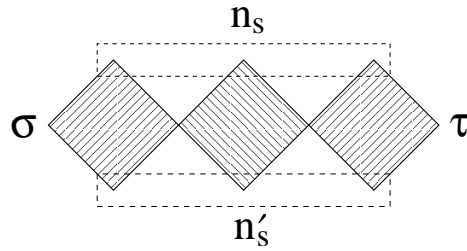


Abbildung 2.4: Der Systemblock Γ . Die Plaketten werden durch eine Summe über angrenzende Spins miteinander verbunden.

2. Der erweiterte Systemblock $\tilde{\Gamma}(\sigma, n_s, s_2, \tau, s'_2, n'_s)$, ein $S^4 \cdot \tilde{N}^2$ -dimensionales Feld, wird berechnet, indem eine Plakette zum Systemblock Γ hinzugefügt wird. Wenn $h_{i,i+1}$ reell und translationsinvariant ist, kann der Umgebungsblock durch eine 180° -Drehung mit nachfolgender Spiegelung des Systemblocks gebildet werden. Andernfalls muss der Umgebungsblock analog zum Systemblock separat behandelt werden. Zusammen bilden der System- und der Umgebungsblock den Superblock (s. Abb. 2.5).

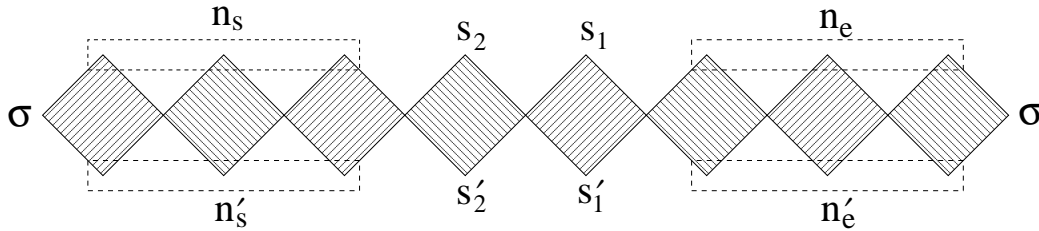


Abbildung 2.5: Der Superblock wird durch eine Summe über alle σ -Zustände periodisch geschlossen.

3. Der führende Eigenwert Λ_0 und der zugehörige linke und rechte Eigenzustand

$$\langle \Psi_0^L | = \Psi^L(s_1, n_s, s_2, n_e), \quad | \Psi_0^R \rangle = \Psi^R(s'_1, n'_s, s'_2, n'_e) \quad (2.23)$$

³Diese Darstellung wurde aus Platzgründen gewählt. Es gibt keine mathematischen oder physikalischen Gründe.

werden berechnet und normiert $\langle \Psi_0^L | \Psi_0^R \rangle = 1$. Damit können die thermodynamischen Eigenschaften zur Temperatur $T = 1/(2\epsilon(M+1))$ berechnet werden.

4. Die reduzierte Dichtematrix wird berechnet, indem eine Teilspur über den Umgebungsblock gebildet wird,

$$\begin{aligned} \rho_s(n'_s, s'_2 | n_s, s_2) &= \sum_{s_1, n_e} |\Psi_0^R\rangle \langle \Psi_0^L| \\ &= \sum_{s_1, n_e} \Psi^R(s_1, n'_s, s'_2, n_e) \Psi^L(s_1, n_s, s_2, n_e). \end{aligned} \quad (2.24)$$

Danach wird das gesamte Spektrum der reduzierten Dichtematrix bestimmt. In den Spalten der Matrix $V^L(\tilde{n}_s | n_s, s_2)$ bzw. $V^R(\tilde{n}'_s | n'_s, s'_2)$ befinden sich die linken bzw. rechten Eigenzustände, die zu den N größten Eigenwerten gehören. Dabei ist \tilde{n}_s bzw. \tilde{n}'_s die neue renormierte Block-Spin-Variable und enthält nur N mögliche Werte.

5. Mit den Matrizen V^L und V^R wird der Systemblock renormiert. Die Renormierung (s. Abb. 2.6) ist gegeben durch

$$\Gamma(\sigma, \tilde{n}_s, \tau, \tilde{n}'_s) = \sum_{n_s, s_2} \sum_{n'_s, s'_2} V^L(\tilde{n}_s | n_s, s_2) \tilde{\Gamma}(\sigma, n_s, s_2, \tau, s'_2, n'_s) V^R(\tilde{n}'_s | n'_s, s'_2). \quad (2.25)$$

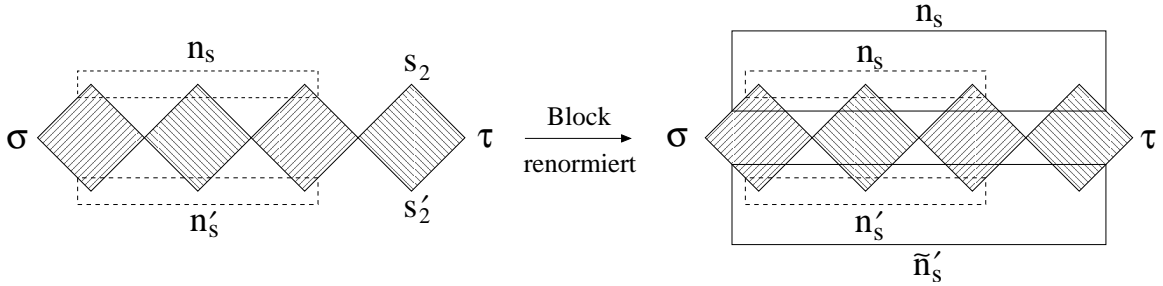


Abbildung 2.6: Der Renormierungsschritt dargestellt für den Systemblock.

Nun kann der Algorithmus mit Schritt 2 wiederholt werden, wobei der neue den alten Systemblock ersetzt. Man sollte allerdings beachten, dass die Block-Spin-Variable nun N anstatt \tilde{N} viele Werte enthält.

Numerische Durchführung

Der vorhin beschriebene Algorithmus wurde in der Sprache C programmiert.⁴ Nun werden die numerischen Methoden, die in den einzelnen TMRG-Schritten verwendet werden, kurz erläutert. Zuerst wird erklärt, wie die Eigenwerte und Eigenvektoren der QTM (Schritt 3)

⁴Der grundlegende Algorithmus wurde von Jesko Sirker in seiner Dissertation [37] geschrieben und detailliert kommentiert. Hier wurde der Algorithmus auf die in dieser Arbeit verwendeten Systeme angepasst und optimiert. Es wurden z.B. für jede Spinvariable zwei Einzelspins zu einem sog. *Superspin* zusammengefasst, um Systeme mit alternierenden Magnetfeldern untersuchen zu können (s. Kap. 3).

berechnet werden. Dazu können die Power-, die Look-Ahead-Lanczos- oder die Implicitly-Restarted-Arnoldi-Methode verwendet werden. Diese Methoden sind besonders geeignet, weil der Superblock der Dimension S^4N^4 nicht explizit berechnet werden muss. Es reicht eine Matrix-Vektor-Multiplikation aus, die schrittweise den Eigenvektor mit dem Umgebungsblock und danach mit dem Systemblock multipliziert. Die Dimension der beiden Blöcke ist S^4N^2 bzw. S^2N^2 in der alten bzw. neuen Trotter-Suzuki-Zerlegung. Die Power-Methode wird verwendet, um einen geeigneten Startvektor für die Implicitly-Restarted-Arnoldi-Methode zu erhalten. Mit der Power-Methode können der größte Eigenwert und der zugehörige Eigenvektor berechnet werden, indem die QTM k -mal auf einen beliebigen Startvektor $|\Phi\rangle = \sum_i a_i |\Psi_i\rangle$ angewandt wird,

$$(\text{QTM})^k |\Psi\rangle = \sum_i a_i \Lambda_i^k |\Psi_i\rangle = \Lambda_0^k \sum_i a_i \left(\frac{\Lambda_i}{\Lambda_0}\right)^k |\Psi_i\rangle \xrightarrow{k \rightarrow \infty} a_0 \Lambda_0^k |\Psi_0\rangle. \quad (2.26)$$

Dabei sind $|\Psi_i\rangle$ die Eigenvektoren der QTM. Im Grenzfall $k \rightarrow \infty$ erhält man eine Näherung für den Eigenvektor $|\Psi_0\rangle$, der zum größten Eigenwert Λ_0 gehört. Nun wird noch die Implicitly-Restarted-Arnoldi-Methode aus dem ARPACK-Paket [39] verwendet. Dadurch kann zum einen der Eigenvektor zum größten Eigenwert genauer als mit der Power-Methode bestimmt werden und zum anderen können auch Eigenvektoren zu den nächstführenden Eigenwerten berechnet werden. Zuletzt sollte noch erwähnt werden, wie das gesamte Spektrum der reduzierten Dichtematrix (Schritt 4) bestimmt wird. Dazu wird eine Standardroutine (DGEEVX) aus dem LAPACK-Paket [40] verwendet, mit der nicht-symmetrische Matrizen diagonalisiert werden können.

2.2.4 Die Genauigkeit der TMRG-Ergebnisse

Bevor in den folgenden Kapiteln die TMRG-Methode auf physikalische Modelle angewandt wird, sollte ihre numerische Genauigkeit überprüft werden. Dazu werden die numerischen Ergebnisse der TMRG-Methode mit exakten Ergebnissen verglichen. Da es schon einen erfolgreichen Vergleich mit analytischen Daten zum Modell freier Fermionen gibt [37], wird in dieser Arbeit die TMRG-Methode auf das eindimensionale Hubbard-Modell (s. Gl. (5.3)) angewandt. Für dieses Modell liefert der Bethe-Ansatz (BA) [41] exakte Ergebnisse, z.B. für die Magnetisierung, die isotherme Kompressibilität (Ladungssuszeptibilität), die magnetische Suszeptibilität und die spezifische Wärme. Im Folgenden wird die Hüpfamplitude $t = 1$ gesetzt, weil t nur die Energieskalen $U \rightarrow U/t$ und $V \rightarrow V/t$, sowie die Temperatur $T \rightarrow T/t$ parametrisiert. Da in der Numerik verschiedene Coulomb-Abstoßungen U auf die Genauigkeit keine Auswirkung haben sollten, wird hier $U = 8$ als Beispiel betrachtet. Die spezifische Wärme C kann mittels der freien Energie f , die direkt mit der TMRG-Methode berechnet wird, durch $C = -T\partial^2 f/\partial T^2$ bestimmt werden. Sie wird zusammen mit den exakten Daten aus dem BA in Abb. 2.7 gezeigt. Außerdem wird noch die Differenz beider Resultate abgebildet. Die magnetische Suszeptibilität χ_s kann mithilfe der Magnetisierung $m \equiv \langle S^z \rangle$ berechnet werden. Dazu wird bei einem kleinen Magnetfeld der Größe $\partial h \sim 10^{-2}$ die Magnetisierung m berechnet, sodass die magnetische Suszeptibilität durch $\chi_s = m/\delta h$ gegeben ist. Sie wird in Abb. 2.8 mit dem BA-Ergebnis verglichen. Auf die gleiche Art und Weise kann die isotherme Kompressibilität (Ladungssuszeptibilität) χ_c berechnet werden, allerdings werden dazu ein kleines chemisches Potential $\delta\mu$ und der Erwartungswert des

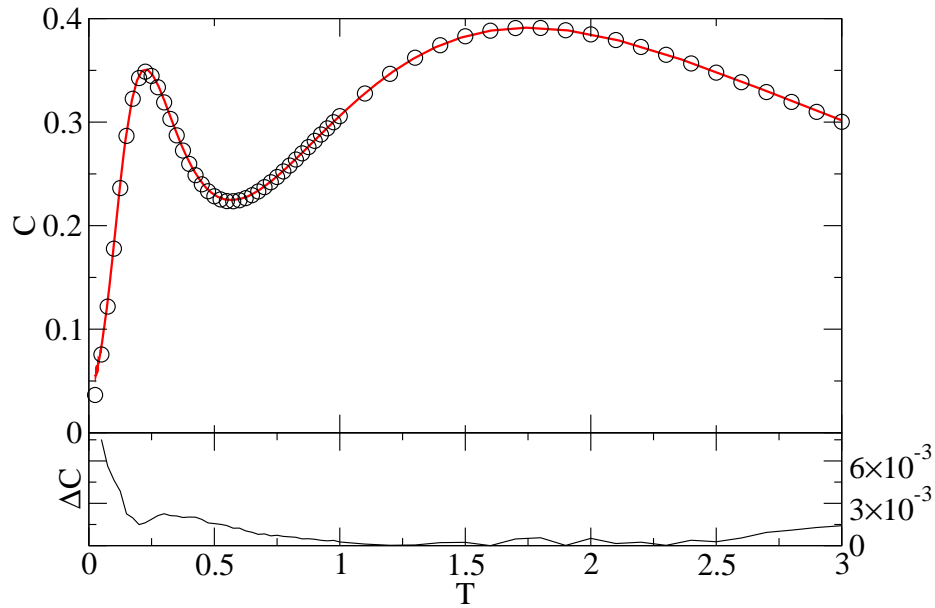


Abbildung 2.7: TMRG-Ergebnisse (rote Linie) zur spezifischen Wärme C für das Hubbard-Modell bei $U = 8$ verglichen mit BA-Daten (Kreise) in Abhängigkeit der Temperatur T . Es wurden $N = 200$ Zustände in der TMRG-Methode behalten und $\epsilon = 0.025$ verwendet. Die untere Abb. zeigt die Abweichung ΔC zwischen den TMRG- und den BA-Ergebnissen.

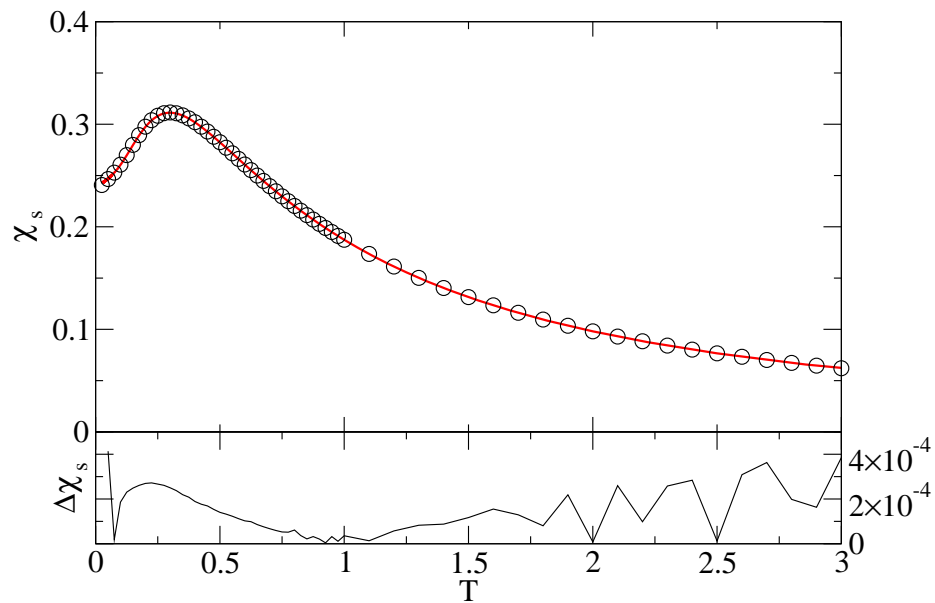


Abbildung 2.8: TMRG-Ergebnisse (rote Linie) zur magnetischen Suszeptibilität χ_s für das Hubbard-Modell bei $U = 8$ verglichen mit BA-Daten (Kreise) in Abhängigkeit der Temperatur T . Es wurden $N = 200$ Zustände in der TMRG-Methode behalten und $\epsilon = 0.025$ verwendet. Die untere Abb. zeigt die Abweichung $\Delta\chi_s$ zwischen den TMRG- und den BA-Ergebnissen.

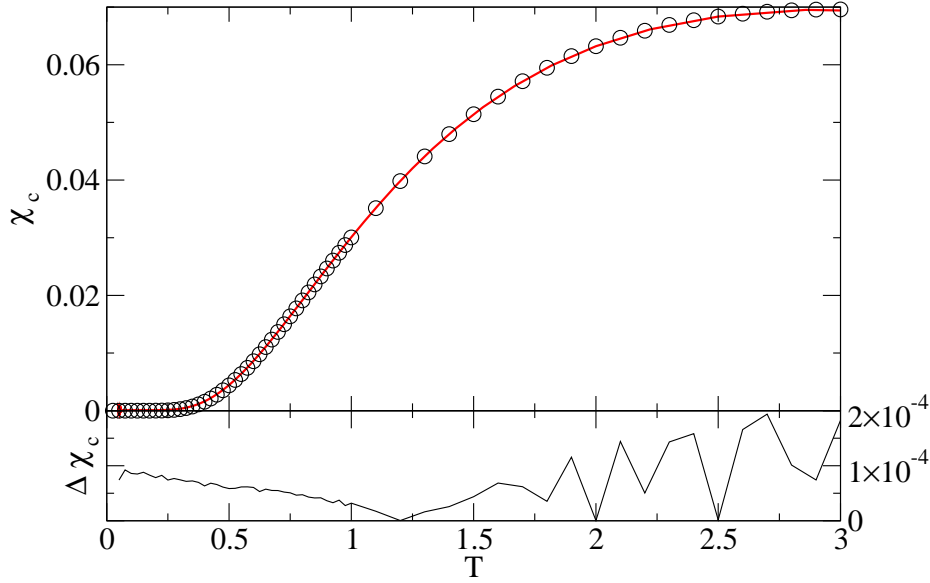


Abbildung 2.9: TMRG-Ergebnisse (rote Linie) zur Ladungssuszeptibilität χ_c für das Hubbard-Modell bei $U = 8$ verglichen mit BA-Daten (Kreise) in Abhängigkeit der Temperatur T . Es wurden $N = 200$ Zustände in der TMRG-Methode behalten und $\epsilon = 0.025$ verwendet. Die untere Abb. zeigt die Abweichung $\Delta\chi_c$ zwischen den TMRG- und den BA-Ergebnissen.

Teilchenzahloperators n betrachtet ($\chi_c = n/\delta\mu$). Diese Ergebnisse sind in Abb. 2.9 zu sehen. Für Temperaturen $T \gtrsim 0.05$ haben die Ladungssuszeptibilität und die magnetische Suszeptibilität einen kleineren Fehler als 5×10^{-4} . Für die spezifische Wärme ist der Fehler um eine Größenordnung höher, weil hier eine zweite Ableitung numerisch berechnet werden muss.

Ähnlich gute Resultate liefert auch ein Vergleich der TMRG-Daten mit exakten BA-Daten zum isotropen Heisenberg-Modell (s. Kap. 3 bzw. Ref. [37]). In Abb. 3.6 ist ein Vergleich der Magnetisierungsergebnisse zu sehen. Dabei wurden in jedem TMRG-Schritt $N = 64$ Zustände behalten und der Trotter-Suzuki-Parameter $\epsilon = 0.05$ benutzt.

Die durch die TMRG-Methode bedingten Fehler werden nun genauer diskutiert, um festzustellen, ob die Fehler in den obigen physikalischen Größen akzeptabel sind oder ob die Numerik noch weiter verbessert werden muss. Im Prinzip gibt es zwei Fehlerquellen in der TMRG-Methode. Die Erste ist der sog. Trotter-Suzuki-Fehler, der aufgrund der Abbildung der eindimensionalen Quantenkette auf das zweidimensionale klassische Gitter entsteht. Die $\mathcal{O}(\epsilon^2)$ -Korrektur der Transfermatrix sollte zu einem Fehler der Ordnung $\mathcal{O}(\epsilon)$ in der Zustandssumme führen. Allerdings ist der Operator in der linearen Korrektur $\sim [h_{i-1,i}, h_{i,i+1}]$ anti-hermitisch ($h_{i,i+1}$ ist hermitisch) und die Spur darüber wird verschwinden, sodass nur ein Fehler der Ordnung $\mathcal{O}(\epsilon^2)$ übrig bleibt [37]. Der zweite Fehler ist der sog. Trunkierungsfehler, der durch die beschränkte Anzahl an Zuständen N in jedem Renormierungsschritt auftritt. Bei hohen Temperaturen sollte der Trunkierungsfehler ziemlich klein sein, aber mit fallender Temperatur ansteigen, weil die reduzierte Dichtematrix dann immer dichter wird. Es ist also zu erwarten, dass der Trotter-Suzuki-Fehler bei hohen Temperaturen und der Trunkierungsfehler bei tiefen Temperaturen dominieren wird.

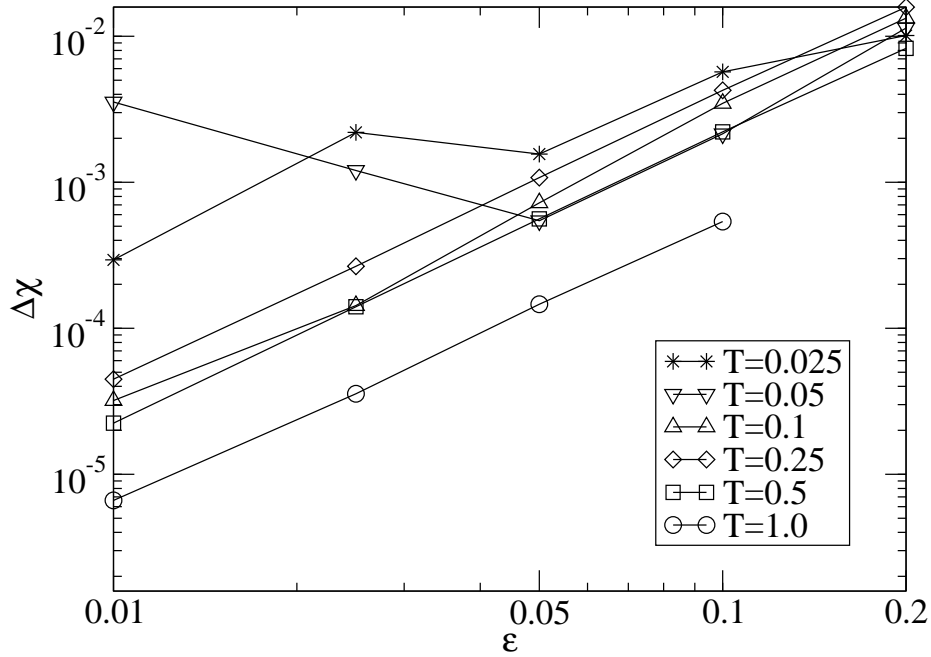


Abbildung 2.10: Die Abweichung $\Delta\chi$ der magnetischen Suszeptibilität zwischen den TMRG-Daten und den exakten BA-Daten in Abhängigkeit des Trotter-Suzuki-Parameters ϵ für verschiedene Temperaturen. In jedem TMRG-Schritt wurden $N = 180$ Zustände behalten. Die Anzahl der Renormierungsschritte steigt von 100 für $\epsilon = 0.2$ bis 2000 für $\epsilon = 0.01$, um die minimale Temperatur von $T = 0.025$ zu erreichen.

Bei der magnetischen Suszeptibilität und der Ladungssuszeptibilität zum 1D-Hubbard-Modell ist der Fehler bei $T \gtrsim 0.05$ immer kleiner als $\epsilon^2 = 6.25 \times 10^{-4}$, sodass in diesem Bereich der Trunkierungsfehler vernachlässigbar klein ist. Erst unterhalb einer Temperatur von $T \sim 0.05$ scheint der Trunkierungsfehler zu dominieren.

Im Folgenden werden diese Erwartungen überprüft. Dazu wird in Abb. 2.10 die Genauigkeit der magnetischen Suszeptibilität des 1D-Hubbard-Modells bei $U = 8$ in Abhängigkeit des Trotter-Suzuki-Parameters ϵ für verschiedene Temperaturen T gezeigt. Für die Temperaturen $T = 0.25, 0.5$ und 1.0 ist der Fehler proportional zu ϵ^2 , sodass bei diesen Temperaturen der Trotter-Suzuki-Fehler dominiert. Bei $T = 0.1$ weicht der Fehler schon von dieser Proportionalität ab und bei noch tieferen Temperaturen kann kein klares Skalierungsverhalten mehr erkannt werden. Somit dominiert hier der Trunkierungsfehler.

Als Nächstes wird die Genauigkeit der magnetischen Suszeptibilität in Abhängigkeit der Anzahl der Zustände N untersucht, die in jedem TMRG-Schritt behalten werden (s. Abb. 2.11). Bei hohen Temperaturen ($T = 0.5$ und 1.0) nimmt der Fehler nur solange mit steigender Anzahl von Zuständen N ab, bis der Fehler kleiner als der Trotter-Suzuki-Fehler (gestrichelte Linie in Abb. 2.11) ist. Danach hat eine Erhöhung von N keine Auswirkung mehr, weil der Trotter-Suzuki-Fehler in diesem Bereich schon dominiert. Anhand von Abb. 2.11 wird aber auch deutlich, dass die Genauigkeit bei tieferen Temperaturen nur mithilfe einer großen Anzahl von mitgenommenen Zuständen N verbessert werden kann.

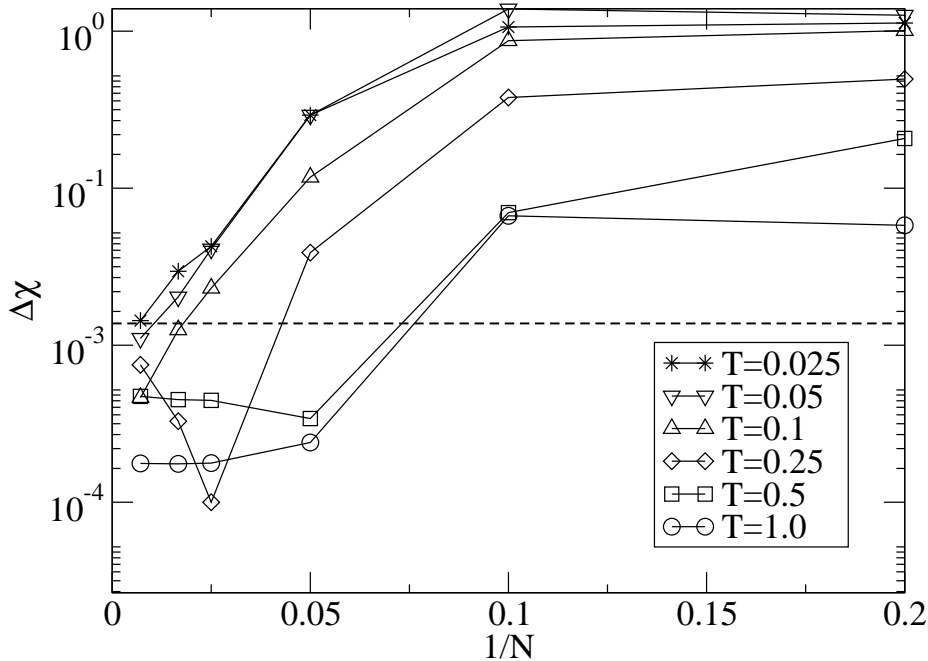


Abbildung 2.11: Die Abweichung $\Delta\chi$ der magnetischen Suszeptibilität zwischen den TMRG-Daten und den exakten BA-Daten als Funktion der Anzahl der mitgenommenen Zustände N . Der Trotter-Suzuki-Parameter ist $\epsilon = 0.05$

Zusammengefasst konkurrieren der Trotter-Suzuki-Fehler und der Trunkierungsfehler. Ein kleiner Trotter-Suzuki-Parameter ϵ minimiert zwar den Trotter-Suzuki-Fehler, allerdings werden dann mehr TMRG-Schritte benötigt, um eine minimale Temperatur, z.B. $T = 0.01$, zu erreichen. Dadurch steigt wiederum der Trunkierungsfehler und natürlich auch die Berechnungszeit auf dem Computer. Ebenso steigt diese Zeit mit der Anzahl der mitgenommenen Zustände N . Eine hohe Anzahl ist aber die einzige Möglichkeit die Genauigkeit bei tiefen Temperaturen zu erhöhen. In der Praxis hat sich ein Trotter-Suzuki-Parameter zwischen $\epsilon = 0.025$ und 0.1 als sehr günstig erwiesen, um bei tiefen Temperaturen und mit möglichst wenigen TMRG-Schritten gute Ergebnisse zu erzielen. Mit einem Trotter-Suzuki-Parameter $\epsilon = 0.05$ kann beispielsweise die minimale Temperatur $T = 0.01$ in 1000 TMRG-Schritten erreicht werden.

3 Die antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette

3.1 Eindimensionale Quantenmagnete

Eindimensionale (1D) Quantenmagnete sind in den letzten Jahrzehnten sowohl theoretisch als auch experimentell intensiv untersucht worden. Zuerst sollten Erkenntnisse über 1D-Systeme nur helfen, dreidimensionale Systeme besser beschreiben zu können, doch schnell stellte sich heraus, dass 1D-Systeme selbst interessant sein können. 1D-Systeme zeigen z.B. quantenkritisches Verhalten und Anregungslücken. Aber auch das Wechselspiel zwischen Quantenfluktuationen und thermischen Fluktuationen sowie das Auffinden neuer Phasen und Quasiteilchen machen 1D-Systeme sowohl für die Theorie als auch für das Experiment sehr interessant. 1D-Systeme werden experimentell untersucht, um ihre Realisierung sowie die Vorhersagen der theoretischen Modelle zu bestätigen. Ein weiterer Vorteil ist die Existenz einer exakten Lösung. Somit kann das physikalische Verhalten des Systems über den gesamten Temperaturbereich untersucht werden. Das erste Modell für 1D-Quantenmagnete war das von Lenz und Ising 1925 [42] vorgeschlagene „Ising-Modell“. In den folgenden Abschnitten werden das Spin-1/2 Heisenberg-Modell beschrieben und theoretische und experimentelle Ergebnisse für zwei 1D-Systeme, Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat und Kupfer-Benzoat, miteinander verglichen.

3.1.1 Das Heisenberg-Modell und magnetische Wechselwirkungen in 1D

Magnetische Materialeigenschaften werden durch die Existenz magnetischer Momente bestimmt. Diese können aufgrund des Bohr-van-Leeuwen-Theorems nur in quantenmechanischen Systemen existieren. Demnach ist Magnetismus ein rein quantenmechanisches Phänomen und wird durch die elektrostatische Coulombwechselwirkung, den elektrischen Spin und das Pauli-Prinzip bestimmt.

Heisenberg [43] zeigte, dass die magnetische Wechselwirkung zweier Spins in Valenzelektronen S_i und S_j durch den „Heisenberg“-Hamiltonoperator

$$\hat{H} = \sum_{i,j} J_{ij} \vec{S}_i \vec{S}_j \quad (3.1)$$

beschrieben werden kann. Die Kopplungskonstanten J_{ij} bestimmen die Energiedifferenz zwischen verschiedenen Spinkonfigurationen an den Orten i und j . Für $J_{ij} < 0$ ist eine parallele Konfiguration und für $J_{ij} > 0$ eine antiparallele Konfiguration der Spins S_i und S_j energetisch günstiger. Diese quantenmechanische Wechselwirkung zwischen zwei Spins ist die sog. **Austauschwechselwirkung**. Sie beruht auf dem Überlapp zweier benachbarter Orbitale. Da dieser Überlapp in Festkörpern meist klein ist, wird der Hamiltonoperator (3.1) häufig auf eine Summe über nächste Nachbarelektronen reduziert. Außerdem kann

eine anisotrope Kopplung $J = J_x = J_y \neq J_z$ eingeführt werden. Für eine Spinkette in 1D wird so das XXZ-Modell

$$\hat{H} = J \sum_i S_i^x S_{i+1}^x + S_i^y S_{i+1}^y + \Delta S_i^z S_{i+1}^z \quad (3.2)$$

mit dem Anisotropieparameter $\Delta = \frac{J_z}{J}$ definiert. Das XXZ-Modell in 1D (besonders mit antiferromagnetischer Wechselwirkung ($J > 0$)) ist ein sehr wichtiges Modell in der Vielteilchen-Festkörperphysik. Außerdem ist für Spin $S = 1/2$ Teilchen das XXZ-Modell (3.2) in 1D durch den Bethe-Ansatz exakt lösbar [44–46]. Für $\Delta = 0$ erhält man das XX-Modell und für $\Delta \rightarrow \infty$ das obengenannte Ising-Modell. Während im Ising-Modell alle Spins entweder in die z oder $-z$ Richtung ausgerichtet sind, sind im Heisenberg-Modell alle drei Spinrichtungen möglich. Bei Kupferionen (Cu-Ionen), die in dieser Arbeit untersucht werden, gibt es häufig kleine Unterschiede zwischen benachbarten Cu-Ionen, die durch einen anisotropen Landé-Faktor (g -Faktor) modelliert werden können. Demnach kann ein System von Cu-Ionen durch ein isotropes Heisenberg-Modell beschrieben werden. Im Folgenden wird ein isotropes ($J = J_x = J_y = J_z$) XXX-Modell verwendet. Mit einem äußeren Magnetfeld \vec{H} nimmt der Hamiltonoperator folgende Gestalt an

$$\hat{H} = J \sum_i \left(\vec{S}_i \vec{S}_{i+1} - \frac{g\mu_B}{J} \vec{H} \cdot \vec{S}_i \right). \quad (3.3)$$

Hier ist $g\mu_B \vec{H} \cdot \vec{S}_i$ der Zeeman-Term mit dem Landé-Faktor g und dem Bohrschen Magneton μ_B .

Obwohl dieser Hamiltonoperator nur für Systeme mit direkter **Austauschwechselwirkung** entwickelt wurde, kann er auch auf reale Systeme angewandt werden, in denen die magnetischen Ionen nicht direkt miteinander wechselwirken. Eine direkte Austauschwechselwirkung ist häufig nicht möglich, weil die magnetischen Orbitale alle innerhalb der Ionen (Radius ca. 3 Å) liegen und somit keinen Überlapp mit den benachbarten Ionen haben. Allerdings können Elektronen nichtmagnetischer Ionen, die sich zwischen den magnetischen Ionen befinden, eine magnetische Wechselwirkung zwischen ihnen vermitteln. Diese Wechselwirkung bezeichnet man als **Superaustausch** [47]. Auch in diesem Fall kann der Hamiltonoperator (3.3) verwendet werden. Die Kopplungskonstante J kann nun über die verschiedenen Superaustausch-Wege bestimmt werden.

3.1.2 Die XXX-Kette mit gestagertem Magnetfeld

Die isotrope Heisenberg-Kette (3.3) kann mithilfe des Bethe-Ansatzes exakt gelöst werden. Der Grundzustand ist ein Spinsinglett mit lückenlosen Anregungen für ein beliebiges Magnetfeld zwischen Null und dem Sättigungsmagnetfeld [48]

$$H_c = 4JS/g\mu_B. \quad (3.4)$$

Dender *et al.* [2] untersuchten Kupfer-Benzoat experimentell, um dieses Verhalten zu bestätigen. Sie stellten fest, dass Kupfer-Benzoat eine Anregungslücke hat, die sowohl von der Richtung als auch von der Stärke des Magnetfelds ($\propto H^{2/3}$) abhängt. Bei niedrigdimensionalen magnetischen Materialien lässt sich diese Anregungslücke durch anisotrope Beiträge zum Superaustausch aufgrund einer Wechselwirkung zwischen der Spin-Orbital-Kopplung

und dem Superaustausch erklären. Demnach muss der Landé-Faktor im Zeeman-Term der XXX-Kette (3.3) durch einen anisotropen Landé-Tensor \overleftrightarrow{g} ersetzt werden. Zusätzlich wird noch eine alternierende Dzyaloshinskii-Moriya (DM)-Wechselwirkung [49, 50] zum Hamiltonoperator hinzugefügt:

$$\hat{H} = J \sum_i \left(\vec{S}_i \vec{S}_{i+1} - \frac{\mu_B}{J} \left(\overleftrightarrow{g} \vec{H} \right) \cdot \vec{S}_i - \hat{H}_{DM} \right), \quad (3.5)$$

mit

$$\hat{H}_{DM} = \frac{1}{J} \sum_i (-1)^i \vec{D} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_{i+1}) \quad (3.6)$$

wobei \vec{D} der DM-Vektor ist. Seine Größe und seine Richtung hängen von der Kristallstruktur und der lokalen Umgebung der magnetischen Ionen ab. Im Allgemeinen ist die Größe der DM-Wechselwirkung $(\Delta g/g)J$, wobei Δg ein Shift des g -Faktors im Kristall ist [49, 50]. Üblicherweise ist $(\Delta g/g) \approx 0.01$.

Außerdem muss der Hamiltonoperator (3.5) noch um eine symmetrische anisotrope Wechselwirkung

$$\hat{H}_{SA} = \vec{S}_i \cdot \overleftrightarrow{A} \cdot \vec{S}_{i+1} \quad (3.7)$$

mit einem Tensor zweiter Stufe \overleftrightarrow{A} ergänzt werden, um dipolare Wechselwirkungen zwischen zwei benachbarten Spins darzustellen. Das kann in dieser Arbeit vernachlässigt werden, weil diese Wechselwirkung meistens um eine Größenordnung ($\propto (\Delta g/g)^2 J$) kleiner ist als die DM-Wechselwirkung.

Effektives Heisenberg-Modell mit gestagertem Magnetfeld

Oshikawa und Affleck [48, 51, 52] untersuchten als erste den Hamiltonoperator (3.5), um die magnetischen Eigenschaften und dynamischen Spinkorrelationen des antiferromagnetischen $S = 1/2$ Heisenberg-Modells mit alternierenden lokalen Symmetrien zu bestimmen. Im Folgenden wird dieses Modell als die gestaggerte¹ antiferromagnetische $S = 1/2$ Heisenberg-Kette (AFHK) bezeichnet. Aufgrund der alternierenden DM-Wechselwirkung und des anisotropen Landé-Tensors $\overleftrightarrow{g} = \overleftrightarrow{g}_u \pm \overleftrightarrow{g}_s$ mit alternierenden Nichtdiagonaltermen induziert ein externes homogenes Magnetfeld \vec{H} ein effektives gestaggertes Magnetfeld \vec{h}_s . Durch eine Drehung im Spinraum um \vec{D} mit einem Winkel von $\pm \arctan(D/J)/2$ auf geraden/ungeraden Plätzen, kann die DM-Wechselwirkung in ein gestaggertes Magnetfeld übergehen (s. Anhang A). Definiert man die Richtung des externen homogenen Magnetfelds \vec{H} entlang der z -Achse und berücksichtigt, dass das gestaggerte Magnetfeld \vec{h}_s näherungsweise senkrecht auf \vec{H} steht und $h \ll H$ ist, kann der Hamiltonoperator (3.5) als ein Heisenberg-Modell mit einem orthogonalen homogenen und gestagerten Magnetfeld

$$\hat{H} = J \sum_i \left[\vec{S}_i \vec{S}_{i+1} - h_u S_i^z - (-1)^i h_s S_i^x \right] \quad (3.8)$$

geschrieben werden. Dabei ist $h_u = g\mu_B H/J$ das effektive homogene Magnetfeld und $h_s = c h_u$ das induzierte gestaggerte Magnetfeld. Eine kleine Anisotropie in den Kopplungskonstanten kann vernachlässigt werden (s. Anhang A). Für eine gegebene äußere Magnetfeldrichtung können der effektive Landé-Faktor g und der Inhomogenitätsparameter c aus

¹engl. staggered = gestaffelt.

der DM-Wechselwirkung \vec{D} und dem anisotropen Landé-Tensor $\overleftarrow{g} = \overleftarrow{g}_u \pm \overleftarrow{g}_s$ in folgender Weise berechnet werden [53]:

$$g = \left| \overleftarrow{g}_u \vec{H} \right| / \left| \vec{H} \right|, \quad (3.9a)$$

$$c = \frac{1}{g} \left| \frac{1}{2J} \vec{D} \times \overleftarrow{g}_u \vec{H} + \overleftarrow{g}_s \vec{H} \right| / \left| \vec{H} \right|. \quad (3.9b)$$

Der erste Teil aus Gl. (3.9b) beschreibt den Beitrag aus der DM-Wechselwirkung und der zweite Teil den Beitrag aus dem anisotropen Landé-Tensor. Für eine bestimmte Magnetfeldrichtung können sich diese beiden Terme sogar gegenseitig aufheben, sodass man den Hamiltonoperator der isotropen Heisenberg-Kette erhält.

Thermodynamische Eigenschaften

Die thermodynamischen Eigenschaften der gestaggerten $S = 1/2$ AFHK wurden von Oshikawa und Affleck [48, 51, 52] untersucht. Sie verwendeten sowohl die lineare Spin-Wellentheorie als auch die Methode der Bosonisierung, in der durch das homogene Magnetfeld nur der Fermi-Impuls k_F verschoben und der Kompaktifizierungsradius R renormalisiert wird. R hängt dabei von der Stärke des äußeren Magnetfelds ab. Das gestaggerte Magnetfeld wird durch den Operator $\cos(2\pi R\tilde{\Phi})$ beschrieben. Demnach kann die gestaggerte $S = 1/2$ AFHK bei kleinen Energien durch das Sine-Gordon-Modell mit der Lagrangedichte

$$\mathcal{L} = \frac{1}{2} (\partial_\mu \Phi)^2 + \text{const} \cdot h_s \cos(2\pi R\tilde{\Phi}) \quad (3.10)$$

beschrieben werden. Dabei ist Φ das Bosonfeld und $\tilde{\Phi}$ das dazu duale Bosonfeld. Ein Skalenargument besagt, dass die Anregungslücke Δ proportional zu $h_s^{1/(2-d)}$ ist, wobei d die Dimension des relevanten Operators ist. Hier ist $d = 1/2$ und somit $\Delta \propto h_s^{2/3}$. Infolge eines marginalen Operators [54] gibt es noch eine logarithmische Korrektur $\Delta \propto h_s^{2/3} |\ln h|^{1/6}$, die in dieser numerischen Arbeit weder bestätigt noch widerlegt werden konnte.

Üblicherweise wird die Magnetisierung m als Ableitung der freien Energie F nach dem Magnetfeld berechnet. Hier muss jedoch die Magnetisierung wegen des äußeren homogenen Magnetfelds h_u und des induzierten gestaggerten Magnetfelds h_s als Ableitung nach beiden Magnetfeldern berechnet werden. Diese beiden Magnetfelder sind durch den Inhomogenitätsparameter c verknüpft, der stark von der Richtung des äußeren Magnetfelds abhängt (3.9b). Nach [48, 51, 52] und der Definition der gestaggerten Magnetisierung $h_s = c h_u$ ist die experimentell zugängliche Magnetisierung, die sog. physikalische Magnetisierung m_{phys} , die Summe zweier Beiträge

$$\begin{aligned} m_{phys} &= -\frac{\partial F}{\partial h_u} - c \frac{\partial F}{\partial h_s} \\ &= m_u + c m_s. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Anschaulich bedeutet dies, dass die gestaggerte Magnetisierung m_s sowohl eine Komponente in Richtung des gestaggerten Magnetfelds $m_{s\perp}$ als auch eine in Richtung des homogenen Felds $m_{s\parallel} = c m_s$ hat [53]. Demnach ist der gestaggerte Anteil aus (3.11) eine Projektion der gestaggerten Magnetisierung auf die Achse entlang des Magnetfelds, wobei der zugehörige Beitrag mit dem Inhomogenitätsparameter c skaliert wird. Dieser Zusammenhang ist für CuPM (s. Kap. 3.2) gut in Abb. 3.1 zu erkennen.

Wie bei der Berechnung der physikalischen Magnetisierung muss die freie Energie in Abhängigkeit der homogenen und gestaggerten Magnetisierung betrachtet werden, um die experimentell zugängliche physikalische Suszeptibilität zu berechnen. Sie ergibt sich als

$$\chi_{phys} = \frac{\partial m_u}{\partial h_u} + c^2 \frac{\partial m_s}{\partial h_s} + 2c \frac{\partial m_s}{\partial h_u}, \quad (3.12)$$

weil nach dem Satz von Schwarz

$$\frac{\partial m_s}{\partial h_u} = \frac{\partial m_u}{\partial h_s} \quad (3.13)$$

gilt. Der zweite Term in (3.12) ist wesentlich größer als der letzte, so dass die physikalische Suszeptibilität durch

$$\chi_{phys} \approx \frac{\partial m_u}{\partial h_u} + c^2 \frac{\partial m_s}{\partial h_s} \quad (3.14)$$

beschrieben werden kann.

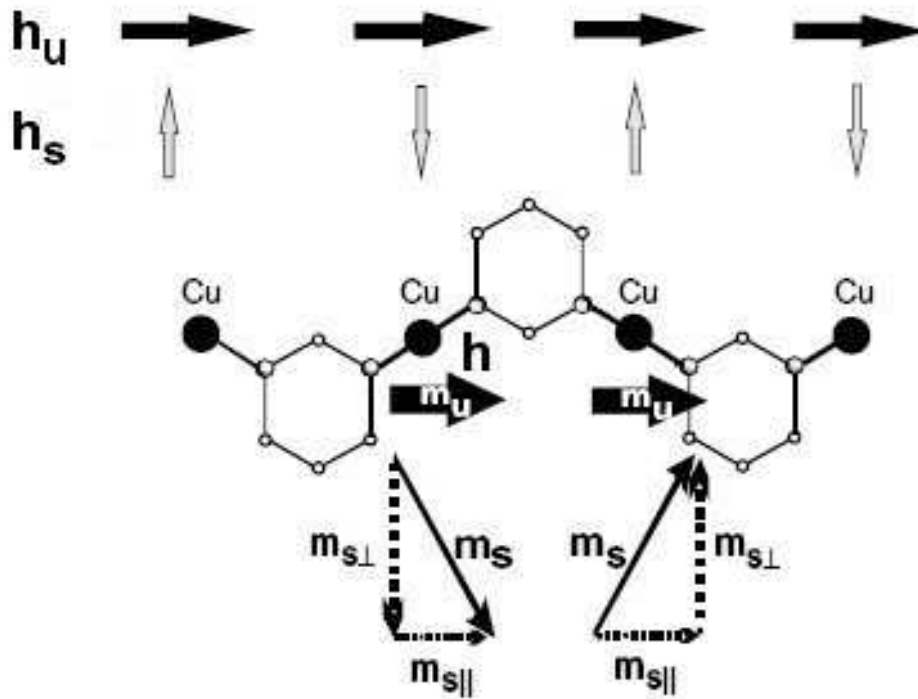


Abbildung 3.1: Die CuPM-Kette entlang der b -Achse gesehen. Zur Vereinfachung sind nur die Cu-Ionen und die Pyrimidin-Moleküle gezeigt. Die Richtungen der verschiedenen Komponenten der Magnetisierung, d.h. m_u und $m_s = m_{s||} + m_{s\perp}$ werden veranschaulicht. Hinweis: Die gestaggerten Komponenten sind nicht originalgetreu skaliert. Diese Abbildung wurde Ref. [55] entnommen.

3.2 Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat $\text{CuPM}(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$

In dieser Arbeit werden die Materialien Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat (CuPM) und Kupfer-Benzoat (Cu-Benzoat) genauer untersucht. Beide Materialien können als ideale Realisierung für die eindimensionale gestaggerte $S = 1/2$ AFHK betrachtet werden. Die Kopplungskonstante J/k_B von CuPM ist doppelt so groß wie die von Cu-Benzoat. Außerdem ist die Zwischenkettenkopplung kleiner als bei Cu-Benzoat. Diese Eigenschaften garantieren zum einen die Möglichkeit einer theoretischen Beschreibung des Materials durch die eindimensionale gestaggerte $S = 1/2$ AFHK und zum anderen gute experimentelle Bedingungen. Dadurch können die physikalischen Größen, wie z.B. die Magnetisierung, beider Materialien sowohl berechnet als auch gemessen werden. CuPM ist bis heute die beste Realisierung des Sine-Gordon-Modells. In den folgenden Abschnitten wird eine kurze Einführung in beide Materialien gegeben. Dieses beinhaltet die Kristallstruktur und die magnetischen Eigenschaften.

Ishida *et al.* [56, 57] haben in antiferromagnetischen linearen Polymeren, wie Kupfer-Pyrazine (PZ = $\text{C}_4\text{N}_2\text{H}_4$)-Dinitrat, das Pyrazin durch Pyrimidin (PM = $\text{C}_4\text{N}_2\text{H}_4$) ersetzt. Die dabei entstandenen Komplexe zeigen ferromagnetische Eigenschaften. Da die Cu-Ionen an die Stickstoffionen von PM oder PZ gebunden werden, entscheidet die atomare Struktur von PM und PZ über Ferro- oder Antiferromagnetismus. Während die Austauschwechselwirkung bei PZ über vier magnetische Ionen übertragen wird, sind es bei PM nur drei (s. Abb. 3.2). Dadurch ergibt sich bei PZ eine antiferromagnetische und bei PM eine ferromagnetische Wechselwirkung. In der Tat zeigt $\text{CuPM}_2(\text{NO}_3)_2$ ferromagnetische Eigenschaften, während $\text{CuPM}(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$ (CuPM) eine antiferromagnetische Kopplung zeigt. Die Strukturen von CuPM und $\text{CuPM}_2(\text{NO}_3)_2$ unterscheiden sich in der äquatorialen Position der Stickstoffionen. Dadurch haben bei CuPM die beiden Stickstofforbitale einen merklichen Überlapp, sodass das Molekülorbital von Pyrimidin, zu dem die beiden Stickstofforbitale hauptsächlich beitragen, antiferromagnetisch anknüpfen kann (s. Abb. 3.3).

3.2.1 Kristallstruktur von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat

$\text{CuPM}(\text{NO}_3)_2(\text{H}_2\text{O})_2$ kristallisiert in einem monoklinen Raumgitter mit $C2/c$ Symmetrie, wobei vier Formeleinheiten eine Einheitszelle bilden. Die Gitterparameter sind in einer

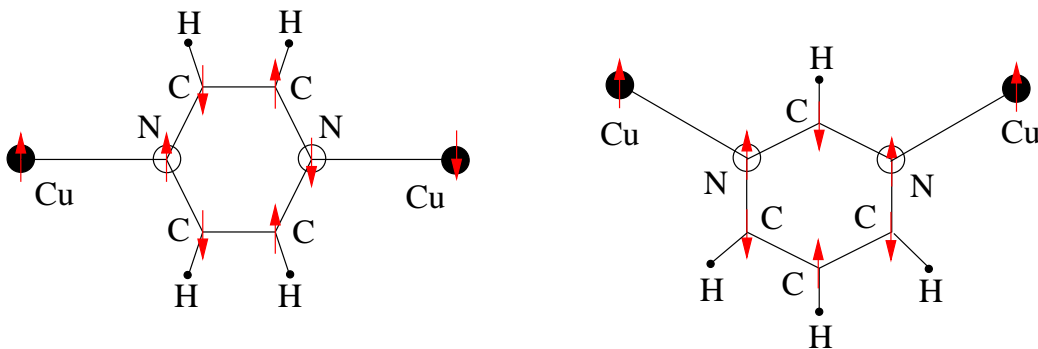


Abbildung 3.2: Die antiferromagnetische Wechselwirkung bei Pyrazin und die ferromagnetische bei Pyrimidin. Die Pfeile stellen die magnetischen Spins dar.

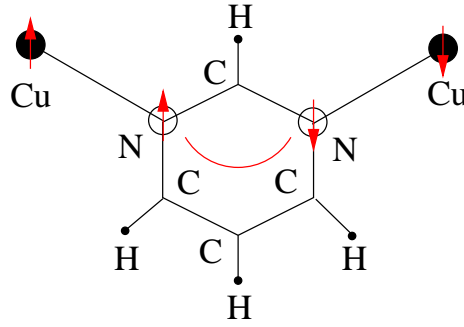


Abbildung 3.3: Die antiferromagnetische Wechselwirkung bei Pyrimidin. Die Pfeile stellen die magnetischen Spins dar und der Bogen den Superaustausch zwischen den Stickstofforbitalen.

Pulver-Kristallstrukturanalyse zu $a = 12.1405 \text{ \AA}$, $b = 11.4376 \text{ \AA}$, $c = 7.4557 \text{ \AA}$ und $\beta = 113.82^\circ$ bei $T = 10 \text{ K}$ und zu $a = 12.3760 \text{ \AA}$, $b = 11.4972 \text{ \AA}$, $c = 7.5051 \text{ \AA}$ und $\beta = 114.97^\circ$ bei Raumtemperatur bestimmt worden [53]. Die Struktur bleibt demnach über einen großen Temperaturbereich erhalten. Die Cu-Ionen bilden eine lineare Kette entlang der kleinen ac -Diagonalen und werden durch eine N-C-N-Brücke des Pyrimidins miteinander verbunden. Der Abstand zweier Cu-Ionen entlang der Kette ist $d_{\text{Cu-Cu}} = 5.71 \text{ \AA}$ bei $T = 10 \text{ K}$, wobei der Abstand zur nächsten Kette $d_{\text{Kette-Kette}} = 6.84 \text{ \AA}$ ist. Die Cu-Ionen befinden sich in einem verzerrten Oktaeder, dessen Äquatorialebene durch N-O-N-O gebildet wird und bei dem jeweils ein Sauerstoffion auf den axialen Positionen sitzt (s. Abb. 3.4). Die Hauptachse der Oktaeder ist um 29.4° aus der ac -Ebene gekippt. Da diese Achse mit der Hauptachse des g -Tensors übereinstimmt, sind alle Cu-Ionen zwar kristallographisch aber nicht magnetisch äquivalent. Resultierend bildet sich ein alternierender g -Tensor im Koordinatensystem $a'bc'$, wobei c' die Winkelhalbierende zweier Hauptachsen von benachbarten Cu-Ionen ist und a' senkrecht auf b und c' steht. Die Achse c' ist in Abb. 3.4 gezeigt. In diesem Koordinatensystem $a'bc'$ nimmt der g -Tensor nach Elektronenspinresonanz (ESR)-Messungen [53] die folgende Form an:

$$\overleftrightarrow{g} = \begin{pmatrix} 2.073 & 0 & 0 \\ 0 & 2.149 & \pm 0.127 \\ 0 & \pm 0.127 & 2.287 \end{pmatrix} \quad (3.15)$$

$$= \begin{pmatrix} g_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & g_{yy} & \pm g_s \\ 0 & \pm g_s & g_{zz} \end{pmatrix} = \overleftrightarrow{g}_u \pm \overleftrightarrow{g}_s. \quad (3.16)$$

\overleftrightarrow{g}_u und \overleftrightarrow{g}_s bezeichnen den homogenen und den gestaggerten Teil des g -Tensors. Zusätzlich zu dieser anisotropen Austausch-Wechselwirkung wirkt noch eine Dipol-Wechselwirkung entlang der Kettenachse. Da beide die gleiche Größenordnung haben, wird sich eine magnetische Hauptachse c'' (s. Abb. 3.4) ungefähr in der Mitte zwischen der Kettenachse und c' bilden. Das magnetische Hauptachsensystem ist demnach $a''bc''$, wobei a'' senkrecht zu b und c'' ist.

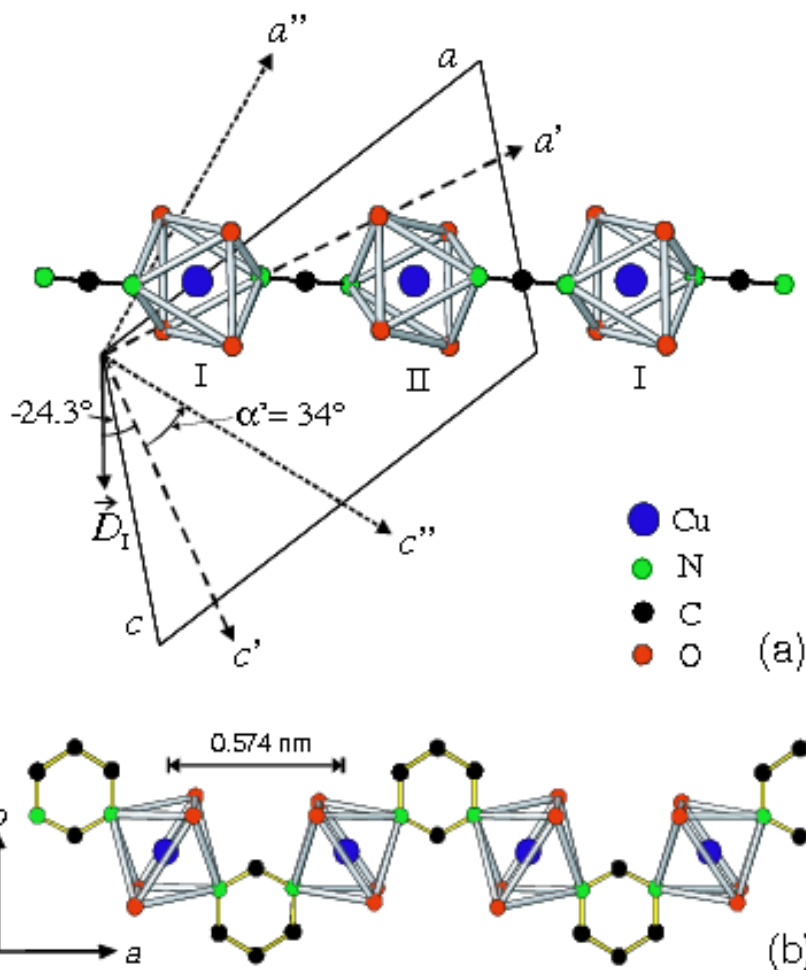


Abbildung 3.4: (a) Eine CuPM-Kette mit Blick auf die ac -Ebene. Zur besseren Übersicht sind nur die Ionen, die den verzerrten Oktaeder bilden, und die N-C-N-Brücken des Pyrimidins gezeigt. Die Achsen sind im Text und der DM-Vektor in Abschnitt 3.2.2 erklärt. (b) Eine CuPM-Kette mit Blick auf die ab -Ebene. Der Pyrimidinkomplex $C_4N_2H_4$ verbindet die einzelnen Cu-Ionen. Diese Abbildung wurde Ref. [53] entnommen.

3.2.2 Magnetische Eigenschaften von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat

Feyerherm *et al.* [58] zeigten in einem Vorbericht zur Suszeptibilität $\chi(T)$ von CuPM, dass für Temperaturen $T > 10$ K die Suszeptibilitätsdaten von CuPM gut durch die homogene $S = \frac{1}{2}$ AFHK beschrieben werden. Bonner und Fischer [59] berechneten 1964 als erste die Suszeptibilität in diesem Modell. Durch einen Datenfit wurde die Kopplungskonstante von CuPM zu $J/k_B = 36$ K bestimmt. Der experimentelle Fehler lag bei $\pm 2\%$.² Bei tiefen Temperaturen $T < 10$ K zeigte sich allerdings eine starke Abhängigkeit von der Magnetfeldrichtung. Daraufhin verglichen Feyerherm *et al.* [53] die Tieftemperaturdaten der Suszeptibilität mit den Ergebnissen des gestaggerten AFHK-Modells von Oshikawa und Affleck. Als Resultat erhielten sie, dass die experimentellen Daten gut durch dieses Modell beschrieben werden können. Das gestaggerte Magnetfeld h_s beruht also auf einen gestaggerten g -Tensor und eine alternierende DM-Wechselwirkung. Durch einen Datenvergleich konnten Feyerherm *et al.* [53] die DM-Wechselwirkung im Koordinatensystem $a'bc'$ bestimmen zu

$$\vec{D} = 0.139J(-0.4115, 0.0, 0.9114). \quad (3.17)$$

Die Richtung von \vec{D} ist fast senkrecht zur Achse entlang der CuPM-Kette und kann somit die Regeln von Moriya [50] erfüllen.

Außerdem wurde die spezifische Wärme experimentell bestimmt und mit den Daten aus dem Sine-Gordon-Modell verglichen (s. Abb. 3.5).³ Die gute Übereinstimmung der Daten bekräftigt, dass CuPM durch das Modell einer gestaggerten Heisenberg-Kette beschrieben werden kann. Zusätzlich zeigt die spezifische Wärme oberhalb einer Temperatur $T > 0.38$ K keine 3-dimensionale langreichweitige Ordnung, wodurch die Zwischenkettenkopplung J' nach der Formel [60]

$$J'/k_B = \frac{T_N}{1.28\sqrt{\ln(5.8J/(k_B T_N))}} \quad (3.18)$$

berechnet werden kann. Hier ist T_N die sog. Néel-Temperatur. Folglich ist die Zwischenkettenkopplung mindestens zwei Größenordnungen kleiner als die Kopplung J entlang der eindimensionalen CuPM-Kette und somit wurde die (Quasi-)Eindimensionalität von CuPM gezeigt.

3.2.3 Magnetisierung von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat

Die Magnetisierung von CuPM ist aufgrund des gestaggerten g -Tensors und der alternierenden DM-Wechselwirkung richtungsabhängig. Wenn das äußere Magnetfeld H entlang der magnetischen Hauptachse a'' angelegt wird, verhält sich CuPM wie eine isotrope Heisenberg-Kette. Sobald das Magnetfeld von dieser Richtung abweicht, öffnet sich in diesem magnetischen System eine Anregungslücke, die auf den gestaggerten g -Tensor und die alternierende DM-Wechselwirkung zurückgeführt werden kann. Das System verhält sich demnach wie eine gestaggerte $S = 1/2$ AFHK. Für H parallel zur c'' -Achse ist die Anregungslücke maximal, sodass dieser Fall besonders für experimentelle und theoretische Untersuchungen

²In dieser Arbeit wird eine Kopplungskonstante von $J/k_B = 36.5$ K benutzt, die innerhalb der Fehlertoleranz liegt.

³Bei endlicher Temperatur zeigt die spezifische Wärme immer Phononenbeiträge aufgrund von Gitterschwingungen. Diese Beiträge sind proportional zu T^3 und müssen beim Vergleich zwischen theoretischen und experimentellen Daten berücksichtigt werden.

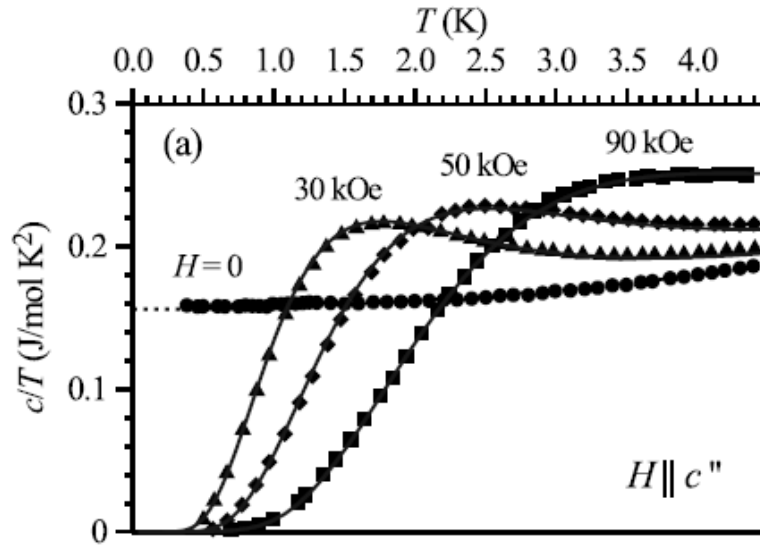


Abbildung 3.5: Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme von CuPM für verschiedene Magnetfelder (0, 30, 50 und 90 kOe) entlang der c'' -Achse. Die experimentellen Daten (Symbole) werden mit theoretischen Daten (Linien) zum Sine-Gordon-Modell, korrigiert durch die Phononenbeiträge, verglichen. Diese Abb. wurde Ref. [53] entnommen.

geeignet ist. Im Folgenden werden mehrere Magnetfeldrichtungen untersucht. Dazu werden die TMRG-Daten mit experimentellen Daten verglichen. Die gepulsten Hochmagnetfeldmessungen wurden von Wolter [61, 62] am „Laboratoire National des Champs Magnétiques Pulsés“ in Toulouse durchgeführt. Eine genaue Beschreibung des Experiments kann in Ref. [62] nachgelesen werden.

Magnetisierung von CuPM für $H \parallel a''$

CuPM verhält sich wie eine isotrope Heisenberg-Kette ($c = 0.0$) mit einer Kopplung $J/k_B = 36.5$ K, wenn das Magnetfeld parallel zur a'' -Achse ist. Der effektive g -Faktor beträgt nach (3.9a) $g = 2.14$. Diesem Wert entspricht ein magnetisches Sättigungsfeld $\mu_0 H_c = 50.7$ T (s. Gl. (3.4)). Die Abb. 3.6 zeigt zum einen die Magnetisierung von CuPM in Abhängigkeit des Magnetfelds $H \parallel a''$ bei einer Temperatur $T = 1.6$ K und zum anderen die Abweichung zwischen den exakten Bethe-Ansatz (BA)-Daten und den TMRG-Daten für ein Magnetfeld entlang der a'' -Achse. Dass diese Abweichung stets kleiner als 2×10^{-3} ist, ist ein weiteres Zeichen für die Güte der TMRG-Daten im Vergleich zu den exakten BA-Daten [63]. Vergleicht man nun die theoretischen Daten zur Magnetisierung mit den experimentellen Werten, erkennt man für ein Magnetfeld bis zu $\mu_0 H < 45$ T eine gute Übereinstimmung mit der homogenen $S = 1/2$ AFHK. Bei höheren Magnetfeldern ist offensichtlich eine Abweichung zwischen den TMRG- und den experimentellen Daten zu erkennen. Im Experiment [61] wird ein Ausrichtungsfehler zwischen der Kristallachse a'' und der Magnetfeldrichtung \vec{H} von 5° angegeben. Wie man später feststellt, öffnet sich aufgrund der DM-Wechselwirkung und des alternierenden g -Tensors eine Anregungslücke, sobald das Magnetfeld H nicht mehr genau entlang der Kristallachse a'' angelegt ist. Ein

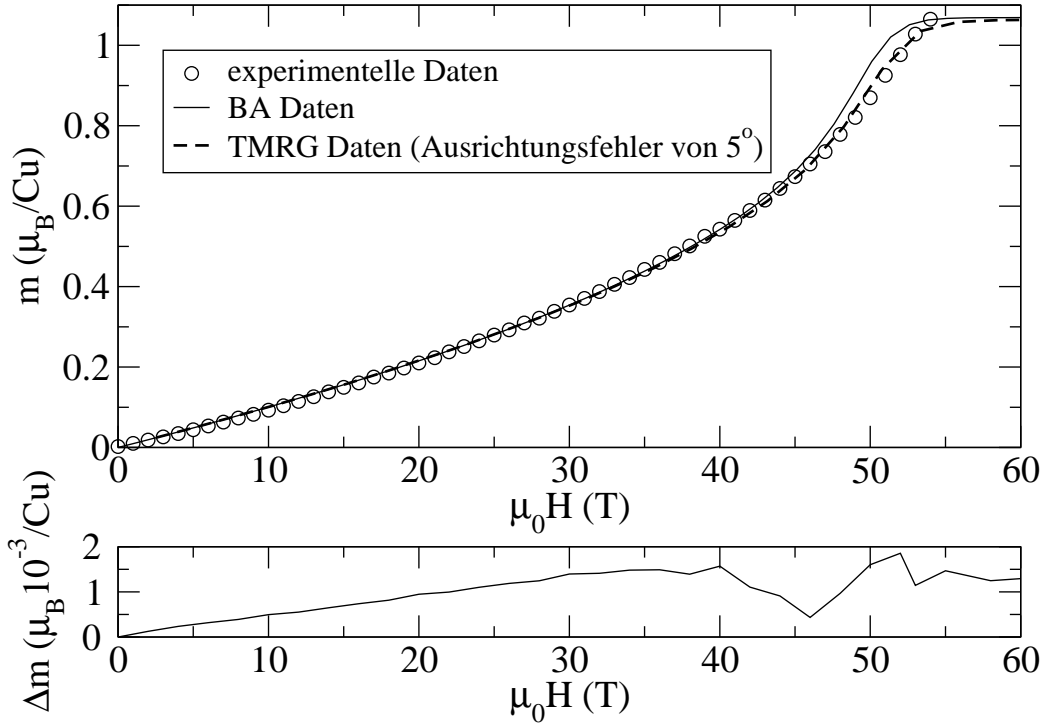


Abbildung 3.6: Die theoretische (Linie) und experimentelle (Kreise) Magnetisierung von CuPM bei $T = 1.6$ K entlang der a'' -Magnetfeldrichtung. Die gestrichelte Linie zeigt TMRG-Daten, die einen Ausrichtungsfehler von 5° berücksichtigen. Anm.: Die Abweichungen sind in der Nähe vom Sättigungsfeld am größten. Untere Abb.: Die Differenz zwischen den TMRG- und den BA-Daten entlang der a'' -Magnetfeldrichtung.

kleiner Ausrichtungsfehler von 5° wird dadurch das physikalische Verhalten des Materials ändern. Somit werden besonders bei großen Magnetfeldern Abweichungen zu der isotropen Heisenberg-Kette auftreten. Wird ein Ausrichtungsfehler von 5° in den Rechnungen berücksichtigt, müssen die physikalischen Parameter zu $J/k_B = 36.5$ K, $g = 2.13$ und $c = 0.01$ geändert werden. Die damit berechneten TMRG-Daten beschreiben das Experiment hervorragend (s. Abb. 3.6).

Magnetisierung von CuPM für $H \parallel c''$

Die Anregungslücke und somit der Effekt des induzierten gestaggerten Magnetfelds ist am größten, wenn das Magnetfeld H entlang der Kristallachse c'' angelegt wird. Am deutlichsten erkennt man das anhand der Suszeptibilität, die in Abschnitt 3.2.4 genauer untersucht wird. Entlang der c'' -Achse werden die Parameter $c = 0.11$ und $g = 2.19$ mit einem Sättigungsfeld $\mu_0 H_c = 49.6$ T gemäß Gl. (3.4) erhalten. Abb. 3.7 zeigt die Magnetisierung m von CuPM mit einem Magnetfeld H entlang der c'' -Achse bei einer Temperatur von $T = 1.6$ K. Die berechnete Magnetisierung mit der TMRG-Methode stimmt für den gesamten Magnetfeldbereich sehr gut mit den experimentellen Daten überein. Besonders für kleine Magnetfelder und im Vergleich mit der exakten Diagonalisierungsmethode (ED) werden die experimen-

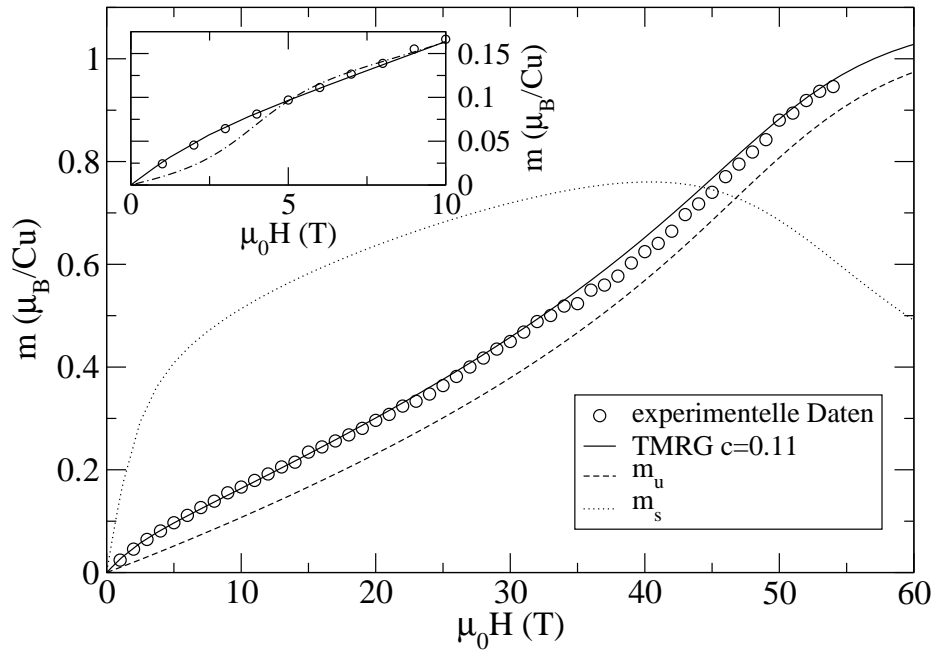


Abbildung 3.7: Die Magnetisierung von CuPM bei $T = 1.6$ K entlang der c'' -Achse. Die durchgezogene Linie zeigt die berechnete Magnetisierung m mit $c = 0.11$ und die gestrichelte (gepunktete) Linie die homogene (gestaggerte) Magnetisierung m_u (m_s). Die experimentellen Ergebnisse werden durch Kreise gekennzeichnet. Im Inset werden der Bereich kleiner Magnetfelder bis zu 10 T vergrößert und die Ergebnisse der ED (Strich-Punkt-Linie) dargestellt.

tellen Daten genauer durch die TMRG beschrieben, weil die TMRG per definitionem keine finite-size-Effekte hat (s. Inset von Abb. 3.7). Allerdings sollte man beachten, dass die Daten der ED bei $T = 0$ berechnet wurden, während die TMRG-Ergebnisse bei derselben Temperatur $T = 1.6$ K wie im Experiment berechnet wurden. Die ED-Daten beschreiben das Experiment bei hinreichend großen Magnetfeldern dennoch gut, weil die Anregungslücke groß genug ist, um die thermischen Anregungen bei diesen kleinen Temperaturen $T < 0.05J$ zu unterdrücken [61]. Bei etwas größeren Temperaturen kann die Methode der ED demnach nicht mehr angewandt werden. Ein Vergleich der theoretischen (TMRG) und experimentellen Magnetisierung bei einer Temperatur von $T = 4.2$ K und einem Magnetfeld parallel zur c'' -Achse zeigt auch bei dieser Temperatur eine gute Übereinstimmung (s. Abb. 3.8). Nur bei großen Magnetfeldern ($\mu_0 H \geq 38$ T) weichen die theoretischen von den experimentellen Daten ab. Diese Abweichung scheint aber ein experimentelles Problem zu sein [62, 64]. Schließlich weichen die Werte bei $T = 1.6$ K auch in diesem Bereich etwas nach unten ab bis sie sich schließlich wieder normalisieren. Die Magnetisierung entlang der c'' -Achse wird demnach gut durch das Modell der gestaggerten Heisenberg-Kette beschrieben.

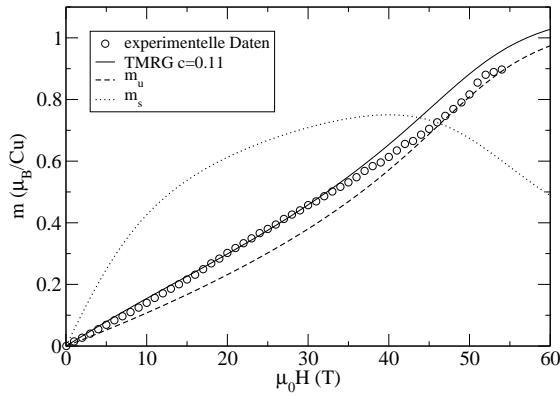


Abbildung 3.8: Die Magnetisierung von CuPM bei $T = 4.2$ K entlang der c'' -Achse. Die durchgezogene Linie zeigt die berechnete Magnetisierung m mit $c = 0.11$ und die gestrichelte (gepunktete) Linie die homogene (gestaggerte) Magnetisierung m_u (m_s). Die experimentellen Ergebnisse werden durch Kreise gekennzeichnet.

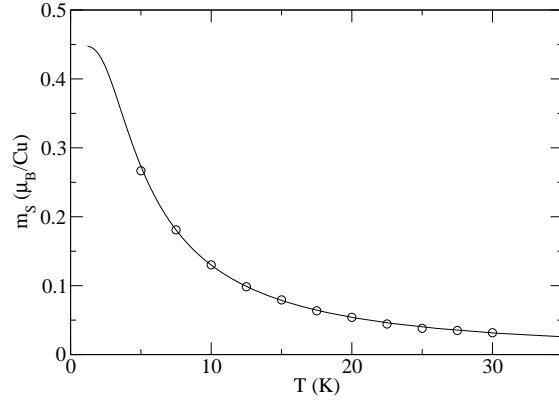


Abbildung 3.9: Die gestaggerte Magnetisierung von CuPM in Abhängigkeit der Temperatur T bei einem Magnetfeld $\mu_0 H = 9.3$ T entlang der Kettenachse. Die durchgezogene Linie zeigt die berechnete gestaggerte Magnetisierung m_s mit $c = 0.083$. Die experimentell bestimmten Daten sind durch Kreise gekennzeichnet.

Magnetisierung von CuPM für H entlang der Kettenachse

Für ein Magnetfeld H parallel zur Kettenachse⁴ von CuPM erhält man die Parameter $c = 0.083$ und $g = 2.117$. Die hervorragende Übereinstimmung der berechneten und der experimentell bestimmten [55] gestaggerten Magnetisierung entlang der Kettenachse bei einem Magnetfeld von $\mu_0 H = 9.3$ T wird in Abb. 3.9 gezeigt. Da experimentell nur die Magnetisierung m gemessen werden kann, ist die gestaggerte Komponente m_s mithilfe der Gl. (3.11) extrahiert worden. Zum einen erklärt das die gute Übereinstimmung der Daten, denn es wurde dasselbe Modell verwendet. Zum anderen kann dennoch das Modell zur Beschreibung des CuPM-Kristalls bestätigt werden, weil auch in dieser Kristallrichtung ($c = 0.083$) das Modell der gestaggerten Heisenberg-Kette gut funktioniert.

Zusammenfassend sollte man beachten, dass die experimentellen Magnetfelddaten sehr gut durch die Theorie beschrieben werden können und der c -Faktor entlang der c'' -Achse zu $c = 0.11$ mit einer Genauigkeit von ± 0.01 bestimmt werden konnte. Demnach ist der c -Faktor, bestimmt mit der TMRG-Methode, konsistent mit den Ergebnissen basierend auf der ED [61]. Er widerspricht jedoch dem Ergebnis $c = 0.08$ aus ESR-Messungen [65].

3.2.4 Suszeptibilität von Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat

Wie in 3.2.3 angedeutet, öffnet sich eine Anregungslücke im System, sobald ein gestaggertes Magnetfeld nach Gl. (3.8) in der Heisenberg-Kette angeschaltet wird. In diesem Abschnitt wird die gestaggerte Magnetisierung bei verschiedenen Temperaturen und die zugehörige Suszeptibilität diskutiert. Außerdem werden die Ergebnisse mit der Feldtheorie [48] verglichen.

⁴Zur Erinnerung: Die Kettenachse liegt in der $a'c'$ -Ebene und bildet einen Winkel von 64° zur c' -Achse [53].

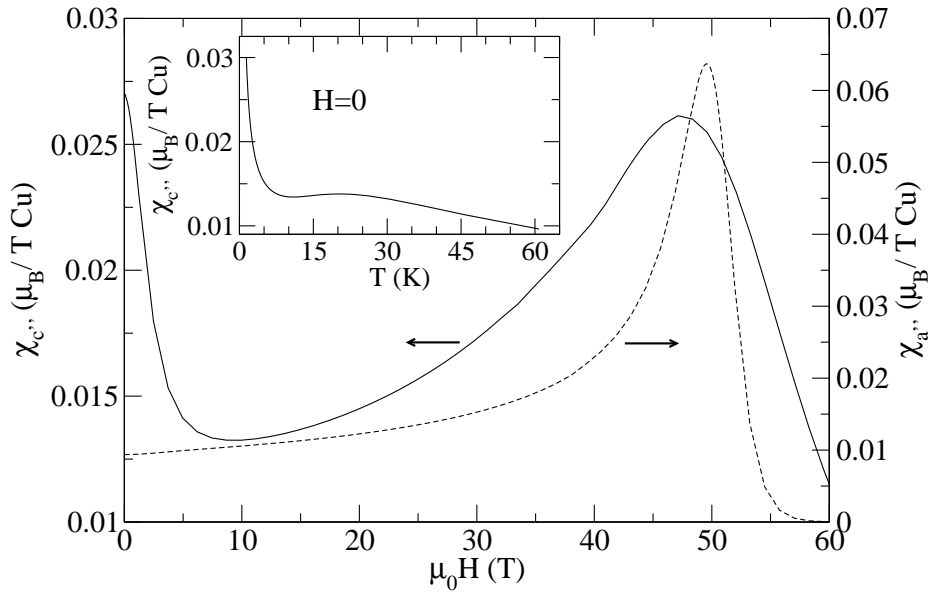


Abbildung 3.10: Berechnete Suszeptibilität χ von CuPM in Abhängigkeit des Magnetfeldes bei $T = 1.6$ K. Die durchgezogene (gestrichelte) Linie zeigt die Suszeptibilität mit einem Magnetfeld entlang der c'' (a'')-Achse. Im Inset ist die Suszeptibilität in Abhängigkeit der Temperatur T bei einem Magnetfeld $H = 0$ abgebildet.

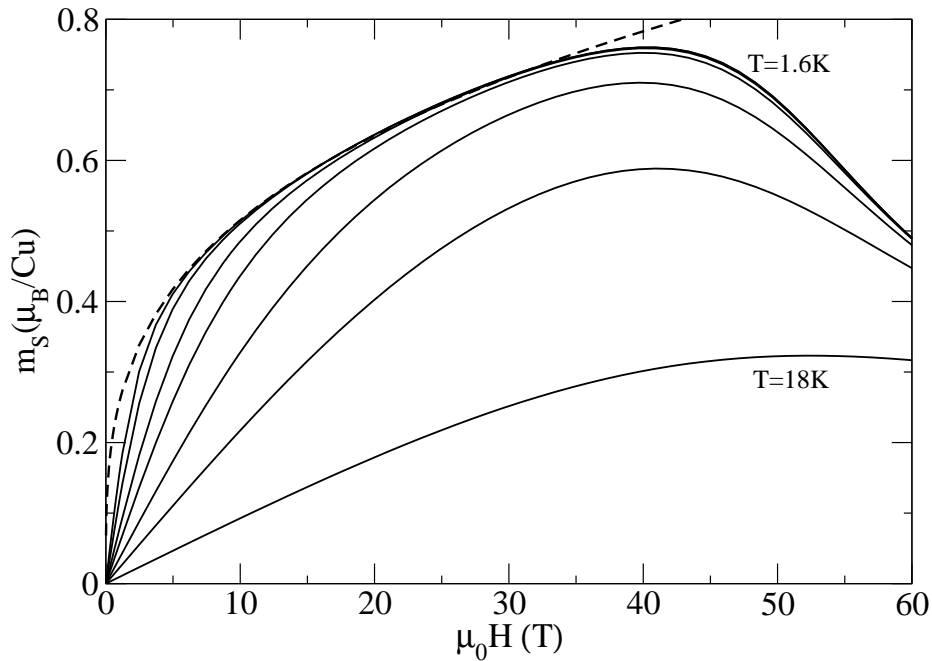


Abbildung 3.11: Die gestagerte Magnetisierung (Linie) in Abhängigkeit des Magnetfeldes H entlang der c'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen ($T = 1.6, 2.0, 3.0, 4.0, 6.0, 9.0$ und 18 K). Die gestrichelte Linie ist ein Fit $m_s = 0.26H^{0.3}$.

Mithilfe der Feldtheorie nach Ref. [48] wird gezeigt, dass eine Anregungslücke $\Delta \propto H^{2/3}$ mit logarithmischen Korrekturen induziert wird, sobald ein Magnetfeld angelegt wird, welches nicht entlang der a'' -Achse, sondern z.B. entlang der c'' -Achse wirkt. Somit sind die Beiträge der gestaggerten Komponente zur Magnetisierung bei tiefen Temperaturen sehr groß und bei $T = 0$ sogar singular. Bei $T = 0$ verhält sich die gestaggerte Magnetisierung m_s wie $m_s \propto H^{1/3}$ und bei tiefen Temperaturen $T > 0$ linear in H . In Abb. 3.11 wird die gestaggerte Magnetisierung von CuPM in Abhängigkeit des Magnetfelds bei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Die Ergebnisse aus der Feldtheorie können damit sehr gut belegt werden. Wenn die lineare Region bei $T = 1.6$ K nicht berücksichtigt wird, zeigt ein Fit der Daten, dass auch das Verhalten $m_s \propto H^{1/3}$ gültig ist. Schließlich konnte der Exponent numerisch zu 0.3 ± 0.05 bestimmt werden. Dieses Verhalten ist auch sehr gut in Abb. 3.10 zu erkennen, weil die Suszeptibilität parallel zur c'' -Achse im Gegensatz zur (homogenen) Suszeptibilität entlang der a'' -Achse bei tiefen Magnetfeldern eine Divergenz zeigt. Allerdings ist die Suszeptibilität, wie oben beschrieben, bei $H = 0$ endlich, weil erst bei $T = 0$ die Suszeptibilität mit $\chi \propto H^{-2/3}$ divergiert.

Bei $H = 0$ verhält sich die Suszeptibilität nach der Feldtheorie wie $\chi(T) \propto 1/T$ mit multiplikativen logarithmischen Korrekturen. Genau dieses Verhalten erkennt man auch im Inset der Abb. 3.10. Zusätzlich sollte erwähnt werden, dass die Suszeptibilität des vollständigen Hamiltonoperators (3.8) berechnet wurde und nicht nur die Suszeptibilität des homogenen Systems ($h_s = 0$), bei dem die Suszeptibilität bei $H = 0$ natürlich endlich ist. Da solch ein Verhalten auch durch paramagnetische Störstellen erklärt werden könnte, möchte ich abschließend noch darauf hinweisen, dass im theoretischen Modell der gestaggerten Heisenberg-Kette keine solchen Störstellen enthalten sind. Somit können die starken Beiträge zur Suszeptibilität nur durch die starken Korrelationen in diesem Modell erklärt werden. Demnach handelt es sich bei diesem Verhalten um ein typisches physikalisches Verhalten der gestaggerten Heisenberg-Kette.

3.3 Kupfer-Benzoat $\text{Cu}(\text{C}_6\text{H}_5\text{COO})_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$

3.3.1 Kristallstruktur von Kupfer-Benzoat

Koizumi *et al.* [66] bestimmten als erste die Kristallstruktur von Cu-Benzoat. Es kristallisiert in einem monoklinen Raumgitter mit $I2/c$ Symmetrie, wobei vier Formeleinheiten eine Einheitszelle bilden. Bei Raumtemperatur sind die Gitterkonstanten $a = 6.98$ Å, $b = 34.12$ Å, $c = 6.30$ Å und $\beta = 89.5^\circ$. Da der Abstand b im Vergleich zu a und c groß ist, kann die Wechselwirkung zwischen den ac -Ebenen vernachlässigt werden. Die Cu-Ionen befinden sich in einem verzerrten Oktaeder, welches aus sechs Sauerstoffionen gebildet wird. Dabei stammen vier Sauerstoffionen aus Wassermolekülen und zwei aus Benzoat (s. Abb. 3.12(A) und (C)). Diese Oktaeder sind entlang der c -Achse verbunden, indem sie sich zwei Sauerstoffionen des Wassers teilen. Die Hauptachsen zweier benachbarter Oktaeder sind um $\sim \pm 10^\circ$ aus der ac -Ebene gekippt. Wie beim CuPM bilden sich zwei unterschiedliche Hauptachsen I und II (s. Abb. 3.12), die wieder einen gestaggerten g -Tensor im Koordinatensystem $a'bc'$ verursachen. Hier ist c' die Winkelhalbierende von I und II (s. Abb. 3.12(B)) und a' steht senkrecht auf c' und b . Kombiniert man diese anisotrope Austausch-Wechselwirkung mit einer zusätzlichen Dipol-Wechselwirkung [67], erhält man die magnetische Hauptachse c'' , die ungefähr in der Mitte zwischen der Kettenachse und c' liegt (s. Abb. 3.13). Das ma-

netische Hauptachsensystem ist demnach $a''bc''$, wobei a'' senkrecht auf b und c'' ist. In diesem Koordinatensystem $a''bc''$ nimmt der g -Tensor die folgende Form an [48]:

$$\begin{aligned} \overleftrightarrow{g} &= \begin{pmatrix} 2.115 & \pm 0.0190 & 0.0906 \\ \pm 0.0190 & 2.059 & \pm 0.0495 \\ 0.0906 & \pm 0.0495 & 2.316 \end{pmatrix} \\ &= \overleftrightarrow{g}_u \pm \overleftrightarrow{g}_s . \end{aligned} \quad (3.19)$$

3.3.2 Magnetische Eigenschaften von Kupfer-Benzoat

Als erste haben Date *et al.* [68] die magnetische Suszeptibilität von Cu-Benzoat bei einem angelegten Magnetfeld parallel zu den Kristallachsen a , b und c gemessen und mit den exakten ED-Ergebnissen von Bonner und Fisher [59] verglichen. Oberhalb einer Temperatur von $T \approx 8$ K gab es eine gute Übereinstimmung, sodass die Austauschwechselwirkung zu $J/k_B = 17.2 \pm 2.0$ K bestimmt werden konnte. Allerdings zeigten sich in allen betrachteten Kristallrichtungen Abweichungen unterhalb von $T \lesssim 8$ K, die erst später durch die Arbeiten von Oshikawa und Affleck [48, 51] zur gestaggerten $S = 1/2$ AFHK erklärt werden konnten. Wie bei CuPM wird ein gestaggertes Magnetfeld durch den gestaggerten g -Tensor (3.19) sowie durch die DM-Wechselwirkung induziert. Dadurch öffnet sich auch hier eine Anregungslücke, die Dender *et al.* [2] mithilfe der spezifischen Wärme gemessen haben. Die durchgezogenen Linien in Abb. 3.14 zeigen einen Fit zum Aktivierungsverhalten $\propto (\Delta/k_B T)^{3/2} \exp(-\Delta/k_B T)$, wobei Δ die Anregungslücke ist. Essler [69] untersuchte die gemessene spezifische Wärme von Dender *et al.* erneut und konnte das Verhalten der Anregungslücke $\Delta \propto H^{2/3}$ nach Oshikawa und Affleck [51] für zwei verschiedene Kristallrichtungen $H \parallel b$ und c'' bestätigen. Für $H \parallel a''$ zeigte die spezifische Wärme das Verhalten einer homogenen $S = 1/2$ AFHK. Demnach kann Cu-Benzoat entlang der a'' -Achse durch eine homogene $S = 1/2$ AFHK beschrieben werden. In diesem Fall gibt es kein gestaggertes Magnetfeld, weil sich die Effekte des gestaggerten g -Tensors und der DM-Wechselwirkung gegenseitig aufheben. Später bestimmten Affleck und Oshikawa [48] den DM-Vektor im Koordinatensystem $a''bc''$ zu

$$\vec{D} = J(0.13, 0.0, 0.02) \quad (3.20)$$

und konnten die Ergebnisse von Essler [69] erneut bestätigen.

3.3.3 Magnetisierung von Kupfer-Benzoat

Cu-Benzoat ist ein weiteres Beispiel für eine gestaggerte $S = 1/2$ AFHK. Es zeigt ein sehr ähnliches Verhalten wie CuPM, lediglich die Kopplungskonstante von Cu-Benzoat ist circa um einen Faktor 2 kleiner als bei CuPM. Die Kopplungskonstante von Cu-Benzoat ist $J/k_B = 19 \pm 0.5$ K. Eine Konsequenz der kleineren Kopplungskonstante ist, dass für eine temperaturabhängige Hochmagnetfeldmessung alle magnetischen Bereiche des Systems zugänglich sind. Die Messungen umfassen den vollständig gestaggerten Bereich mit $k_B T \ll J$, den paramagnetischen Bereich mit $k_B T > J$ und den Sättigungsbereich. Im Unterschied zu CuPM, bei dem die Sättigungsmagnetisierung nicht experimentell erreicht wurde, kann in diesem Fall der gesamte magnetische Bereich mit den TMRG-Daten verglichen werden. Im

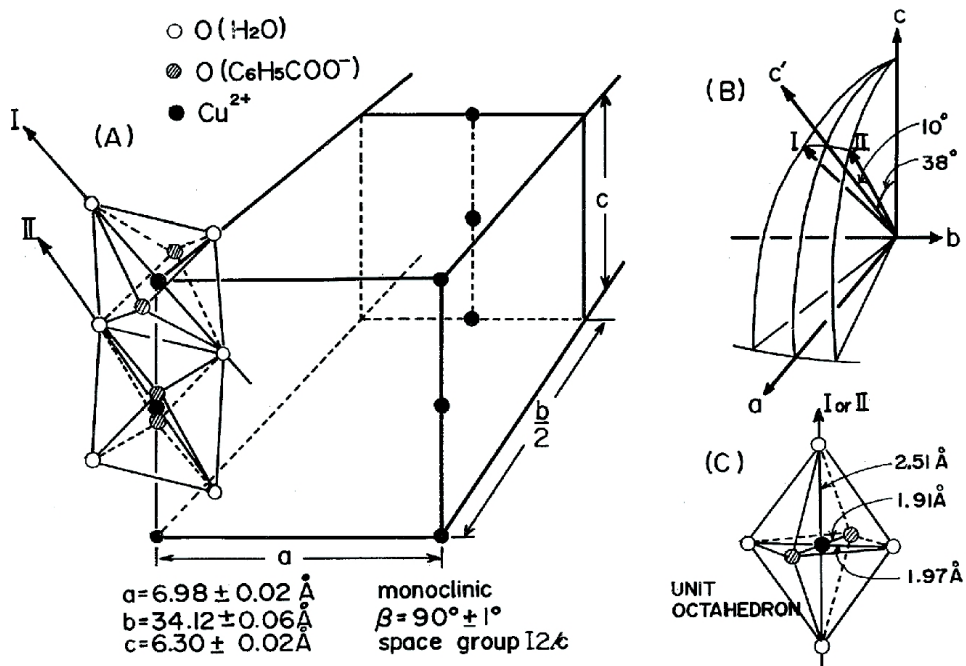


Abbildung 3.12: (A) Schematische Darstellung der Kristallstruktur von Cu-Benzoat. (B) Die zwei unterschiedlichen Hauptachsen I und II der Cu-Ionen in der Oktaedersymmetrie. (C) Ein Cu-Ion in der lokalen Oktaedersymmetrie. Diese Abb. wurde Ref. [67] entnommen.

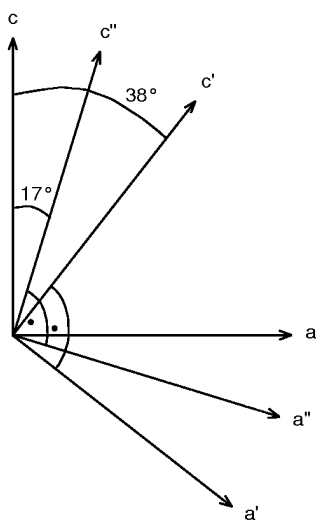


Abbildung 3.13: Die magnetischen Hauptachsen c'' und a'' dargestellt in der ac -Ebene. Diese Abb. wurde Ref. [62] entnommen.

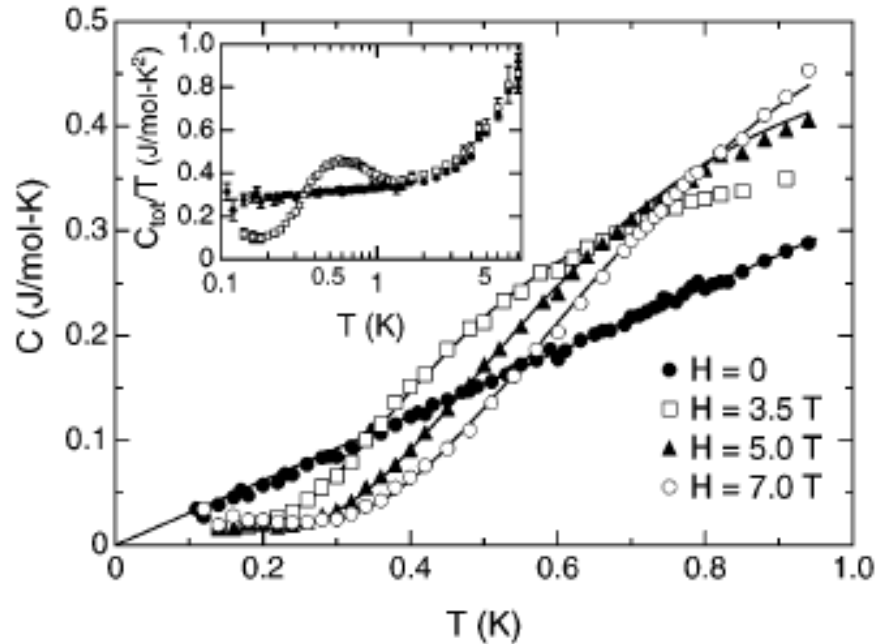


Abbildung 3.14: Temperaturabhängige spezifische Wärme von Cu-Benzoat nach Abzug der Phononenbeiträge bei verschiedenen Magnetfeldern ($\mu_0 H = 0, 3.5, 5.0$ und 7.0 T) parallel zur b -Achse. Im Inset ist C/T für $\mu_0 H = 0$ und 3.5 T abgebildet. Die durchgezogenen Linien sind Fits wie im Text beschrieben. Diese Abb. wurde Ref. [2] entnommen.

Folgenden wird die Magnetisierung bei verschiedenen Temperaturen, Magnetfeldern und Magnetfeldrichtungen mithilfe der TMRG-Methode berechnet und dann mit den experimentellen Daten verglichen. Die temperaturabhängigen Hochmagnetfeldmessungen wurden wie die Experimente zu CuPM (s. Kap. 3.2) am „Laboratoire National des Champs Magnétiques Pulsés“ in Toulouse durchgeführt. Beim Cu-Benzoat wurden gepulste Magnetfelder bis zu $\mu_0 H = 38$ T verwendet. Die Experimente wurden durchgeführt von Wolter [62, 70], die von Rakoto und Broto unterstützt wurde.

Magnetisierung von Cu-Benzoat für $H \parallel a''$

Wenn ein Magnetfeld parallel zur a'' -Achse von Cu-Benzoat angelegt wird, verhält sich Cu-Benzoat wie eine homogene $S = 1/2$ AFHK ($c = 0$) mit einer Kopplungskonstanten $J/k_B = 19$ K. Das magnetische Sättigungsfeld wird nach (3.4) unter der Verwendung des g -Faktors $g = 2.13$ entlang dieser Achse zu $\mu_0 H_c = 26.5$ T berechnet. In Abb. 3.15 ist die Magnetisierung als eine Funktion des Magnetfelds bei verschiedenen Temperaturen gezeigt. Allumfassend stimmen die TMRG-Ergebnisse sehr gut mit den experimentellen Daten überein. Besonders im Hinblick auf die Sättigungsmagnetisierung können die Ergebnisse überzeugen.

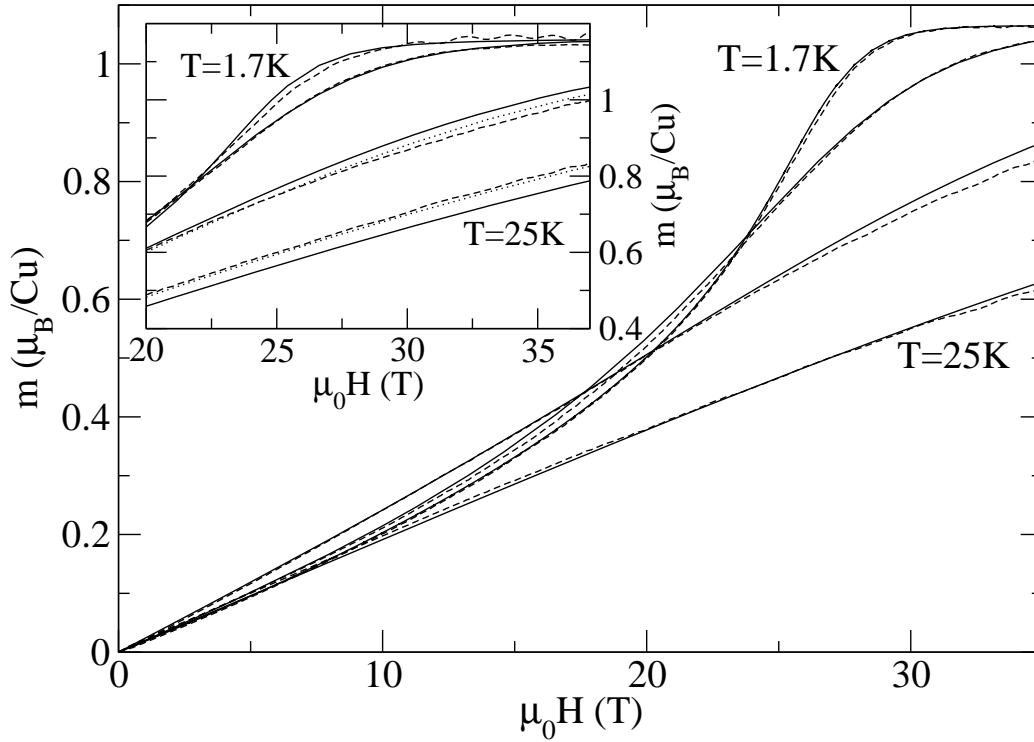


Abbildung 3.15: Homogene Magnetisierung von Cu-Benzoat entlang der a'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen (1.7, 4.2, 12 und 25 K). Die durchgezogenen (gestrichelten) Linien zeigen die TMRG (experimentellen) Ergebnisse. Im Inset ist die Magnetisierung von Cu-Benzoat entlang der c'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen (1.7, 4.2, 12 und 25 K) abgebildet. Die gepunkteten Linien sind die mit der TMRG-Methode berechneten Magnetisierungen bei $T = 12.8$ und 22.5 K.

Magnetisierung von Cu-Benzoat für $H \parallel c''$

Bei Cu-Benzoat ist die feldinduzierte Anregungslücke am größten für ein Magnetfeld entlang der c'' -Achse. In diesem Fall wird eine Kopplungskonstante von $J/k_B = 18.9$ K benutzt und der g -Faktor zu $g = 2.32$ bestimmt. Das zugehörige magnetische Sättigungsfeld beträgt $\mu_0 H_c = 24.2$ T. Außerdem kann nach (3.9b) ein c -Faktor von $c = 0.043$ berechnet werden. Der Inset von Abb. 3.15 zeigt die Magnetisierung von Cu-Benzoat entlang der c'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen. Die etwas größeren Abweichungen zwischen dem Experiment und der Theorie bei höheren Temperaturen ($T = 12$ und 25 K) kann auf eine größere experimentelle Unsicherheit (± 3 K) in diesem Temperaturbereich zurückgeführt werden. Deswegen wurden mit der TMRG zusätzliche Magnetisierungskurven bei $T = 12.8$ und 22.5 K berechnet und mit dem Experiment verglichen. Die nun gute Übereinstimmung bei hohen Temperaturen und die sehr gute Übereinstimmung bei tiefen Temperaturen bestätigen, dass die Magnetisierung von Cu-Benzoat gut durch die TMRG-Ergebnisse beschrieben werden kann. Demnach kann der c -Faktor von $c = 0.043 \pm 0.01$ bestätigt werden. Außerdem liegt der c -Faktor $c = 0.034$, der aus dem DM-Vektor in Ref. [71] berechnet wurde, innerhalb der Fehlerschranken. Zudem ist in Abb. 3.16 klar zu erkennen, dass eine Veränderung des

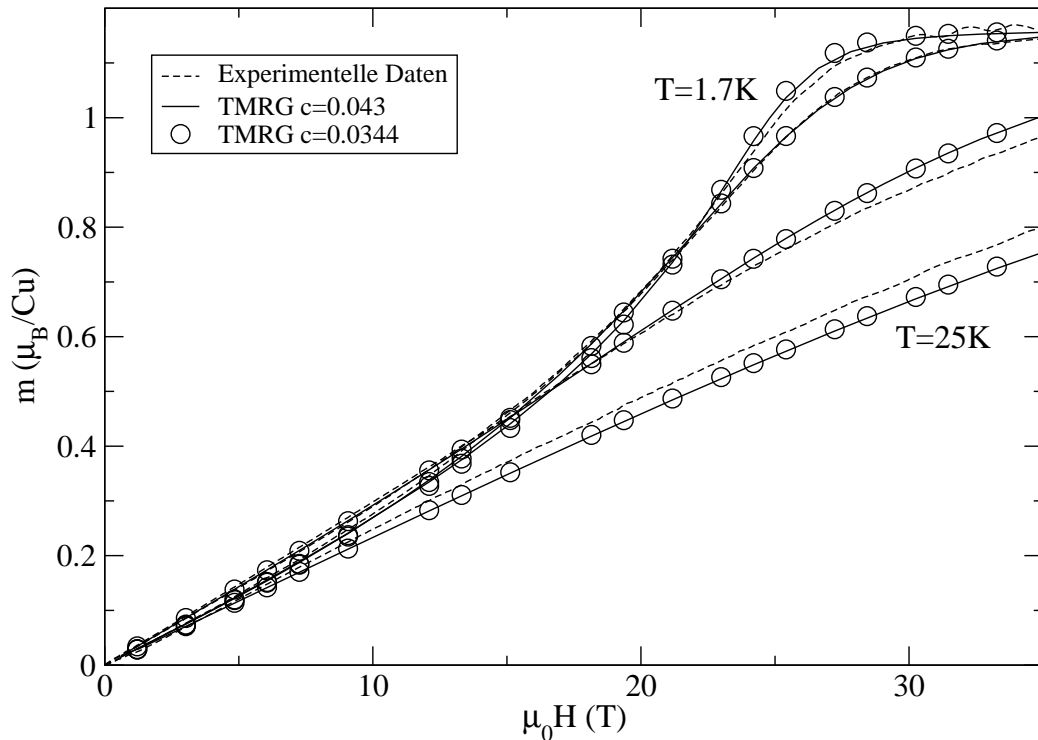


Abbildung 3.16: Die Magnetisierung von Cu-Benzoat entlang der c'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen (1.7, 4.2, 12 und 25 K). Die durchgezogenen Linien (offene Kreise) zeigen TMRG-Daten berechnet mit einem c -Faktor von $c = 0.043$ ($c = 0.034$). Die gestrichelten Linien zeigen die experimentellen Daten.

c -Faktors um 0.01 auf $c = 0.034$ keine große Auswirkung hat. Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Magnetisierung von Cu-Benzoat sehr gut durch die TMRG-Ergebnisse beschrieben werden kann.

In Abb. 3.17 ist die gestagerte Magnetisierung von Cu-Benzoat bei verschiedenen Temperaturen abgebildet. Es ist gut zu erkennen, dass bei tiefen Temperaturen ($1.7 \text{ K} = 0.09k_B T/J$) die gestagerte Komponente mit einem Maximum von $0.6\mu_B/\text{Cu-Ion}$ bei $\mu_0 H = 20 \text{ T}$ am größten ist. Die gestagerte Magnetisierungskomponente nimmt stetig mit steigender Temperatur ab, um bei $T = 1.3k_B T/J = 25 \text{ K}$ fast keinen Beitrag mehr zur Gesamtmagnetisierung zu leisten. Bei einem Magnetfeld von $\mu_0 H = 20 \text{ T}$ ist der zugehörige Beitrag kleiner als $c \cdot 0.05\mu_B/\text{Cu-Ion} = 0.043 \cdot 0.05\mu_B/\text{Cu-Ion}$. Ein Vergleich mit den Daten aus dem Inset in Abb. 3.15 zeigt, dass der gestagerte Anteil nur ca. 0.4% der Gesamtmagnetisierung ist. Demnach kann bei tiefen Temperaturen von einem gestagerten Regime und bei höheren Temperaturen von dem konventionellen paramagnetischen Regime gesprochen werden.

In diesem Abschnitt konnte eine vergleichende Analyse von numerischen TMRG- und experimentellen Daten zu Cu-Benzoat und CuPM bei tiefen Temperaturen durchgeführt werden. Die Übereinstimmungen waren sehr gut. Außerdem zeigte die Feldabhängigkeit der Magnetisierung ein interessantes Sättigungsverhalten bei hohen Magnetfeldern und ein quantenkritisches Verhalten (s. Kap. 3.2.4) bei kleinen Magnetfeldern und niedrigen Temperaturen.

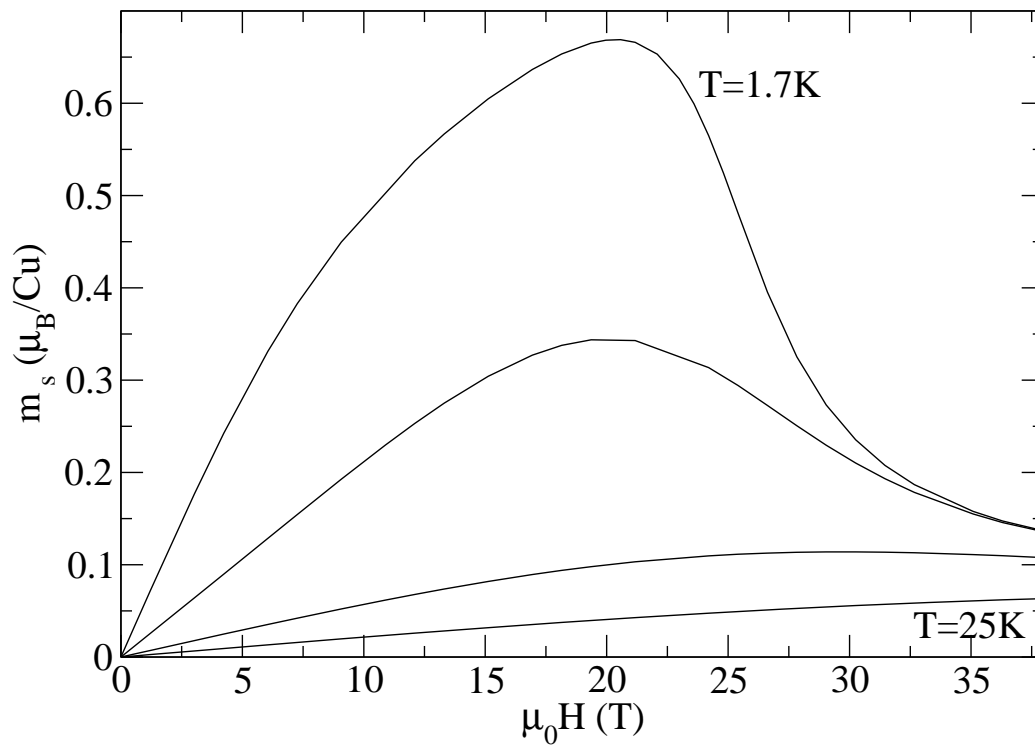


Abbildung 3.17: Gestagerte Magnetisierung von Cu-Benzoat entlang der c'' -Achse bei verschiedenen Temperaturen (1.7, 4.2, 12 und 25 K).

4 Die dimerisierte antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette

4.1 Das physikalische Modell

Eine dimerisierte antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette ($S = 1/2$ AFHK) kann durch den folgenden Hamiltonoperator

$$\hat{H} = J \sum_i \left[\left(1 + (-1)^i \delta \right) \vec{S}_i \vec{S}_{i+1} \right] - \frac{\hbar}{2} \sum_i [S_i^z + S_{i+1}^z] \quad (4.1)$$

beschrieben werden. Dabei ist J die Kopplungskonstante und \hbar die Stärke des Magnetfelds entlang der z -Achse. Im Vergleich zur isotropen $S = 1/2$ AFHK, der sog. XXX-Kette (3.3), gibt es in der dimerisierten Form der $S = 1/2$ AFHK zwei verschiedene Kopplungskonstanten $J_{1,2} = J(1 \pm \delta)$, die in der Heisenberg-Kette immer abwechselnd auftreten (s. Abb. 4.1). Wenn die Dimerisierung $\delta > 0$ ist, so gilt $J_1 > J_2$. Genau wie die Thermodynamik der gestaggerten $S = 1/2$ AFHK (s. Kapitel 3) kann auch die Thermodynamik der dimerisierten $S = 1/2$ AFHK mithilfe der TMRG-Methode berechnet werden. Die dimerisierte $S = 1/2$ AFHK ist physikalisch besonders interessant, weil durch die Dimerisierung δ zwei verschiedene Energieskalen existieren. Diese können in thermodynamischen Größen sowohl theoretisch als auch experimentell beobachtet werden. Die große Energieskala wird durch die Kopplungskonstante J_1 und die kleine Energieskala durch die Spinlücke Δ gekennzeichnet. Der Alternierungsparameter $\tilde{\alpha} \equiv J_2/J_1$ induziert diese Spinlücke [72]. Die thermodynamischen Eigenschaften werden durch die große Energieskala charakterisiert. Das Maximum der magnetischen Suszeptibilität ist beispielsweise bei $k_B T_\chi^{\max} \approx 0.64 J_1$ lokalisiert und ist praktisch unabhängig von $\tilde{\alpha}$ (s. Abb. 4.2) [73]. Die kleine Energieskala hingegen verursacht eine Anomalie, die im thermischen Ausdehnungskoeffizienten sehr groß werden kann und sich in der dimerisierten $S = 1/2$ AFHK nicht proportional zur spezifischen Wärme verhält. In diesem Fall ist die Grüneisen-Skalierung nämlich nicht mehr gültig [74].

Experimentell und theoretisch wird das im Folgenden anhand von Vanadyl-Diphosphat gezeigt. Vorher wird die Grüneisen-Skalierung erklärt.

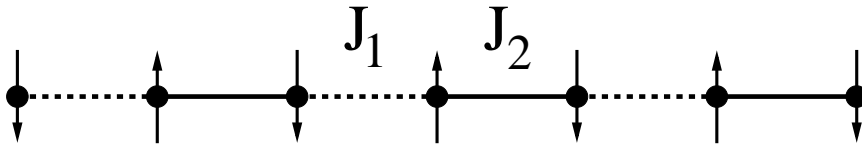


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung einer dimerisierten $S = 1/2$ AFHK.

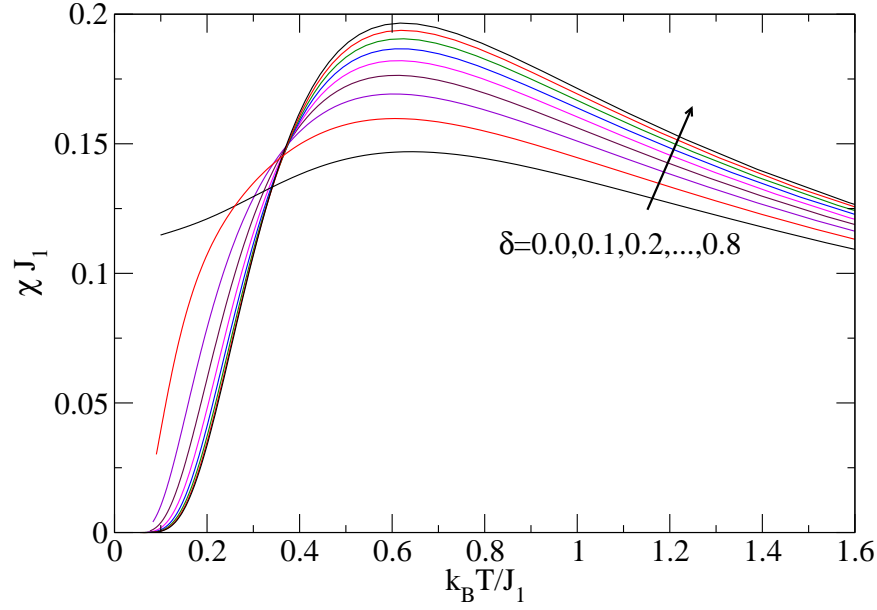


Abbildung 4.2: Die magnetische Suszeptibilität ist hier als $\chi \cdot J_1$ in Abhängigkeit der Temperatur als $k_B T/J_1$ für verschiedene Dimerisierungen δ aufgetragen. Da hier nur die Position des Maximums interessiert, wurden die Rechnungen bei $k_B T \approx 0.1 J_1$ abgebrochen.

4.1.1 Die Grüneisen-Skalierung

Die Entropie ist eine extensive Größe und kann somit als Summe über Einzelbeiträge $S = \sum_j S^j$ geschrieben werden. Dadurch kann für anisotrope Systeme unter hydrostatischen Bedingungen [74] der Ausdehnungskoeffizient als

$$\beta = \sum_j \beta^j = \kappa_T \sum_j \left(\frac{\partial S^j}{\partial V} \right)_T \quad (4.2)$$

geschrieben werden. Hier ist $\kappa_T = -\frac{1}{V} \left(\frac{\partial V}{\partial P} \right)_T$ die isotherme Kompressibilität, V das Volumen, P der Druck und T die Temperatur. Der Parameter j in der Summe bezeichnet sowohl magnetische Beiträge ($j = m$) als auch Phononenbeiträge (ph). In Festkörpern wird der Phononenbeitrag häufig mithilfe des Debye-Modells¹ [75] beschrieben. Bei tiefen Temperaturen verhält sich die spezifische Wärme demnach wie $C \propto (T/\Theta_D)^3$, wobei Θ_D die Debye-Temperatur ist. Nach Lindemann [75] ist diese durch

$$\Theta_D \approx \frac{200}{v^{1/3}} \left(\frac{T_s}{M} \right)^{1/2} \quad (4.3)$$

gegeben. Hier sind v das molare Volumen, T_s die Schmelztemperatur und M die molare Masse. Verwendet man nun das Debye-Modell und die Skaleninvarianz der magnetischen Entropie S^m , so erhält man

$$S = S^{\text{ph}}(T/\Theta_d) + S^m(T/J_1, \Delta^*), \quad (4.4)$$

¹Die Dispersionsrelation der Phononen wird bis zur Debye-Frequenz als linear angenommen.

wobei $\Delta^* = \Delta/J_1$ durch die kleine Energieskala Δ definiert wird². Mit dem Phononenbeitrag $C_0^{\text{ph}} = -\Theta_D \partial S_0^{\text{ph}} / \partial \theta_D$ und dem magnetischen Beitrag $C_0^m = -J_1 \partial S_0^m / \partial J_1$ zur spezifischen Wärme erhält man:

$$\beta = \frac{\kappa T}{V_0} \left(-\Delta^* \Gamma^{\Delta^*} \frac{\partial S_0^m}{\partial \Delta^*} + \Gamma^{J_1} C_0^m + \Gamma^{\text{ph}} C_0^{\text{ph}} \right). \quad (4.5)$$

Hier sind $\Gamma^{\Delta^*} = -\partial \ln \Delta^* / \partial \ln V$, $\Gamma^{J_1} = -\partial \ln J_1 / \partial \ln V$ und $\Gamma^{\text{ph}} = -\partial \ln \Theta_D / \partial \ln V$ verschiedene Grüneisen-Parameter. Die Entropie hängt von zwei SkalenvARIABLEN T/J_1 und Δ^* ab. Durch die kleine Energieskala Δ^* gibt es im Ausdehnungskoeffizient β (4.5) einen Beitrag $-\Delta^* \Gamma^{\Delta^*} \frac{\partial S_0^m}{\partial \Delta^*}$, der nicht mehr proportional zur spezifischen Wärme ist. Wäre diese Energieskala nicht vorhanden, wie z.B. bei der isotropen $S = 1/2$ AFHK, so wäre der Ausdehnungskoeffizient hingegen proportional zur spezifischen Wärme. Dieses Proportionalitätsverhalten wird **Grüneisen-Skalierung** genannt. Demnach wird durch die Dimerisierung die kleine Energieskala Δ^* erzeugt, sodass der Ausdehnungskoeffizient nicht mehr der Grüneisen-Skalierung genügt. Allerdings ist der zum Ausdehnungskoeffizienten β^{ph} beitragende Phononenanteil weiterhin proportional zur spezifischen Wärme $\beta^{\text{ph}} = \frac{\kappa T}{V_0} \Gamma^{\text{ph}} C_0^{\text{ph}}$ (4.5).

Der Ausdehnungskoeffizient β kann nun durch

$$\beta = \sum_{i=a,b,c} \alpha_i \quad (4.6)$$

in Einzelbeiträge entlang der Kristallachsen a, b und c zerlegt werden. Nach Ref. [74] gilt:

$$\alpha_i = \gamma_i^{\Delta^*} \frac{\partial S_0^m}{\partial \Delta^*} + \gamma_i^{J_1} \frac{\partial S_0^m}{\partial J_1} + \gamma_i^{\text{ph}} \frac{\partial S_0^{\text{ph}}}{\partial \Theta_D}. \quad (4.7)$$

Hier sind die Vorfaktoren $\gamma_i^{\Delta^*}$, $\gamma_i^{J_1}$ und γ_i^{ph} von Δ^* , J_1 und Θ_D , sowie einer Kombination von elastischen Nachgiebigkeiten und des molaren Volumens abhängig. Diese Vorfaktoren und die Grüneisen-Parameter Γ^j haben nur eine schwache Temperaturabhängigkeit, sodass sie in dieser Arbeit als konstant angesehen werden können. In der Nähe des Phasenübergangs bei $\Delta \rightarrow 0$ gilt das allerdings nicht mehr, weil dort die Grüneisen-Parameter divergieren [76]. Demnach ist in führender Ordnung die Temperaturabhängigkeit der α_i einzig durch Ableitungen der Entropie nach den verschiedenen Energieskalen bestimmt (4.7).

4.2 Vanadyl-Diphosphat (VO)₂P₂O₇

Das Material Vanadyl-Diphosphat (VO)₂P₂O₇ in seiner Hochdruck-Phase (HP-VOPO)³ ist gut geeignet, um die beiden Energieskalen, die durch die Dimerisierung entstehen, experimentell und theoretisch zu untersuchen. Zuerst soll aber noch gezeigt werden, dass HP-VOPO durch eine dimerisierte $S = 1/2$ AFHK beschrieben werden kann. Zusätzlich müssen noch die verschiedenen Kopplungskonstanten bestimmt werden, bevor die Auswirkung der verschiedenen Energieskalen anhand von HP-VOPO erklärt werden können.

²Im Folgenden wird Δ^* auch als kleine Energieskala bezeichnet. Schließlich unterscheiden sich Δ und Δ^* nur durch eine Umparametrisierung.

³engl. **high pressure**

4.2.1 Die Struktur von $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$

Azuma *et al.* haben als erste einen HP-VOPO Kristall synthetisiert. Eine Abbildung eines HP-VOPO Kristalls ist in Abb. 4.3 zu sehen. Das Material bildet bei normalem Druck zwei verschiedene Spinketten [78, 79]. Unterzieht man diesen Kristall nun mindestens zwei Stunden lang einem hohen Druck von 3 GPa und einer Temperatur von 800° C, so bildet sich nur eine leicht dimerisierte $S = 1/2$ AFHK [79–81]. In Abbildung 4.4 wird die Kristallstruktur von HP-VOPO gezeigt. Da zusätzliche Kopplungen zwischen den dimerisierten $S = 1/2$ AFHK nicht ausgeschlossen werden können, kann man zum einen die experimentellen Daten mit den theoretischen Daten bzgl. einer dimerisierten $S = 1/2$ AFHK vergleichen oder zum anderen *ab-initio* DFT-Rechnungen⁴ durchführen. Der direkte Vergleich der Daten wird im nächsten Kapitel durchgeführt und zeigt, analog zu DFT-Rechnungen, dass HP-VOPO durch eine dimerisierte $S = 1/2$ AFHK beschrieben werden kann. Zusätzliche Kopplungen werden demnach nicht benötigt.

In diesem Fall wurden DFT-Rechnungen mit der Gradienten-Näherung durchgeführt. Zusätzlich wurden die Atome in der sog. *muffin-tin* Orbitalbasis behandelt [82]. Mit diesen Rechnungen konnte gezeigt werden, dass es nur zwei wichtige Überlappintegrale der Größe $t_1 = 0.114$ eV und $t_2 = 0.10$ eV gibt. Das nächstgrößte Überlappintegral ist $t_b = 0.02$ eV. Alle anderen sind um mindestens eine Größenordnung kleiner als $t_{1,2}$. Dies belegt, dass HP-VOPO eine dimerisierte $S = 1/2$ AFHK ist [83]. Aus den DFT-Rechnungen ergeben sich zusätzlich die Kopplungskonstanten $J_1/k_B = 127$ K und $J_2/k_B = 111$ K. Somit ist $\tilde{\alpha} = 0.873$ und $\Delta/k_B = 31.8$ K [83]. Diese Werte stimmen mit den Werten aus Ref. [79] überein. Auch die experimentellen Daten zur Suszeptibilität von HP-VOPO passen mit den Daten aus Ref. [79] zusammen [83]. Weiterhin ist die strukturelle Phase von HP-VOPO sehr rein [84], sodass die Anzahl der Störstellen in dem System klein genug ist [83], um in diesem Temperaturbereich keine Auswirkung zu zeigen.

Außerdem können mit diesen Kopplungskonstanten die experimentellen Daten, z.B. zur spezifischen Wärme, gut mithilfe der TMRG-Methode beschrieben werden (s. Kap. 4.2.2).

4.2.2 Ausdehnungskoeffizienten und die spezifische Wärme von $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$

Die thermische Ausdehnung wurde für Temperaturen zwischen $T = 1.5$ K und 200 K mit einem hochauflösenden kapazitiven Dilatometer [83, 85] gemessen. Die temperaturabhängigen Ausdehnungskoeffizienten $\alpha_i(T) = l^{-1}dl/dT$ des HP-VOPO-Einkristalls entlang einer Kristallachse i sind in Abbildung 4.5 dargestellt. Hier ist l die Länge des Einkristalls. Die Ausdehnungskoeffizienten α_i sind entlang der Spinkette (α_c), senkrecht zur Spinkette (α_a) und in einem polykristallinen Material (α_{poly}) gemessen worden. Da HP-VOPO (quasi)-eindimensionale physikalische Eigenschaften zeigt, ist die Kristallstruktur stark anisotrop. Somit erwartet man auch ein anisotropes Verhalten für die Ausdehnungskoeffizienten α_i . Besonders entlang der Spinkette (α_c) zeigt sich ein anomaler temperaturabhängiger Ausdehnungskoeffizient. Schließlich gibt es bei ca. 13 K einen großen anomalen negativen Peak. Der Ausdehnungskoeffizient wächst schließlich mit steigender Temperatur wieder an, um nach dem Maximum bei ca. 50 K wieder zu fallen. Ab einer Temperatur von $T \geq 150$ K ist der Ausdehnungskoeffizient so klein, dass bei HP-VOPO entlang der Spinkette der Gitterbeitrag zu α_c ungewöhnlich klein ist. Normalerweise haben die Ausdehnungskoeffizienten einen

⁴Dichte-Funktional-Rechnungen



Abbildung 4.3: Ein HP-VOPO-Einkristall der Größe $2 \times 2 \times 2 \text{ mm}^3$. Diese Abb. wurde Ref. [77] entnommen.

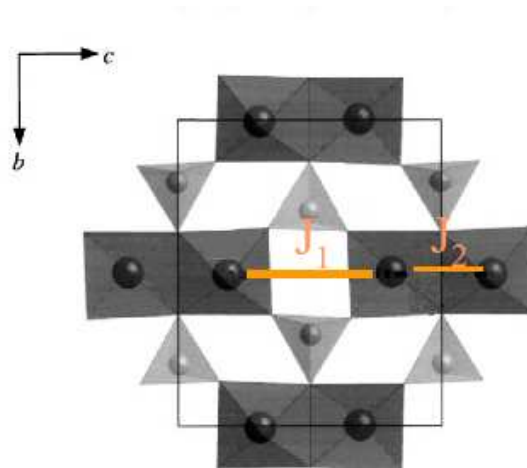


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung der Kristallstruktur von HP-VOPO. Die VO_5 -Oktaeder sind dunkel und die PO_4 -Tetraeder hell dargestellt. J_1 und J_2 kennzeichnen die alternierenden Kopplungsstärken, die zu einer dimerisierten $S = 1/2$ AFHK führen. Diese Abb. wurde Ref. [78] entnommen.

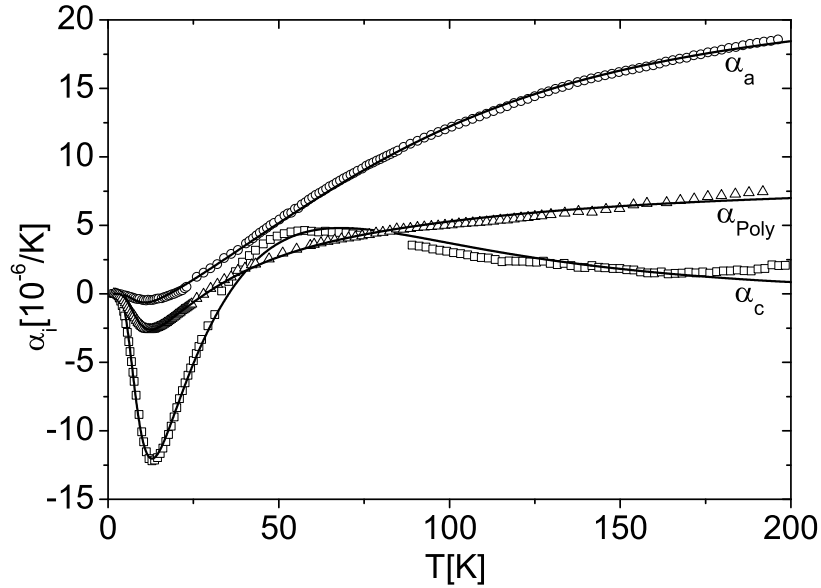


Abbildung 4.5: Ausdehnungskoeffizienten eines HP-VOPO-Einkristalls entlang der a -Achse (Kreise), entlang der Spinkette, d.h. der c -Achse, (Quadrate) und in einem polykristallinen Material (Dreiecke). Die durchgezogenen Linien sind Fits, die mit TMRG-Daten erstellt wurden und in Kapitel 4.2.3 detailliert erklärt werden.

viel größeren Gitterbeitrag, wie es in den Ausdehnungskoeffizienten α_a und α_{poly} bei hohen Temperaturen gut zu sehen ist. Sie zeigen nur eine kleine Anomalie bei 13 K, aber auch kein Maximum bei 50 K, sondern wachsen wie üblich mit steigender Temperatur monoton an.

Die beiden unterschiedlichen Anomalien bei 13 K und 50 K bestimmen die Ausdehnungskoeffizienten von HP-VOPO-Einkristallen entlang der Spinkette wesentlich. Diese Merkmale können später zwei verschiedenen Energieskalen zugeordnet werden, sodass dieses anomale physikalische Verhalten vollständig mithilfe einer dimerisierten $S = 1/2$ AFHK erklärt werden kann.

Weiterhin wurde die spezifische Wärme im Temperaturbereich $T = 2 - 30$ K mit einem AC-Kalorimeter [83, 86] gemessen. In Abbildung 4.6 wird die spezifische Wärme eines HP-VOPO-Einkristalls gezeigt. Wie bei den Ausdehnungskoeffizienten ist an der spezifischen Wärme die Auswirkung der kleinen Energieskala bei einer Temperatur $T \approx 13$ K zu erkennen. Bei tiefen Temperaturen sieht man sowohl die Spinlücke aufgrund des Anregungsverhaltens als auch eine anomale Schulter bei $T \approx 13$ K. Azuma *et al.* erklärten diese Schulter mit der Schottky-Anomalie, die durch die Anwesenheit der Energielücke im magnetischen Anregungsspektrum entsteht.

Die durchgezogene Linie in Abb. 4.6 kennzeichnet die mit der TMRG-Methode berechnete spezifische Wärme. Dazu wurde eine dimerisierte $S = 1/2$ AFHK mit den zuvor aus DFT-

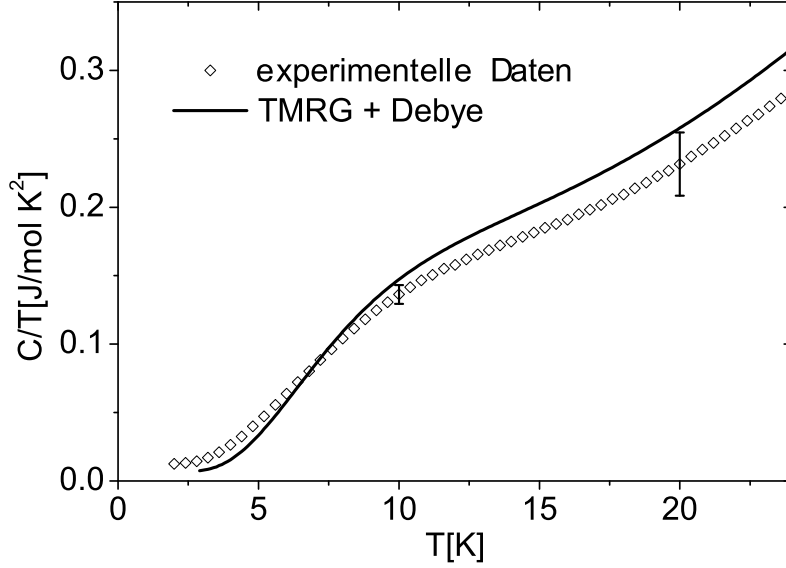


Abbildung 4.6: Die gemessene spezifische Wärme (Rauten) in der Form C/T eines HP-VOPO-Einkristalls der Masse $m = 0.74$ mg. Die durchgezogene Linie entspricht der theoretisch berechneten spezifischen Wärme. Zu den TMRG-Daten wurden die Phononenbeiträge mithilfe des Debye-Modells addiert.

Rechnungen bestimmten Parametern $J_1/k_B = 127$ K und $J_2/k_B = 111$ K implementiert. Bei den TMRG-Rechnungen wurden zwischen 64 und 100 Zustände für die Basis des trunkeierten Hilbertraums und der Trotter-Suzuki-Parameter $\epsilon = 0.025$ verwendet. Demnach ist der Trotter-Suzuki-Fehler von der Größenordnung $\mathcal{O}(\epsilon^2) \approx 10^{-4}$ und der Trunkierungsfehler von der Größenordnung $\mathcal{O} \approx 10^{-7}$. Wenn die spezifische Wärme gemessen wird, so müssen auch die Phononenbeiträge berücksichtigt werden. Die mit der TMRG-Methode berechnete spezifische Wärme entspricht aber nur dem magnetischen Anteil (4.4), sodass der Gitteranteil mithilfe des Debye-Modells addiert werden muss, um diese beiden Datensätze miteinander vergleichen zu können. Die ermittelte Debye-Temperatur ist $\Theta_D = 426$ K. Somit werden sowohl die spezifische Wärme als auch die Ausdehnungskoeffizienten α_i (s. Kap. 4.2.3) gut beschrieben. Die größere Abweichung bei höheren Temperaturen liegt an dem hier verwendeten einfachen Debye-Modell, welches bei höheren Temperaturen die Phononenbeiträge nicht mehr genau genug bestimmt. Allerdings zeigt die theoretisch berechnete spezifische Wärme auch eine Schulter bei $T \approx 13$ K, sodass diese Anomalie eine intrinsische Eigenschaft der dimerisierten $S = 1/2$ AFHK ist. Zusätzliche Kopplungen zwischen den einzelnen dimerisierten $S = 1/2$ AFHK werden demnach nicht benötigt, um die Schulter bei tiefen Temperaturen in der spezifischen Wärme zu erklären. Die TMRG-Rechnungen beweisen also, dass HP-VOPO durch eine dimerisierte $S = 1/2$ AFHK modelliert werden kann und die Kopplungskonstanten mit der DFT-Methode präzise berechnet wurden.

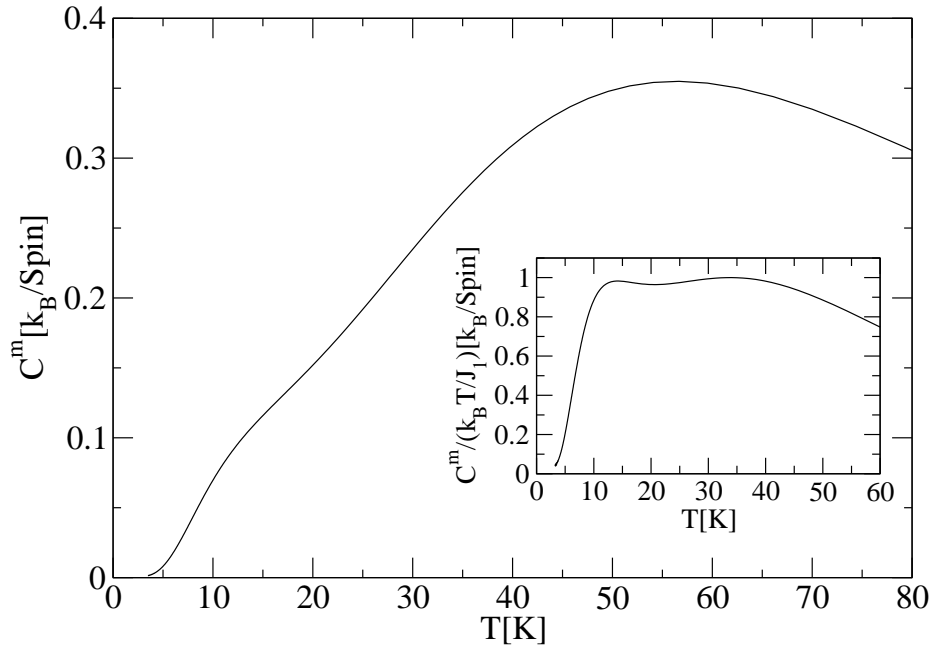


Abbildung 4.7: Die temperaturabhängige magnetische spezifische Wärme C^m einer leicht dimerisierten $S = 1/2$ AFHK. Die beiden Kopplungskonstanten sind $J_1/k_B = 127$ K und $J_2/k_B = 111$ K. Im Inset ist die magnetische spezifische Wärme in der Form $C^m/(k_B T/J_1)$ als Funktion der Temperatur aufgetragen. Beide Kurven wurden mit der TMRG-Methode berechnet.

4.2.3 Zwei verschiedene Energieskalen

Hier werden die Auswirkungen der zwei verschiedenen Energieskalen genauer untersucht, um schließlich die Ausdehnungskoeffizienten mit den Ergebnissen der TMRG-Methode erklären zu können.

Wie im Kapitel 4.1.1 zur Grüneisen-Skalierung erläutert, lassen sich die Ausdehnungskoeffizienten entlang einer Achse durch die Gleichung (4.7) beschreiben. Mit der TMRG-Methode ist es möglich, die Ableitungen $\partial S_0^m/\partial \Delta^*$ und $\partial S_0^m/\partial J_1$ zu berechnen. In Abb. 4.7 ist die magnetische spezifische Wärme C^m als Funktion der Temperatur gezeigt. Da die Relation $C^m = -J_1 \partial S_0^m/\partial J_1$ gilt, kann damit ein Beitrag zum Ausdehnungskoeffizienten direkt mit der TMRG-Methode berechnet werden. In Abb. 4.7 erkennt man ein breites Maximum bei $T \approx 50$ K. Das beschreibt die mit J_1 zusammenhängenden kurzreichweitigen antiferromagnetischen Korrelationen und kennzeichnet erwartungsgemäß die große Energieskala. Weiterhin ist eine kleine Anomalie bei $T \approx 13$ K in Form einer Schulter zu sehen. Betrachtet man allerdings die spezifische Wärme als C^m/T , so ist diese Anomalie als Maximum bei $T \approx 13$ K deutlich zu erkennen (s. Inset von Abb. 4.7). Dieses Maximum ist wiederum eine Folge der Anwesenheit einer Anregungslücke (s. Schottky-Anomalie). Bei $T \approx 40 - 50$ K kann eine weitere Anomalie gesehen werden, die wiederum zur großen Energieskala gehört. Da die Anomalie bei $T \approx 13$ K viel kleiner ist als die zur großen Energieskala gehörende Anomalie und beide das gleiche Vorzeichen haben, kann diese aber nicht die Ursache für den Vorzeichenwechsel und den großen negativen Peak im Ausdehnungskoeffizient entlang der Spinkette α_c sein.

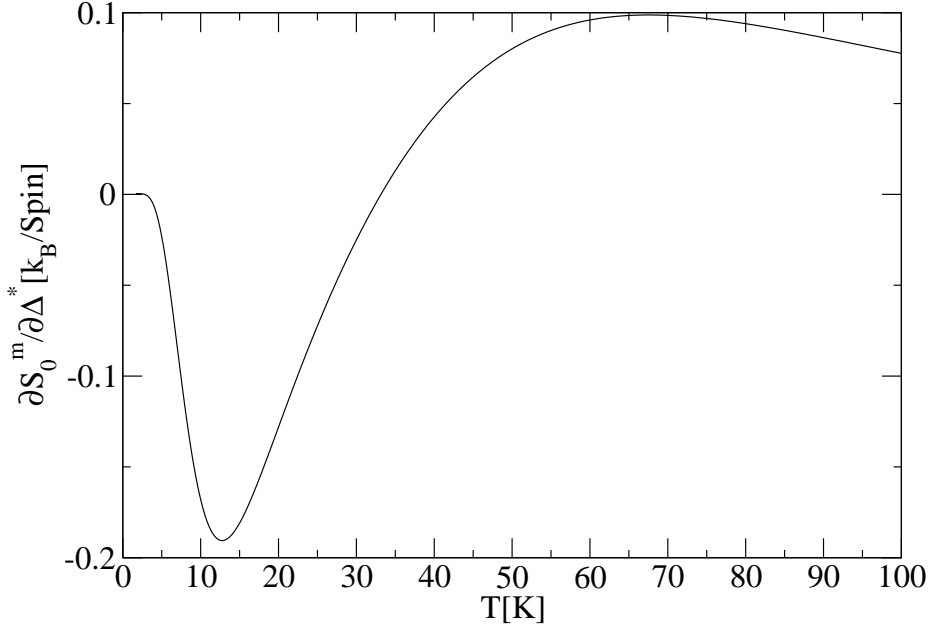


Abbildung 4.8: Die temperaturabhängige Größe $\partial S_0^m/\partial\Delta^*$ einer leicht dimerisierten $S = 1/2$ AFHK. In der TMRG-Methode wurden die beiden Kopplungskonstanten $J_1/k_B = 127$ K und $J_2/k_B = 111$ K verwendet.

Der Grund für den großen negativen Peak in α_c liegt vielmehr am Beitrag $\gamma_i^{\Delta^*} \partial S_0^m/\partial\Delta^*$ zum Ausdehnungskoeffizienten (4.7), der nicht proportional zur spezifischen Wärme ist. Dieser Term ist auch der Grund dafür, dass in dimerisierten $S = 1/2$ AFHK die Grüneisen-Skalierung nicht gültig ist (s. Kap. 4.1.1). Wie die spezifische Wärme lässt sich auch dieser Beitrag $\partial S_0^m/\partial\Delta^*$ zum Ausdehnungskoeffizienten mithilfe der TMRG-Methode berechnen. In Abbildung 4.8 ist ein großer negativer Peak bei einer Temperatur $T \approx 13$ K zu erkennen. Der negative Peak im Ausdehnungskoeffizient entlang der Spinkette α_c kann demnach durch den großen negativen Peak in der Ableitung $\partial S_0^m/\partial\Delta^*$ erklärt werden. Dieser negative Peak ist also eine Auswirkung der **kleinen Energieskala** Δ . Solch ein Verhalten kann übrigens nur in schwach dimerisierten $S = 1/2$ AFHK ($\tilde{\alpha} \gtrsim 0.85$) beobachtet werden, weil dort die beiden Energieskalen klar voneinander getrennt sind. Weiterhin ist in diesem Fall das Minimum der magnetischen Dispersion eng und tief genug, sodass das magnetische Anregungsspektrum durch kleine Änderungen in der Anregungslücke Δ beeinflussbar ist (für Details s. Ref. [83]).

Im Folgenden werden die obigen Ergebnisse der TMRG-Methode verwendet, um einen Fit für die Ausdehnungskoeffizienten (s. Abb. 4.5) mit der Gleichung (4.7) durchzuführen. Als Fit-Parameter dienen hier die Vorfaktoren $\gamma_i^{\Delta^*}$, $\gamma_i^{J_1}$ und γ_i^{ph} , sowie die Debye-Temperatur Θ_D . Die gute Übereinstimmung der experimentellen Daten mit dem Fit bei hohen Temperaturen $T \gtrsim 70$ K bestätigt erneut eine Debye-Temperatur von $\Theta_D = 426$ K. Der Phononenanteil wird damit also gut beschrieben. Im Ausdehnungskoeffizient entlang der Spinkette α_c sind die beiden magnetischen Beiträge allerdings wichtiger. Auch hier können gute Fits erreicht werden. HP-VOPO lässt sich also durch eine schwach dimerisierte $S = 1/2$ AFHK modellieren und zeigt die Relevanz von zwei verschiedenen Energieskalen, die natürlicherweise in dimerisierten $S = 1/2$ AFHK enthalten sind.

5 Das erweiterte Hubbard-Modell

5.1 Das eindimensionale Hubbard-Modell

Das Hubbard-Modell wurde in den Jahren 1959-1963 unabhängig von John Hubbard [87–92], nach dem es auch benannt wurde, sowie Gutzwiller [93] und Kanamori [94] entwickelt. Es ist ein vereinfachtes Modell, um wechselwirkende Elektronen auf einem Gitter, d.h. in einem Festkörper, zu beschreiben. Ein Festkörper besteht aus Ionen und Elektronen in einem dreidimensionalen Kristall. In der Born-Oppenheimer-Näherung [95, 96] bilden die Ionen außerdem ein statisches Gitter. Somit kann die Dynamik der Elektronen durch folgenden Hamiltonoperator beschrieben werden

$$H = \sum_{i=1}^N \left(\frac{\vec{p}_i^2}{2m} + V_I(\vec{x}_i) \right) + \sum_{1 \leq i < j \leq N} V_C(\vec{x}_i - \vec{x}_j), \quad (5.1)$$

wobei N die Anzahl der Elektronen, V_C das Coulomb-Potential und V_I das periodische Ionenpotential ist. Wenn die Fermi-Fläche innerhalb eines Leitungsbands liegt, kann man sich auf die Untersuchung dieses Leitungsbands beschränken. In zweiter Quantisierung nimmt der Hamiltonoperator die folgende Gestalt an

$$H = - \sum_{\substack{i,j \\ \sigma=\uparrow,\downarrow}} t_{ij} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma} + \frac{1}{2} \sum_{\substack{i,j,k,l \\ \sigma,\sigma'=\uparrow,\downarrow}} V_{ijkl} c_{i,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma'}^\dagger c_{l,\sigma'} c_{k,\sigma}. \quad (5.2)$$

Dabei sind $c_{i,\sigma}^\dagger$ bzw. $c_{i,\sigma}$ Erzeuger bzw. Vernichter eines Elektrons am Platz i mit Spin σ , t_{ij} die Hüpfmatrix und V_{ijkl} Wechselwirkungsparameter, die durch Überlappintegrale gegeben sind. Die Gestalt der Wechselwirkungsparameter V_{ijkl} bestimmt das physikalische Verhalten des Modells. Für $V_{i,i,i+1,i+1}$ wird Supraleitung und für $V_{i,i+1,i+1,i}$ ferromagnetisches Verhalten bevorzugt. Das erweiterte Hubbard-Modell (s. Kap. 5.2) erhält man, wenn die Anteile $V_{i,i+1,i+1,i}$ berücksichtigt werden.

Im Tight-Binding-Fall wird zusätzlich nur ein Hüpfen zwischen nächsten Nachbarn gestattet, sodass $t_{ij} = t \cdot \delta_{i,i\pm 1}$ angenommen wird. Wenn außerdem die Reichweite der Wechselwirkung sehr klein ist, wird V_{iiii} dominieren und die Coulomb-WW wird nur am selben Platz wirken. Für eindimensionale Systeme geht der Hamiltonoperator (5.2) so in das eindimensionale Ein-Band-Hubbard-Modell

$$H = -t \sum_{\substack{i=1 \\ \sigma=\uparrow,\downarrow}}^N \left(c_{i,\sigma}^\dagger c_{i+1,\sigma} + c_{i+1,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma} \right) + U \sum_{i=1}^N n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow} \quad (5.3)$$

mit dem Teilchenzahloperator $n_{i,\sigma} = c_{i,\sigma}^\dagger c_{i,\sigma}$ über. Das System zum Hamiltonoperator (5.3) ist halbgefüllt, d.h. auf den N Plätzen befinden sich N von maximal $2N$ Teilchen. Es

gibt für jeden Platz i vier mögliche Zustände: kein Elektron ($|0\rangle$), ein Elektron mit Spin \uparrow ($|\uparrow\rangle$), ein Elektron mit Spin \downarrow ($|\downarrow\rangle$) und zwei Elektronen mit verschiedenen Spins ($|\uparrow\downarrow\rangle$). Die mögliche Anzahl der Elektronen kann mithilfe des chemischen Potentials μ geregelt werden, welches durch den Operator $-\mu \sum_{i=1}^N n_i$ dem Hamiltonoperator (5.3) hinzugefügt werden kann, wobei $n_i = n_{i,\uparrow} + n_{i,\downarrow}$ die Gesamtteilchenzahl ist. Für $\mu = 0$ ist das System halbgefüllt.

Ein großer Vorteil des 1D-Ein-Band-Hubbard-Modells (5.3) ist die Existenz einer exakten Lösung, die mithilfe des Bethe-Ansatzes von E. H. Lieb und F. Wu [97] gezeigt wurde. Demnach können viele physikalische Eigenschaften exakt berechnet werden und somit die Ergebnisse numerischer Methoden, wie der TMRG-Methode, mit den exakten Lösungen eines Modells verglichen werden, um die Güte der numerischen Methode zu bestimmen (s. Kap. 2.2.4).

Weiterhin können die folgenden Grenzfälle des eindimensionalen Ein-Band-Hubbard-Modells leicht gelöst werden:

- Fermigas-Limes:
Im Limes $U = 0$ beschreibt das 1D-Ein-Band-Hubbard-Modell freie Fermionen. Somit ist das System hier ein Metall.
- Atomarer Limes:
Im Limes $t = 0$ ist ein Elektronentransport nicht möglich. Im Grundzustand ist jeder Platz i einfach besetzt. Das System ist hier ein Isolator mit einer Anregungslücke $\Delta = U$.
- Limes starker Wechselwirkung:
Im Grenzfall $U \gg t$ ist das 1D-Ein-Band-Hubbard-Modell äquivalent zum t-J-Modell und bei halber Füllung sogar äquivalent zum antiferromagnetischen Heisenberg-Modell

$$H_{\text{AFHK}} = \frac{4t^2}{U} \sum_{j=1}^L (S_j S_{j+1} - \frac{1}{2}) \quad (5.4)$$

mit einer Kopplungskonstante $J = 4t^2/U$. Dieses System ist ebenfalls ein Isolator.

Anhand dieser Grenzfälle erkennt man die fundamentale Relevanz des eindimensionalen Ein-Band-Hubbard-Modells für die elektronischen Korrelationen. Die Art der Wechselwirkungsparameter beeinflusst, ob das System ein Isolator oder ein Metall ist. Demnach muss es einen Phasenübergang, den sog. Mott-Metall-Isolatorübergang, bei einer kritischen Wechselwirkungsstärke U_c geben. Im eindimensionalen Hubbard-Modell findet diese kritische Kopplung bei $U_c = 0$ statt [98].

5.1.1 Fermi-Statistik in der TMRG

In den nachfolgenden Kapiteln wird die TMRG-Methode auf das erweiterte Hubbard-Modell angewandt. Da es sich bei den Auf- bzw. Absteigeoperatoren ($c_{j,\sigma}^\dagger$ bzw. $c_{j,\sigma}$) um Fermi-Operatoren handelt, sollte diese Eigenschaft in der TMRG-Methode berücksichtigt werden. So wie diese in Kap. 2 eingeführt wurde, kann sie nur Spinoperatoren behandeln. Ohne die Berücksichtigung der fermionischen Eigenschaften können zwar Dichte-

und Spin-Korrelationsfunktionen, sowie thermodynamische Größen (z.B. die freie Energie oder die spezifische Wärme) richtig berechnet werden, dagegen werden z.B. Singlett-Korrelationsfunktionen vollständig falsch berechnet. Zur Lösung des Problems trägt die **Jordan-Wigner-Transformation** (JWT) [99] bei. Sie bildet ein Fermionensystem, wie das Hubbard-Modell, auf ein Spinsystem ab. Die Grundidee ist, die Fermioperatoren $c_{j,\sigma}^{(\dagger)}$, die Antikommutator-Relationen genügen, durch Spinoperatoren zu ersetzen, die auf verschiedenen Gitterplätzen kommutieren. Die Spinoperatoren $S_{j,\sigma}^+$ bzw. $S_{j,\sigma}^-$ erzeugen bzw. vernichten einen Spin $\sigma \in \{\uparrow, \downarrow\}$ am Ort j . Mit den Beziehungen

$$c_{j,\sigma} = K_{j,\sigma} S_{j,\sigma}^- \quad \text{und} \quad c_{j,\sigma}^\dagger = S_{j,\sigma}^+ K_{j,\sigma} \quad (5.5)$$

und den unitären Operatoren

$$K_{j,\uparrow} = e^{i\pi \sum_{i=0}^{j-1} \sum_{\sigma} S_{i,\sigma}^+ S_{i,\sigma}^-} \quad \text{und} \quad K_{j,\downarrow} = e^{i\pi \sum_{i=0}^j \sum_{\sigma} S_{i,\sigma}^+ S_{i,\sigma}^-} \quad (5.6)$$

erfüllen diese Fermioperatoren tatsächlich die Antikommutator-Relationen. Setzt man diese JWT in den Hamiltonoperator des 1D-Hubbard-Modells (5.3) ein, so verändern sich die Hüpfsterme, während sich die Teilchenzahloperatoren kanonisch transformieren [100]:

$$c_{i+1,\uparrow}^\dagger c_{i,\uparrow} \longrightarrow (-1)^{n_{i,\downarrow}} S_{i+1,\uparrow}^+ S_{i,\uparrow}^- \quad (5.7)$$

$$c_{i+1,\downarrow}^\dagger c_{i,\downarrow} \longrightarrow (-1)^{n_{i+1,\uparrow}} S_{i+1,\downarrow}^+ S_{i,\downarrow}^- \quad (5.8)$$

$$n_{i,\sigma} \longrightarrow S_{i,\sigma}^+ S_{i,\sigma}^- \quad (5.9)$$

Diese Transformationen müssen nun noch in die Erwartungswerte physikalischer Größen und in alle benötigten Korrelationsfunktionen (s. Gln. (2.16), (2.19) und (2.20)) eingesetzt werden, sodass auch dort möglicherweise zusätzliche Minuszeichen eingefügt werden müssen.

5.2 Das erweiterte Hubbard-Modell

Eines der Hauptanwendungsgebiete der Festkörperphysik stark korrelierter Elektronen ist die Untersuchung von Phasenübergängen (PÜ). Das eindimensionale erweiterte Hubbard-Modell (EHM) wird demzufolge schon seit vielen Jahren wegen des vielfältigen Phasendiagramms untersucht. Außerdem ist es ein nützliches Modell zur Beschreibung eindimensionaler Materialien, wie organisch-leitende kristalline Salze [101], leitende Polymere [102] und Kuprate, die zu den Hoch-Temperatur-Supraleitern [103] gehören. Obwohl das EHM schon seit mehr als zwei Jahrzehnten untersucht wird [104], wird das Phasendiagramm in der Literatur immer noch kontrovers diskutiert [105–122].

In dieser Arbeit wird erneut das Phasendiagramm des halbgefüllten erweiterten Hubbard-Modells untersucht. Dazu werden thermodynamische Größen, wie die magnetische Suszeptibilität und die isotherme Kompressibilität betrachtet. Außerdem können die verschiedenen Phasen mit verschiedensten Korrelationsfunktionen genauer charakterisiert werden.

Der Hamiltonoperator des erweiterten Hubbard-Modells lautet

$$\begin{aligned} H = & - t \sum_{j,\sigma} \left(c_{j,\sigma}^\dagger c_{j+1,\sigma} + h.c. \right) + U \sum_j \left(n_{j,\uparrow} - \frac{1}{2} \right) \left(n_{j,\downarrow} - \frac{1}{2} \right) \\ & + V \sum_j (n_j - 1)(n_{j+1} - 1) - \frac{h}{2} \sum_j (n_{j,\uparrow} - n_{j,\downarrow}) - \mu \sum_j n_j . \end{aligned} \quad (5.10)$$

Hier ist $c_{j,\sigma}^\dagger$ bzw. $c_{j,\sigma}$ der Erzeuger bzw. Vernichter eines Elektrons mit Spin $\sigma = \uparrow, \downarrow$ am Ort j , sowie $n_{j,\sigma} = c_{j,\sigma}^\dagger c_{j,\sigma}$ der Teilchenzahloperator für Teilchen mit Spin σ und $n_j = n_{j\uparrow} + n_{j\downarrow}$ der totale Teilchenzahloperator. t ist die Amplitude für das Hüpfen der Elektronen zwischen nächsten Nachbarn, $U \geq 0$ die Coulomb-Abstoßung am selben Platz und $V \geq 0$ die Nächste-Nachbar-Coulomb-Abstoßung.

Ein in der Literatur lange Zeit gängiger PÜ sieht wie folgt aus: Im Grenzfall starker Kopplung $U, V \gg t$ gibt es zwei verschiedene Grundzustände, die schon durch eine einfache Energiebetrachtung charakterisiert werden können. Für $U < 2V$ ist das System ein Isolator mit einer langreichweitigen Ordnung in der Ladungsdichtewelle (CDW)¹, wobei für $U > 2V$ das System eine quasi-langreichweitige Ordnung in der Spindichtewelle (SDW) zeigt. Dazwischen gibt es im Bereich starker Kopplung einen PÜ erster Ordnung [105, 109, 123]. Im Bereich schwacher Kopplung $U, V \ll t$ kann das EHM mittels Bosonisierung und *g-ologie* untersucht werden [112, 124]. Es wird wieder ein PÜ zwischen der SDW- und CDW-Phase bei $U = 2V$ gefunden. Im Spin-Sektor wird der PÜ durch einen Operator beschrieben, der in der SDW-Phase marginal irrelevant und in der CDW-Phase marginal relevant ist. Demnach öffnet sich die Spinlücke exponentiell langsam und der PÜ ist vom Kosterlitz-Thouless-Typ (KT) [112, 125–127]. Im Ladungssektor dagegen führt ein relevanter Operator zu einer Ladungslücke. Der Operator verschwindet nur für $U = 2V$, sodass genau dort die Ladungslücke gleich null ist [112]. Der PÜ ist ein PÜ zweiter Ordnung. Da es auf der Linie $U = 2V$ sowohl einen PÜ 1. Ordnung als auch einen PÜ 2. Ordnung gibt, muss ein trikritischer Punkt (U_t, V_t) existieren, an dem sich die Ordnung des PÜ ändert.

Dieser trikritischer Punkt wird in der Literatur auch als bikritischer Punkt (s. z.B. [120]) bzw. multikritischer Punkt (s. z.B. [114]) bezeichnet. Wie in Anhang B beschrieben, handelt es sich hier aber immer um einen trikritischen Punkt, sodass im Folgenden immer von einem trikritischen Punkt gesprochen wird, unabhängig von den in den zitierten Arbeiten gewählten Bezeichnungen. Grundlegende Erläuterungen zu PÜ finden sich ebenfalls in Anhang B.

In den letzten Jahren hat sich allerdings herausgestellt, dass das obige Phasendiagramm noch nicht vollständig ist. Im Bereich schwacher Kopplung hat Nakamura als erster gezeigt [111, 112], dass es keine Symmetrie gibt, die es erforderlich macht, dass der PÜ im Spin- und im Ladungssektor auf derselben $U = 2V$ -Linie liegt. In der normalen *g-ologie* sind die Amplituden der Operatoren, die für den PÜ verantwortlich sind, identisch, weil sie nur bis zur ersten Ordnung in den Wechselwirkungsparametern berechnet wurden. Sie könnten sich aber unterscheiden, wenn Terme höherer Ordnung berücksichtigt würden. Demnach gibt es die Möglichkeit, dass es eine zusätzliche Phase gibt, die sich zwischen der SDW- und der CDW-Phase befindet. Tatsächlich hat Nakamura dazwischen eine Phase mit langreichweitiger Dimer-Ordnung gefunden. Dazu hat er einige Skalendimensionen zu kritischen Exponenten von bestimmten Korrelationsfunktionen bestimmt, indem er eine finite-size-Analyse der Energiespektren durchgeführt hat. Diese Phase wird häufig BOW-Phase² genannt. Die Existenz einer BOW-Phase um $U = 2V$ im Bereich schwacher Kopplung bis zu einem trikritischen Punkt (U_t, V_t) wurden durch Quanten-Monte-Carlo-Simulationen [114] (QMC) und *g-ologie*-Rechnungen mit Termen höherer Ordnung [113] bekräftigt. Das Phasendiagramm der QMC-Simulation ist in Abb. 5.1 zu sehen. Allerdings wurde solch eine Phase

¹englisch: charge density wave

²englisch: bond order wave

in einer späteren DMRG-Rechnung [115] nur oberhalb eines trikritischen Punkts und genau auf der ersten Ordnung PÜ-Linie ($U = 2V$) gefunden (s. Abb. 5.2). Dagegen bestätigen neuere DMRG-Rechnungen [120] wiederum das vorgeschlagene Phasendiagramm von Nakamura. Weitere Beweise für die Existenz der BOW-Phase im Bereich schwacher Kopplung liefern auch Funktional-Renormierungsgruppen-Analysen [121]. QMC-Rechnungen [119] und DMRG-Rechnungen [122] liefern aber auch noch ein weiteres mögliches Phasendiagramm, in dem das Ende der BOW-Phase nicht mit dem trikritischen Punkt (U_t, V_t) zusammenfällt, sondern die BOW-Phase auch oberhalb des trikritischen Punkts existiert und erst an einem weiteren kritischen Punkt endet (s. Abb. 5.3).

Aufgrund dieser qualitativ und quantitativ unterschiedlichen Phasendiagramme wird in dieser Arbeit das Phasendiagramm nochmals untersucht. Mit der TMRG-Methode können thermodynamische Größen, wie z.B. magnetische Suszeptibilitäten, im thermodynamischen Limes berechnet werden. Dadurch wird keine finite-size-Analyse wie bei der DMRG- oder der QMC-Methode benötigt. Lediglich eine Extrapolation zu $T = 0$ sollte stellenweise durchgeführt werden, die allerdings in diesem Fall unproblematisch ist.

Im Kapitel 2.2.4 ist die TMRG-Methode auf das eindimensionale Hubbard-Modell ($V = 0$) angewandt worden. Es konnte gezeigt werden, dass die Ergebnisse der TMRG-Methode mit den exakten Bethe-Ansatz-Ergebnissen übereinstimmen. Da die Existenz einer zusätzlichen Nächste-Nachbar-Coulomb-Wechselwirkung V keine Auswirkung auf die TMRG-Methode hat, werden Ergebnisse der gleichen Qualität erwartet. In diesem Kapitel wurde ein Trotter-Suzuki-Parameter $\epsilon = 0.025$ oder 0.05 benutzt, sodass der zugehörige Fehler nur von der Größenordnung $10^{-4} - 10^{-3}$ ist. Ein Trunkierungsfehler wird bei den unterschiedlichen thermodynamischen Größen vermieden, weil die Basis des trunkierten Hilbertraums aus $N = 200$ bis $N = 400$ Zuständen besteht. Nun wird das Phasendiagramm des erweiterten Hubbard-Modells untersucht. Dazu werden die Bereiche starker und schwacher Kopplung betrachtet, sowie die genaue Lage des trikritischen Punkts ermittelt. Außerdem wird die Existenz der langreichweitigen Dimer-Ordnung (BOW-Phase) unterhalb des trikritischen Punkts gezeigt.

5.2.1 Der Bereich starker Kopplung

Die Grundzustandsenergie des EHM (5.10) kann im Bereich starker Kopplung, $U, V \gg t$, in Termen des Hüpfparameters t entwickelt werden. In niedrigster Ordnung Störungsrechnung können die Hüpfsterme sogar vollständig vernachlässigt werden. Ohne angelegtes Magnetfeld erhält man bei halber Füllung ($\mu = 0$) den ungestörten Hamiltonoperator:

$$H^{(0)} = U \sum_j \left(n_{j,\uparrow} - \frac{1}{2} \right) \left(n_{j,\downarrow} - \frac{1}{2} \right) + V \sum_j (n_j - 1)(n_{j+1} - 1). \quad (5.11)$$

Dieser hat zwei verschiedene Grundzustände, die in Abb. 5.4 abgebildet sind. Bei gegebener Kettenlänge L ist die Energie des CDW-Zustands durch $E_{\text{CDW}}^{(0)} = LU/4 - LV$ und die Energie der SDW-Zustands durch $E_{\text{SDW}}^{(0)} = -LU/4$ gegeben. Beide Energien sind genau bei $\mathbf{U} = 2\mathbf{V}$ gleich, sodass dort ein PÜ erster Ordnung existiert. Für $U < 2V$ ist $E_{\text{SDW}}^{(0)} < E_{\text{CDW}}^{(0)}$, sodass das System in der SDW-Phase ist. Dagegen gilt $E_{\text{SDW}}^{(0)} > E_{\text{CDW}}^{(0)}$ für $U > 2V$ und das System bevorzugt die CDW-Phase. In zweiter Ordnung Störungsrechnung in Termen des Hüpfparameters t führen virtuelle Hüpfprozesse zu einem effektiven antiferromagnetischen Heisenberg-Modell in der SDW-Phase. Die Kopplungskonstante

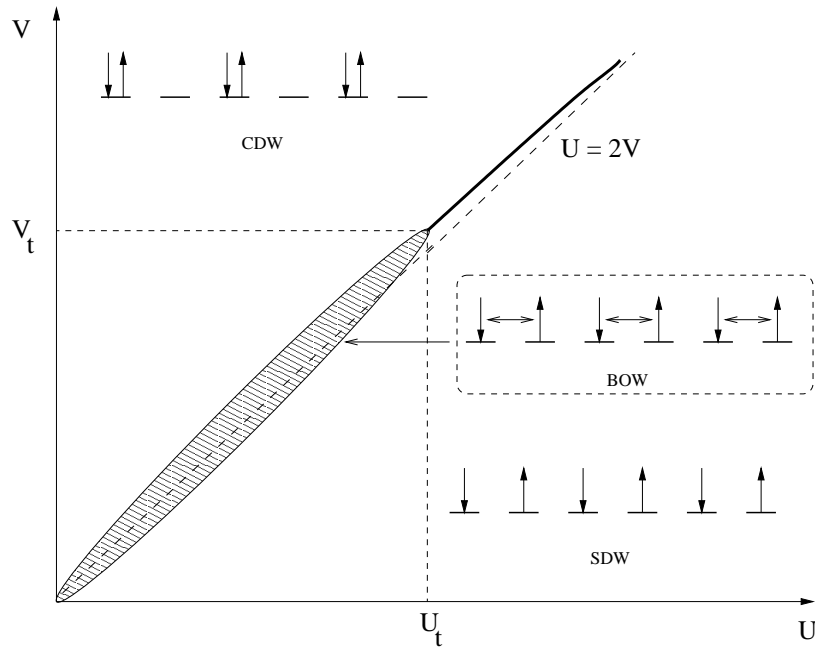


Abbildung 5.1: Schematisches Phasendiagramm des EHM nach QMC-Simulationen. Der trikritische Punkt liegt bei $(U_t/t, V_t/t) = (4.7 \pm 0.1, 2.51 \pm 0.04)$. Diese Abbildung wurde Ref. [114] entnommen.

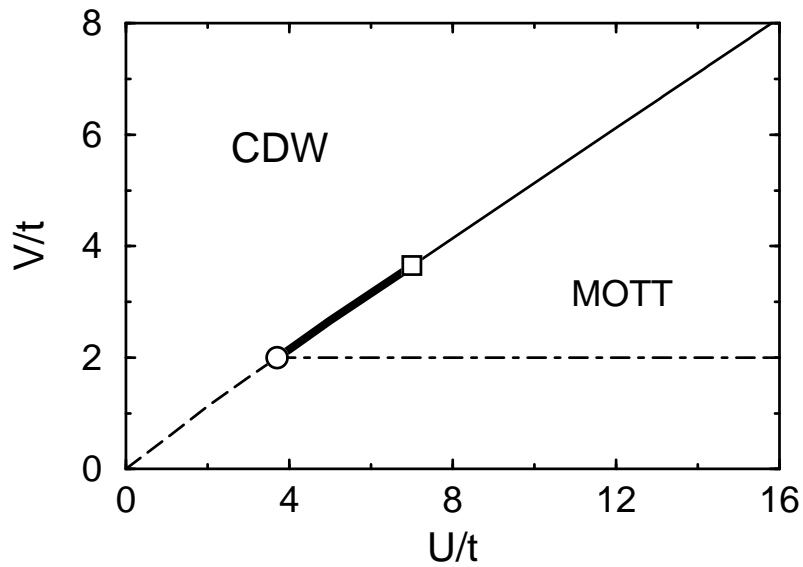


Abbildung 5.2: Schematisches Phasendiagramm des EHM nach DMRG-Rechnungen. Der PÜ ist vom KT-Typ bei schwacher Kopplung (gestrichelte Linie) und erster Ordnung bei starker Kopplung (Linie). Der Kreis bezeichnet den trikritischen Punkt. Die CDW-Phase existiert nur direkt auf der CDW-SDW-Übergangslinie und beginnt bei $(U_t, V_t) \approx (3.7t, 2t)$ und endet bei $U \lesssim 8t$ (Quadrat). Diese Abbildung wurde Ref. [115] entnommen.

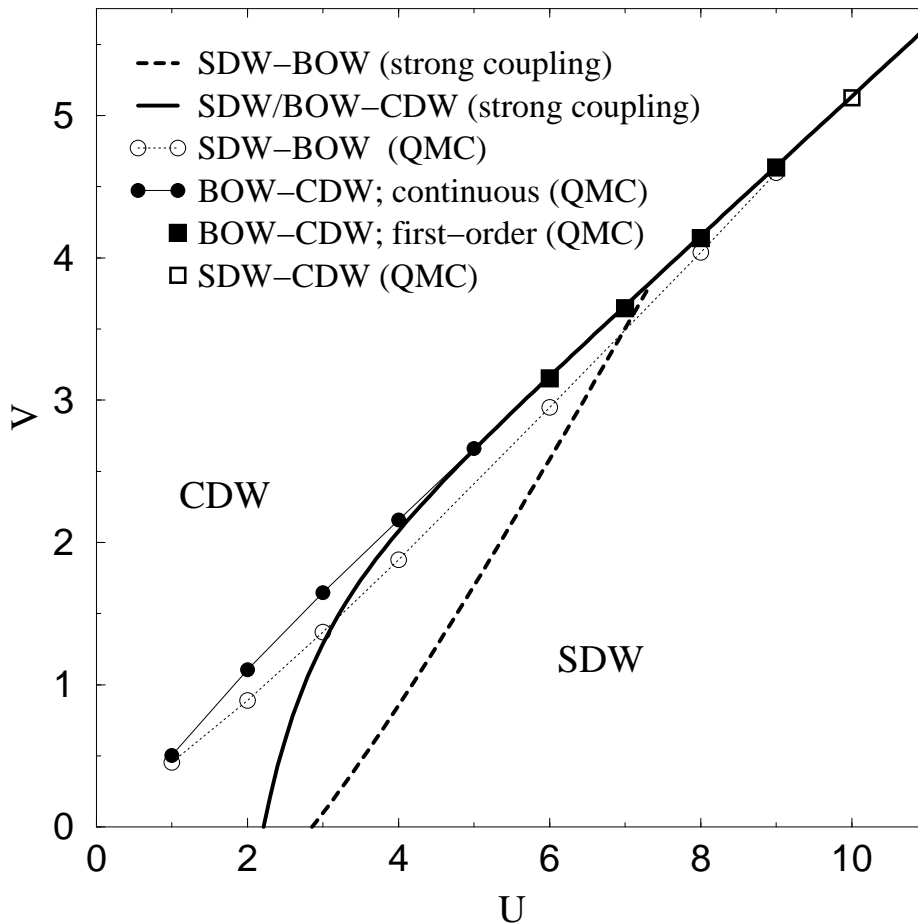


Abbildung 5.3: Das Phasendiagramm nach QMC und nach Näherungen im Bereich starker Kopplung. Die BOW-Phase liegt zwischen den PÜ-Linien SDW-BOW und BOW-CDW. Auf der PÜ-Linie BOW-CDW kennzeichnen die ausgefüllten Kreise einen PÜ zweiter Ordnung und die ausgefüllten Quadrate einen PÜ erster Ordnung. Ein trikritischer Punkt befindet sich demnach bei $U \approx 5.5$. Der zweite trikritische Punkt, an dem die BOW-Phase endet, wird durch ein nicht ausgefülltes Quadrat gekennzeichnet. Diese Abbildung wurde Ref. [119] entnommen.

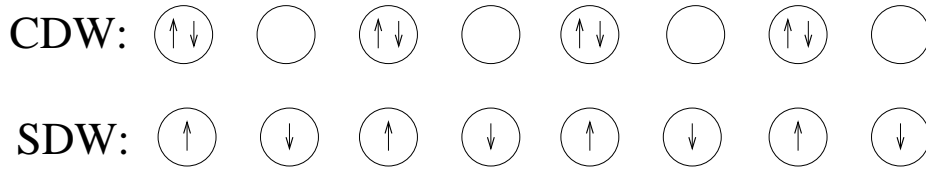


Abbildung 5.4: Die zwei Grundzustände im Bereich starker Kopplung ($U, V \gg t$). Der obere Zustand ist ein CDW-Zustand, bei dem die Plätze alternierend unbesetzt und doppelbesetzt sind. Der untere Zustand ist ein einfachbesetzter SDW-Zustand. Virtuelle Hüpfprozesse induzieren eine quasi-langreichweitige SDW-Ordnung.

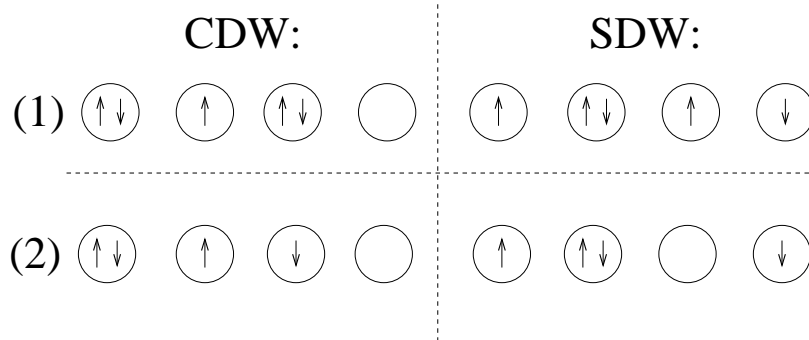


Abbildung 5.5: Linke Spalte: (1) CDW-Zustand mit zugefügtem Teilchen, (2) CDW-Zustand mit aufgebrochener Doppelbesetzung. Rechte Spalte: (1) SDW-Zustand mit zugefügtem Teilchen, (2) SDW-Zustand mit einer Doppelbesetzung.

für die Wechselwirkung zwischen den Spins beträgt $J = 2t^2/(U - V)$ [105, 109]. Dieser Zustand hat demnach eine Ladungslücke aber keine Spinlücke und die zugehörigen Spin-Korrelationsfunktionen zerfallen algebraisch. Andererseits hat der CDW-Zustand sowohl eine Ladungslücke als auch eine Spinlücke. Wenn die Hüpfsterme vernachlässigt werden, können angeregte Zustände in der CDW- und SDW-Phase durch Ladungs- und Spinanregungen gebildet werden. Eine Ladungsanregung kann z.B durch Hinzufügen bzw. Entfernen eines Teilchens realisiert werden. Dagegen kann eine Spinanregung erzeugt werden, indem eine Doppelbesetzung aufgebrochen wird. Einige Anregungen für die SDW- und CDW-Zustände sind in Abb. 5.5 dargestellt. In niedrigster Ordnung Störungsrechnung lassen sich die Energien der angeregten Zustände aus Abb. 5.5 für die angeregten CDW-Zustände zu $E_{CDW}^1 = E_{CDW}^{(0)} - U/2 + 2V$ und $E_{CDW}^2 = E_{CDW}^{(0)} - U + 3V$, sowie für die angeregten SDW-Zustände zu $E_{SDW}^1 = E_{SDW}^{(0)} + U/2$ und $E_{SDW}^2 = E_{SDW}^{(0)} + U - V > E_{SDW}^1$ berechnen. Wenn in der CDW-Phase im angeregten Zustand (2) (s. Abb. 5.5) die beiden Einzelspins

separiert werden, erhält man die Anregungsenergie $E_{CDW}^{(0)} + 2(-U/2 + 2V)$. In thermodynamischen Größen wird das Aktivierungsverhalten durch die Energie einer einzelnen Anregung bestimmt. Dabei ist es irrelevant, ob diese Anregung paarweise oder einzeln auftritt. Also trägt jeder Einzelspin die Energie $-U/2 + 2V$ bei. Demnach wird im Bereich starker Kopplung die Ladungslücke Δ_c und die Spinlücke Δ_s (beide aus thermodynamischen Daten berechnet) genau auf der Phasenübergangslinie ($U = 2V$) gleich $\Delta_s = \Delta_c = U/2$ sein und dann linear $\sim 2V$ mit steigendem V in der CDW-Phase anwachsen. In der SDW-Phase ist die Anregung (1) aus Abb. 5.5 eine Ladungsanregung mit kleinerer Anregungsenergie als bei Anregung (2). Die Ladungslücke beträgt also $\Delta_c = U/2$ in der SDW-Phase. Allerdings gibt es in der SDW-Phase keine Spinlücke.

Im Folgenden wird wie in Kapitel 2.2.4 die Hüpfamplitude $t = 1$ gesetzt. Um die t -abhängigen Ausdrücke zu bekommen, sollten wieder die folgenden Umrechnungen $U \rightarrow U/t$, $V \rightarrow V/t$ und $T \rightarrow T/t$ verwendet werden. Die TMRG-Daten zur Spinsuszeptibilität χ_s und zur Spinlücke Δ_s bei $U = 12$ (eigentlich $U = 12t$, aber $t = 1$ gesetzt) werden in Abb. 5.6 gezeigt. Wenn das Anregungsspektrum eine Anregungslücke hat, dann wird die Energiedispersion der elementaren Anregungen durch $\epsilon(k) \sim \Delta + k^2/(2m)$ beschrieben, wobei m eine effektive Masse ist. Daraufhin zeigt die zugehörige Suszeptibilität für Temperaturen $T \ll \Delta$ folgendes Aktivierungsverhalten

$$\chi(T) \sim \frac{\exp(-\Delta/T)}{\sqrt{T}}. \quad (5.12)$$

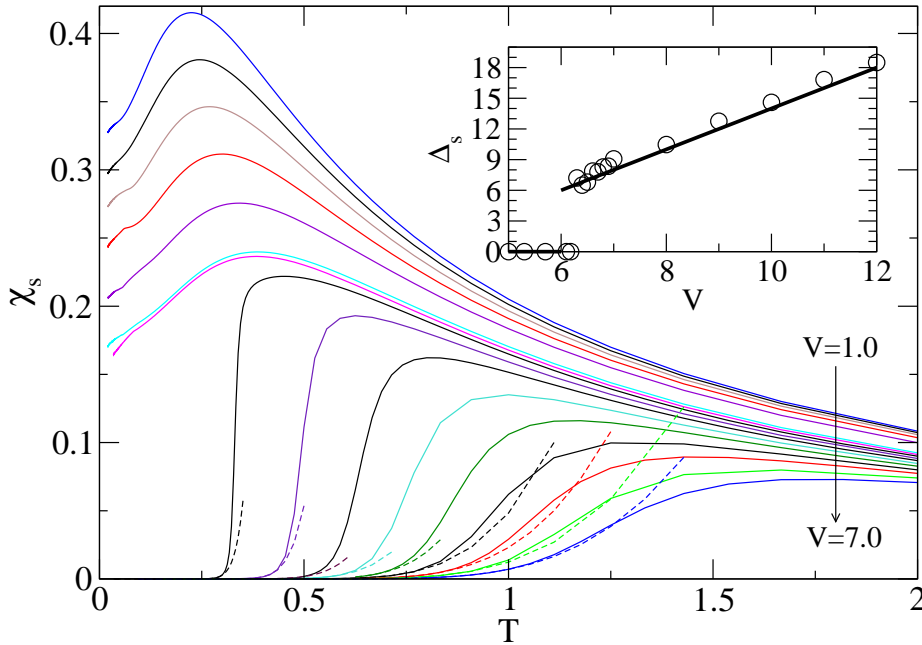


Abbildung 5.6: Magnetische Suszeptibilitäten (Linien) als Funktion der Temperatur T bei $U = 12$ für verschiedene $V = 1.0, 2.0, \dots, 6.0, 6.1, 6.2, \dots, 7.0$. Die gestrichelten Linien sind Fits nach Gl. (5.12). Im Inset ist die aus den Fits bestimmte Spinlücke Δ_s (Kreise) als Funktion von V dargestellt. Die Linie im Inset zeigt das theoretische Ergebnis im Bereich starker Kopplung.

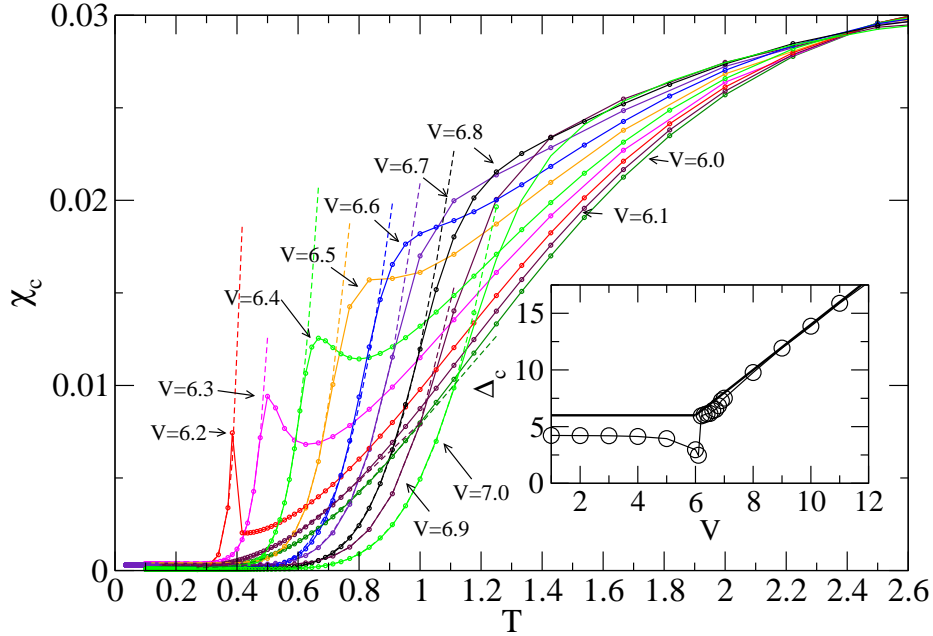


Abbildung 5.7: Ladungssuszeptibilitäten (Kreise) als Funktion der Temperatur T bei $U = 12$ für verschiedene $V = 6.0, 6.1, \dots, 7.0$. Die Linien sind nur Verbindungslinien zwischen den Datenpunkten, um die Erkennbarkeit zu erhöhen. Die gestrichelten Linien sind Fits nach Gl. (5.12). Im Inset ist die aus den Fits bestimmte Ladungslücke Δ_c als Funktion von V dargestellt. Die Linie im Inset zeigt das theoretische Ergebnis im Bereich starker Kopplung.

Diese Funktion kann nun als Fit-Funktion für die Suszeptibilitätsdaten aus der TMRG verwendet werden, um die zugehörige Anregungslücke zu bestimmen. Wie im Inset der Abb. 5.6 zu sehen, stimmt das Verhalten der Anregungslücke Δ_s als Funktion von V sehr gut mit den Ergebnissen aus der Störungsrechnung zum Bereich starker Kopplung überein. In der SDW-Phase gibt es keine Spinlücke, d.h. die Suszeptibilität bleibt für $T \rightarrow 0$ endlich und zeigt kein Anregungsverhalten nach Gl. 5.12 (s. Abb. 5.6). Allerdings gibt es eine Spinlücke in der CDW-Phase. Beim PÜ springt die Spinlücke auf $\Delta_s \approx U/2$ und steigt dann proportional zu $2V$ an. Demnach befindet man sich bei $U = 12$, zumindest für das Verhalten der Spinlücke, schon im Bereich starker Kopplung. Die einzige Abweichung der TMRG-Daten zu den Ergebnissen aus der Störungsrechnung ist, dass der PÜ nicht bei $V = U/2 = 6$ sondern erst bei $V = 6.18 \pm 0.001$ stattfindet. Für größere U -Werte, z.B. $U = 150$, findet der PÜ allerdings tatsächlich bei $U/2$ statt. In Abbildung 5.7 werden die TMRG-Ergebnisse zur Ladungssuszeptibilität χ_c und zur Ladungslücke Δ_c bei $U = 12$ gezeigt. Wie die Spinlücke bei $U = 12$ wird auch die Ladungslücke bei $U = 12$ schon gut durch die Ergebnisse der Störungsrechnung im Bereich starker Kopplung beschrieben. Allerdings weichen hier die Werte für die Ladungslücken in der SDW-Phase ein wenig vom berechneten Wert $\Delta_c = U/2$ ab und sind außerdem noch von V abhängig. Das ist ein Anzeichen dafür, dass $U = 12$ noch nicht groß genug ist, um den Bereich starker Kopplung in nullter Ordnung Störungsrechnung zu beschreiben.

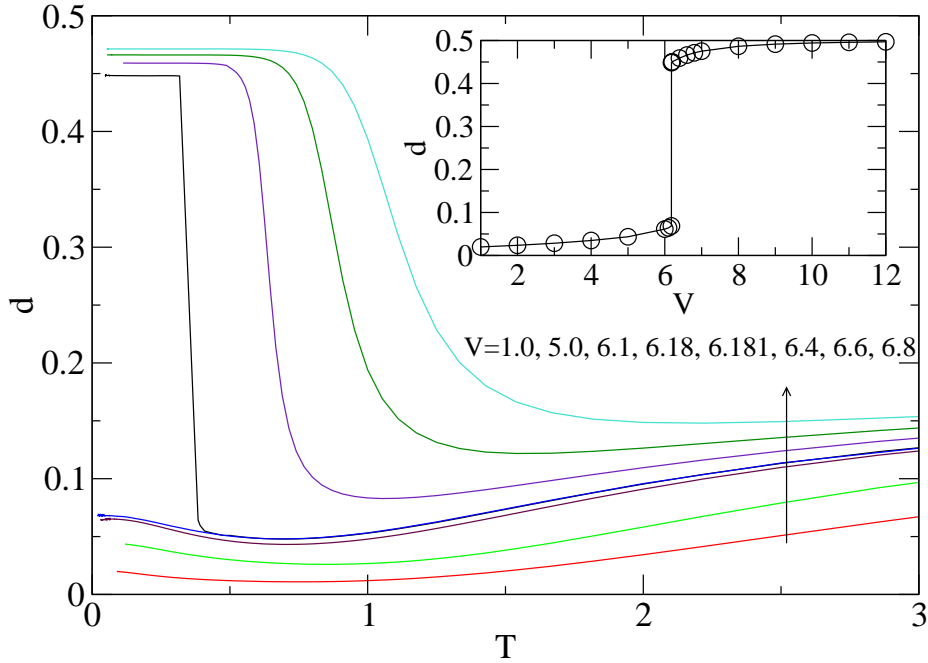


Abbildung 5.8: Die Doppelbesetzung d in Abhängigkeit der Temperatur T bei $U = 12$ für verschiedene V -Werte. Im Inset sind die extrapolierten Ergebnisse der Doppelbesetzung bei $T = 0$ in Abhängigkeit von V dargestellt.

Zusätzlich zur Spin- und zur Ladungslücke kann die Doppelbesetzung

$$d = \langle n_{j,\uparrow} n_{j,\downarrow} \rangle \quad (5.13)$$

untersucht werden, um die Lage des PÜ erster Ordnung zu bestimmen. Im Bereich starker Kopplung sollte die Doppelbesetzung d bei $T = 0$ im SDW-Zustand $d = 0$ und im CDW-Zustand $d = 1/2$ sein. In der Abbildung 5.8 ist die Doppelbesetzung d bei $U = 12$ zu verschiedenen V -Kopplungsstärken gezeigt. Wie auch für die Ladungslücke sind schon einige Korrekturen im Vergleich zu den erwarteten Ergebnissen zu erkennen. Schließlich ist die Doppelbesetzung in der SDW-Phase größer null und steigt mit wachsendem V monoton an. Allerdings erkennt man den Sprung, d.h. den PÜ erster Ordnung, in der Doppelbesetzung d bei $V \approx 6.18$ sehr gut. In der CDW-Phase steigt die Doppelbesetzung wiederum mit wachsendem V monoton an, bis endgültig für große V der Wert $d = 1/2$ erreicht wird. Für größere U -Werte ist das erwartete Ergebnis noch viel besser zu erkennen. In Abb. 5.10d wird die Größe des Sprungs in der Doppelbesetzung Δ_d in Abhängigkeit von U gezeigt. Es ist gut zu erkennen, dass sich die Größe des Sprungs für große U dem Wert $1/2$ nähert. Demzufolge ist bei $T = 0$ in der SDW-Phase $d = 0$ und in der CDW-Phase $d = 1/2$.

In Abbildung 5.9 wird die spezifische Wärme bei $U = 12$ zu verschiedenen V -Werten gezeigt. Für $V = 0$ hat sie zwei Maxima. Während das Maximum bei tieferer Temperatur eine Folge der Spinanregungen ist, ist das Maximum bei höherer Temperatur eine Folge der Ladungsanregungen [128]. Nur bei tiefen Temperaturen liefern die lückenlosen Spinanregungen Beiträge zur spezifischen Wärme, die der konformen Feldtheorie (CFT)³ entsprechend

³englisch: conformal field theory

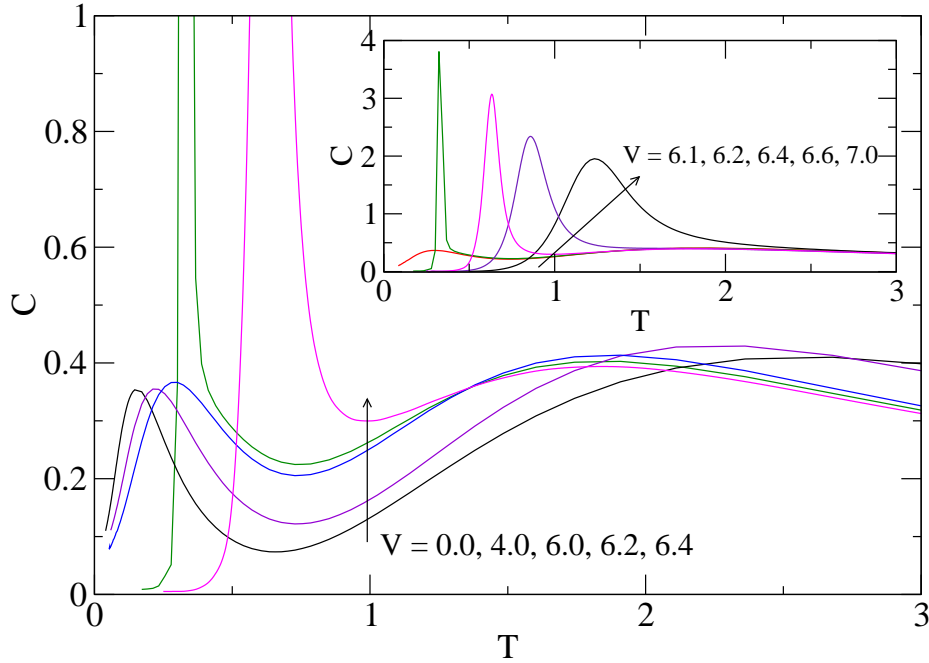


Abbildung 5.9: Die Spezifische Wärme in Abhängigkeit der Temperatur T bei $U = 12$ für verschiedene V -Werte. Im Inset erkennt man gut den scharfen Peak direkt oberhalb des PÜ.

dem Ausdruck

$$C = \frac{\pi}{3v_s} T \quad (5.14)$$

genügen. Außerdem soll die Spinwellengeschwindigkeit v_s mit wachsendem V ansteigen. Dementsprechend nimmt mit wachsendem V die Steigung der spezifischen Wärme ab und das zugehörige Maximum wird zu höheren Temperaturen verschoben. Gleichzeitig nimmt aber auch die Ladungslücke ab, sodass dieses Maximum zu tieferen Temperaturen verschoben wird (s. Abb. 5.9). Allerdings haben in der CDW-Phase ($V > V_c \approx 6.18$) sowohl die Spinanregungen als auch die Ladungsanregungen eine Anregungslücke. Dadurch wird sich dieses Verhalten nach dem PÜ (SDW-CDW) gravierend ändern. In Abbildung 5.9 ist das sehr gut durch den plötzlich auftretenden Peak direkt oberhalb der Anregungslücke zu erkennen. Da nun in der CDW-Phase beide Anregungen eine Anregungslücke haben, zeigt die spezifische Wärme das Aktivierungsverhalten

$$C \sim e^{-\Delta/T} \quad (5.15)$$

mit $\Delta = \min(\Delta_s, \Delta_c)$. Aus der Thermodynamik ist bekannt, dass $\int_0^\infty C(T) dT = -e_0$ gilt, wobei e_0 die Grundzustandsenergie ist. Deswegen sollte die Fläche unter der Kurve, die die spezifische Wärme beschreibt, für kleine Änderungen in V konstant bleiben. Demzufolge sollte die Fläche gleich sein, egal ob man einen V -Wert, z.B. $V = 6.1$, knapp unterhalb des PÜ in der SDW-Phase oder einen V -Wert, z.B. $V = 6.2$, knapp oberhalb des PÜ in der CDW-Phase wählt. Außerdem wird sich das Hochtemperaturverhalten der spezifischen Wärme nicht verändern, sodass nur eine Änderung im Tieftemperaturverhalten zu erwarten

ist. Demnach muss die Fläche bei tiefen Temperaturen, die aufgrund des Aktivierungsverhaltens (5.15) unterdrückt wird, einen scharfen Peak direkt oberhalb der Anregungslücke bilden (s. Abb. 5.9). Das ist also eine weitere Möglichkeit die Lage des PÜ mit thermodynamischen Größen zu bestimmen. Innerhalb der CDW-Phase erkennt man wiederum, dass das Maximum der Spinanregungen mit steigendem V -Wert zu höheren Temperaturen verschoben wird. Bei großen V -Werten überlagern sich schließlich beide Maxima, sodass sie nicht mehr voneinander unterschieden werden können.

5.2.2 Der trikritische Punkt

Da es im Bereich starker Kopplung ein PÜ erster Ordnung und im Bereich schwacher Kopplung ein PÜ zweiter Ordnung gibt, ist es klar, dass die Linie des PÜ erster Ordnung an einem Punkt, dem sog. **trikritischen Punkt** (U_t, V_t) , enden muss. Die Doppelbesetzung d ist ein gutes Kriterium, um diesen Endpunkt mit der TMRG-Methode zu bestimmen. Wie bei $U = 12$ (s. Abb. 5.8) zu erkennen, verhält sich die Doppelbesetzung in der SDW- und in der CDW-Phase sehr unterschiedlich. Die nach $T = 0$ extrapolierte Doppelbesetzung zeigt bei festem U einen Sprung Δ_d in Abhängigkeit von V , solange der PÜ ein PÜ erster Ordnung ist. Demnach erwartet man, dass die Größe des Sprungs kleiner wird, je kleiner die Kopplung U wird. Schließlich muss der Sprung am trikritischen Punkt U_t verschwinden. Mit der TMRG-Methode können diese Werte berechnet werden. Für $U = 7.0$ kann bei $V \approx 3.65$ immer noch ein endlicher Sprung der Höhe ~ 0.17 (s. Abb. 5.10c) festgestellt werden, wobei für $U = 6$ (s. Abb. 5.10b) die Doppelbesetzung als Funktion von V bereits kontinuierlich aussieht. Für $U = 4$ ist der kontinuierliche PÜ besonders gut zu erkennen (s. Abb. 5.10a). In Abb. 5.10d ist der Sprung Δ_d als Funktion von U zu sehen. Man erkennt leicht, dass der Sprung mit fallendem U algebraisch ($\Delta_d \sim (U - U_t)^a$) mit einem kritischen Exponenten a abfällt. Verwendet man diese Funktion als Fitfunktion, so kann der trikritische Punkt zu 6.7 ± 0.2 bestimmt werden. Der große Fehler von ± 0.2 stammt aus verschiedenen Fits. Zum einen hat der Wert bei $U = 7$ vermutlich einen großen Fehler, so dass man einen Fit ohne diesen Werte durchführen sollte. Genauso sollte man auch einen Fit durchführen, der große U -Werte nicht berücksichtigt. Für jeden einzelnen möglichen U_t -Wert kann der zugehörige V_t -Wert natürlich mit höherer Genauigkeit bestimmt werden. Für die obigen V_t -Werte erhält man ein $V_t = 3.5 \pm 0.1$. Hier ist die Unsicherheit nicht eine Fehlerabschätzung, sondern viel mehr ein Resultat des großen Fehlers im U -Wert. Für $U_t = 6.5$ erhält man ein $V_t \approx 3.4$ und für $U_t = 6.9$ ein $V_t \approx 3.6$. Zusammengefasst liegt der trikritische Punkt also bei $(U_t, V_t) = (6.7 \pm 0.2, 3.5 \pm 0.1)$.

5.2.3 Der Bereich schwacher Kopplung

Das Phasendiagramm im Bereich schwacher Kopplung ist vielfältiger und schwieriger als im Bereich starker Kopplung, in dem es nur einen PÜ erster Ordnung gibt. Hier werden verschiedene kontinuierliche PÜ erwartet. Der Bereich schwacher Kopplung kann theoretisch untersucht werden, indem die Kopplungskonstanten aus der Bosonisierung mit denen aus der Tomonaga-Luttinger-Flüssigkeit verglichen werden. Die Renormierung von Umklappstreuungs- und Rückstreuungsprozessen liefert dann die Lage und die Art der PÜ. Betrachtet man nur Terme erster Ordnung, so wird diese Methode häufig *g-ologie* [124] genannt. Da es sich hier, wie üblich in der eindimensionalen Bosonisierung, um ein line-

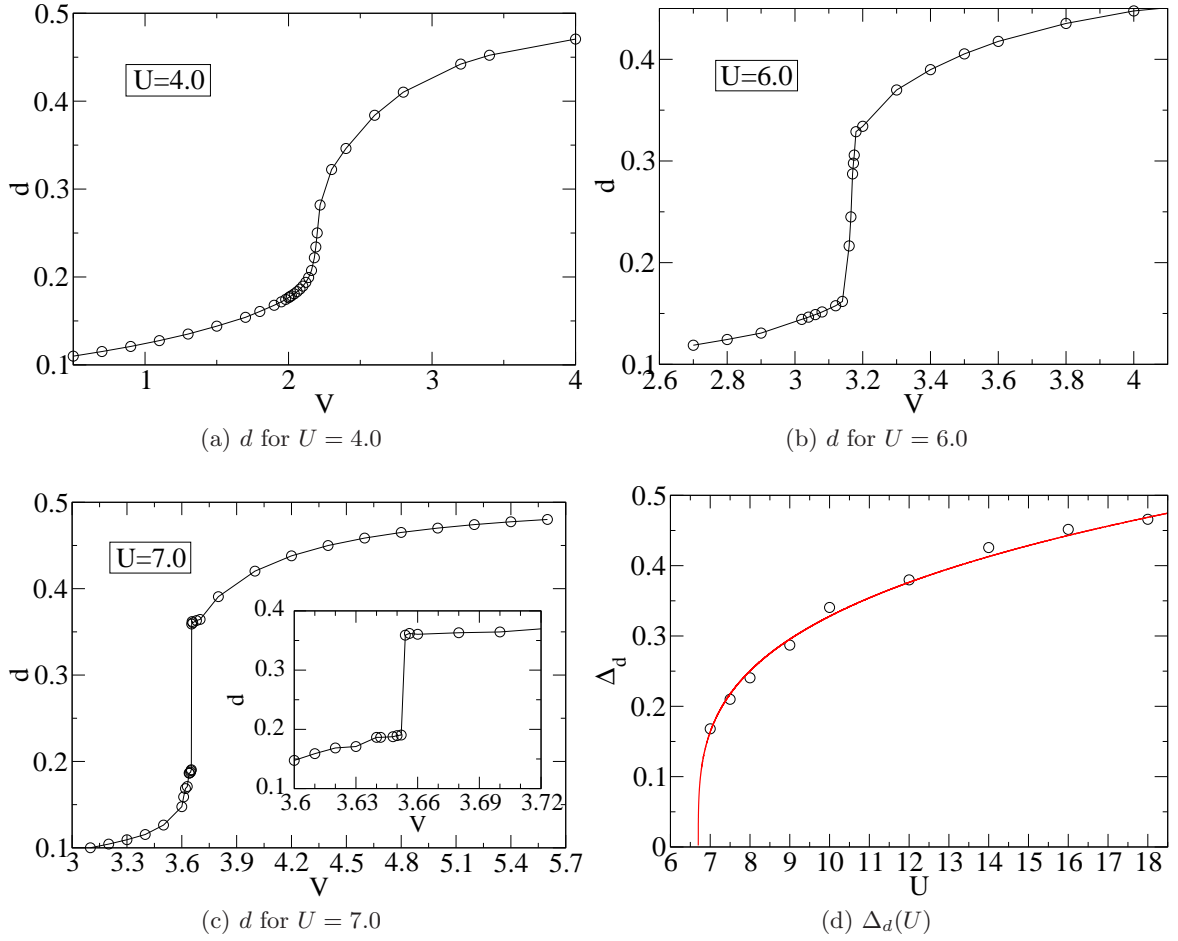


Abbildung 5.10: Extrapolierte Werte der Doppelbesetzung d für $T = 0$ als Funktion von V für verschiedene U . Im Inset von (c) wird die Region um den Sprung in d vergrößert dargestellt. In Abb. (d) werden extrapolierte TMRG-Ergebnisse (Kreise) für den Sprung in der Doppelbesetzung Δ_d beim PÜ bei $T = 0$ in Abhängigkeit von U gezeigt. Die Linie ist ein Fit der Form $\Delta_d = 0.232(U - 6.7)^{0.29}$.

res Anregungsspektrum handelt, können sowohl der Spinsektor als auch der Ladungssektor getrennt voneinander untersucht werden. Bei halber Füllung ($\mu = 0$) führt die Umklappstreuung im Ladungssektor zu einem relevanten (Wechselwirkungs-)Operator im bosonischen Hamiltonoperator, sodass eine Ladungslücke Δ_c erzeugt wird. Die Amplitude dieser Wechselwirkung ist proportional zu $U - 2V$ [112]. Demnach hat das System im Bereich schwacher Kopplung außer bei $U = 2V$ immer eine Ladungslücke. Schließlich verschwindet die Amplitude des Operators zur Umklappstreuung genau an diesem Punkt. In der Nähe des PÜ verhält sich die Ladungslücke bei festem U wie

$$\Delta_c \sim |V - V_c|^\alpha. \quad (5.16)$$

Dabei ist $\alpha > 0$ ein wechselwirkungsabhängiger kritischer Exponent und $V_c \approx U/2$ im Bereich schwacher Kopplung [112]. Demnach ist der PÜ im Ladungssektor ein PÜ zweiter Ordnung.

Andererseits entspricht die führende Wechselwirkung im Spinsektor einem Rückstreuungsprozess und ist marginal. Die Amplitude dieser Wechselwirkung ist wie im Ladungssektor $U - 2V$ [112]. Für $U > 2V$ ist der Rückstreuungsoperator marginal irrelevant, sodass in diesem Bereich die Spinanregungen lückenlos ist. Für $U < 2V$ allerdings ist dieser Operator marginal relevant, sodass eine Spinlücke Δ_s erzeugt wird. Infolgedessen öffnet sich die Spinlücke nur exponentiell langsam. Für festes U und $V \gtrsim V_c \approx U/2$ zeigt die Spinlücke folgendes Verhalten:

$$\Delta_s \sim \sqrt{V - V_c} \exp\{-\text{const}/(V - V_c)\}. \quad (5.17)$$

Solch ein PÜ wird als kontinuierlich oder als Kosterlitz-Thouless-Phasenübergang (KT-PÜ) bezeichnet. Im Spinsektor ist der PÜ demnach ein KT-PÜ [127].

Wie in der Einführung zu Kap. 5.2 beschrieben, gibt es nach Nakamura [111] kein Symmetrieargument, dass die Amplituden der Operatoren zur Rückstreuung und zur Umklappstreuung gleich sein sollten. Obwohl bis zur ersten Ordnung in den Wechselwirkungsparametern beide Amplituden identisch sind, wäre es also auch möglich, dass beide Amplituden unterschiedlich sein könnten, sobald Korrekturen mit höherer Ordnung berücksichtigt werden. In diesem Fall könnte eine zusätzliche Phase, die sog. BOW-Phase, zwischen der SDW- und CDW-Phase vorkommen. In vielen Arbeiten [105–122] ist diese BOW-Phase in ihrer Lage und auch ihrer Existenz schon kontrovers diskutiert worden.

Aus diesem Grund werden nun mithilfe der Thermodynamik des EHM die PÜ im Bereich schwacher Kopplung genauer untersucht. Dazu wird die Linie des PÜ zweiter Ordnung, an dem sich die Ladungslücke schließt, präzise bestimmt. Außerdem wird die Linie des KT-PÜ, an dem die Spinlücke verschwindet, ermittelt. Zuletzt wird die BOW-Phase mit langreichweitiger Dimer-Ordnung nachgewiesen.

Da sich an der Linie des PÜ zweiter Ordnung die Ladungslücke Δ_c schließt, kann die Lage dieser Linie mithilfe der Ladungssuszeptibilität bestimmt werden. Wenn nämlich eine Ladungslücke vorhanden ist, zeigt die Ladungssuszeptibilität χ_c für Temperaturen $T \ll \Delta_c$ ein Aktivierungsverhalten nach Gl. (5.12). Demnach ist im Tieftemperaturbereich die Ladungssuszeptibilität χ_c größer, je kleiner die Ladungslücke Δ_c ist. Im Bereich schwacher Kopplung kann die Ladungslücke durch Gl. (5.16) beschrieben werden, sodass sich die Ladungssuszeptibilität χ_c bei festem U und fester Temperatur T_0 wie folgt verhält:

- $\chi_c(T_0, V)$ steigt mit wachsendem V für $V < V_c$ an und
- $\chi_c(T_0, V)$ fällt mit wachsendem V für $V > V_c$ ab.

Eine Störungsrechnung zweiter Ordnung in $1/T$ liefert das Hochtemperaturverhalten

$$\chi_c(T \gg 1) = \frac{1}{2T} \left[1 - \frac{1}{2T}(U/2 + V) \right]. \quad (5.18)$$

Demnach wird die Ladungssuszeptibilität $\chi_c(T_0, V)$ für hohe Temperaturen $T_0 \gg 1$ mit wachsendem V immer kleiner. Im Bereich $V < V_c$ ist für festes U die Steigung der Ladungssuszeptibilität $\partial\chi_c/\partial V > 0$ für kleine Temperaturen $T_0 \ll 1$ und $\partial\chi_c/\partial V < 0$ für große Temperaturen $T_0 \gg 1$. Aus diesem Grund müssen sich die Ladungssuszeptibilitätskurven für verschiedene $V < V_c$ bei festem U mindestens einmal schneiden. Dagegen ist kein Schnittpunkt in den Ladungssuszeptibilitätskurven für verschiedene $V > V_c$ zu erwarten, weil sowohl bei tiefen als auch bei hohen Temperaturen die Steigung der Ladungssuszeptibilität $\partial\chi_c/\partial V < 0$ ist. Dieses unterschiedliche Verhalten der Ladungssuszeptibilität für

$V < V_c$ und $V > V_c$ ist ein sehr gutes Kriterium, um die Lage V_c des PÜ zu bestimmen. Für die Werte $U = 2$ und $U = 4$ ist dies in den Abbildungen 5.11 und 5.12 dargestellt. Für $U = 2$ sieht man in Abb. 5.11 (untere Abb.), dass die Ladungssuszeptibilität zu $V = 1.04$ die erste Kurve ist, die die Ladungssuszeptibilitätskurve für größere V schneidet. Deswegen kann $V_c = 1.05 \pm 0.01$ für $U = 2$ bestimmt werden. Prinzipiell wäre es mit dieser Methode sogar möglich, das V_c noch genauer zu bestimmen. Dazu müssten nur weitere Ladungssuszeptibilitäten im Bereich $V = 1.04$ bis $V = 1.05$ berechnet werden, um dann in diesem Bereich den Schnittpunkt zu ermitteln. Für $U = 4$ schneidet die Ladungssuszeptibilitätskurve zu $V = 2.16$ als erste die Kurven zu größeren V . Demnach ist der kritische Punkt für $U = 2$ bei $V_c = 2.165 \pm 0.005$. Diese ermittelten Werte stimmen sehr gut mit den DMRG-Ergebnissen [120] und den QMC-Ergebnissen [119] überein.

Weiterhin sieht man in den Abbildungen 5.11 und 5.12, dass sich die Ladungssuszeptibilitätskurven für $V < V_c$ nicht nur einfach irgendwo schneiden, sondern dass sich fast alle Ladungssuszeptibilitätskurven in genau einem Punkt schneiden. Demnach gibt es eine Temperatur T^* , bei der $\partial\chi_c/\partial V \approx 0$ für fast alle V ist. Ähnliche Schnittpunkte [129, 130] sind auch schon in anderen Systemen und anderen thermodynamischen Größen, wie z.B. der spezifischen Wärme, beobachtet worden.

Obwohl hier thermodynamische Größen bei endlicher Temperatur $T > 0$ betrachtet werden, wird die so bestimmte Phasengrenze das Phasendiagramm bei $T = 0$ darstellen: Zum einen wird die Ladungslücke, die hier durch das Aktivierungsverhalten der Ladungssuszeptibilität (5.16) bestimmt wird, genau das Verhalten bei $T = 0$ beschreiben. Zum anderen schneiden sich die Ladungssuszeptibilitätskurven nicht alle in einem Schnittpunkt bei T^* . In Abb. 5.12 erkennt man gut, dass der Schnittpunkt der Ladungssuszeptibilitätskurven in der Nähe des Phasenübergangs nicht mit dem universellen Schnittpunkt bei $T = T^*$ übereinstimmt. Da dieser Schnittpunkt nicht bei $T^* \approx 0.5$ sondern bei $T^* \approx 0.2$ liegt, kann das Fazit gezogen werden, dass mithilfe dieser Methode der kritische Punkt für das Phasendiagramm bei $T = 0$ bestimmt werden kann. Schließlich nimmt die Temperatur, an der sich zwei Ladungssuszeptibilitätskurven schneiden, in der Nähe des PÜ ab.

Die Ladungslücken Δ_c können nun wieder mithilfe des Aktivierungsverhaltens (5.12) der Ladungssuszeptibilitäten bestimmt werden, sodass das kritische Verhalten am PÜ nach Gl. (5.16) bestätigt werden kann. In Abbildung 5.13 werden die so ermittelten Ladungslücken für $U = 2, 4$ und 12 gezeigt. Die Umskalierungen $\Delta_c \rightarrow \Delta_c/U$ und $V \rightarrow V/V_c$ dienen nur dazu die verschiedenen Daten in einer Abbildung darzustellen. Der PÜ findet übrigens genau bei $V = V_c$ statt. In der Hauptabbildung erkennt man gut, dass die Ladungslücke in der Nähe des PÜ umso steiler abfällt, je größer die Kopplung U ist. Das entspricht genau dem von Nakamura [112] vorhergesagten Verhalten des kritischen Exponenten. Im Inset von Abb. 5.13 werden diese Ladungssuszeptibilitäten zusätzlich mit der Ladungssuszeptibilität für $U = 12$, d.h. im Bereich starker Kopplung, verglichen.

Die Phasengrenze des KT-PÜ kann mithilfe der Spinsuszeptibilitäten bestimmt werden, weil nur oberhalb des PÜ ($V > V_c^{KT}$) eine Spinlücke vorhanden ist. Demnach zeigt die Spinsuszeptibilität χ_s für $V > V_c^{KT}$ wieder ein Aktivierungsverhalten (5.12). Die Kurven kreuzen sich in diesem Fall aber nicht, weil bei jeder Temperatur $\partial\chi_s/\partial V < 0$ ist. Das gilt ebenso für $V < V_c^{KT}$. Schließlich kann im Tieftemperaturbereich die Spinsuszeptibilität

$$\chi_s(T = 0) = \frac{1}{2\pi v_s} \quad (5.19)$$

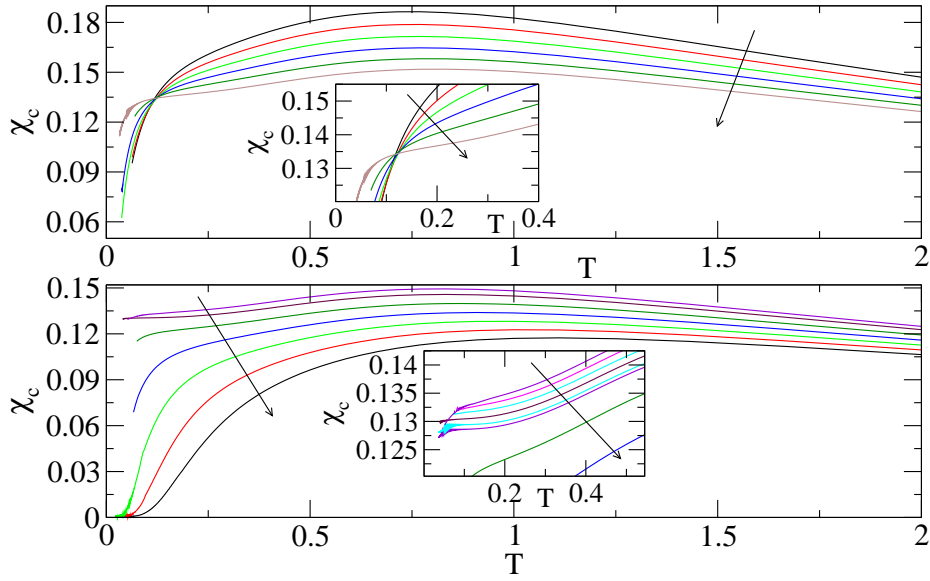


Abbildung 5.11: Ladungssuszeptibilität χ_c bei $U = 2$.

Obere Abb.: χ_c für $V = 0.5, 0.6, \dots, 1.0$ (in Pfeilrichtung). Im Inset ist die Region um den Schnittpunkt bei $T^* \approx 0.12$ vergrößert dargestellt. Untere Abb.: χ_c für $V = 1.04, 1.1, 1.2, \dots, 1.6$ (in Pfeilrichtung) und $V = 1.04, 1.06, 1.08, 1.1, 1.12, 1.13, 1.2, 1.3$ (Inset, in Pfeilrichtung).

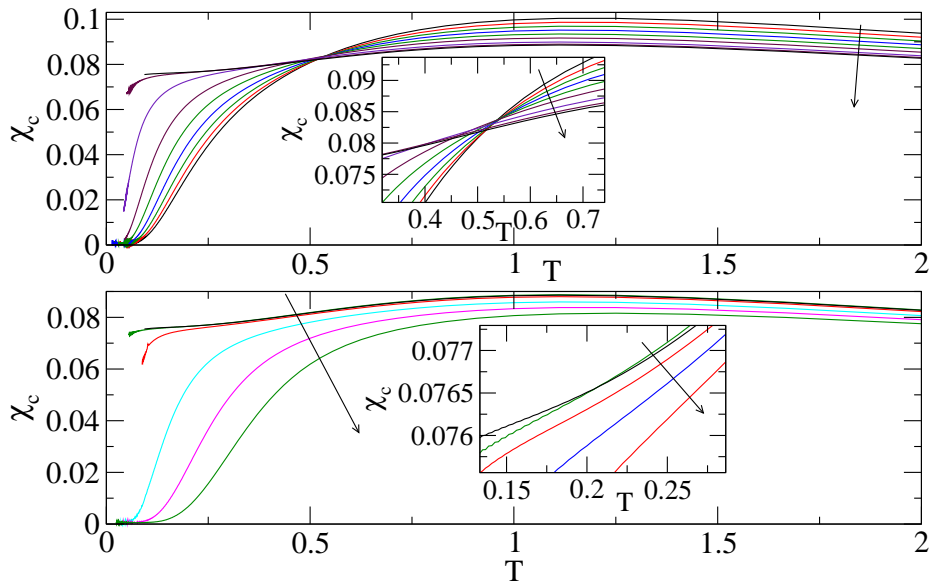


Abbildung 5.12: Ladungssuszeptibilität χ_c bei $U = 4$.

Obere Abb.: χ_c für $V = 1.5, 1.6, \dots, 2.1, 2.15, 2.17$ (in Pfeilrichtung). Im Inset ist die Region um den Schnittpunkt bei $T^* \approx 0.54$ vergrößert dargestellt. Untere Abb.: χ_c für $V = 2.16, 2.17, 2.2, 2.3, 2.4, 2.5$ (in Pfeilrichtung) und $V = 2.16, 2.17, 2.18, 2.19, 2.2$ (Inset, in Pfeilrichtung).

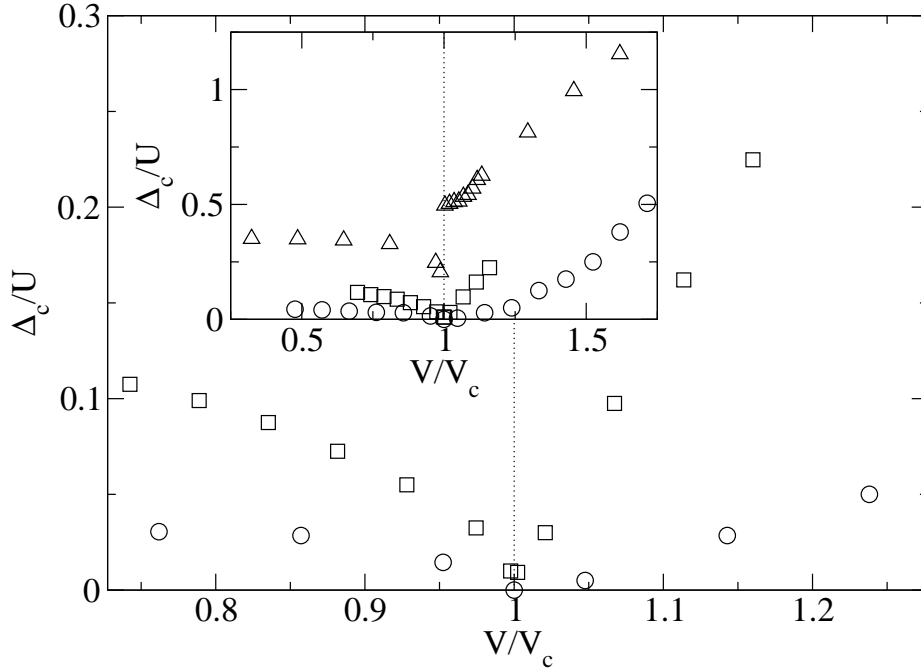


Abbildung 5.13: Die Ladungslücke Δ_c/U als Funktion von V/V_c bei festem $U = 2.0$ (Kreise), $U = 4.0$ (Quadrate). Inset: Es wird zusätzlich die Ladungslücke Δ_c/U für $U = 12.0$ (Dreiecke) gezeigt (vgl. Abb. 5.7). Die gestrichelten Linien markieren den PÜ bei $V = V_c$.

durch die CFT berechnet werden. Die Spinwellengeschwindigkeit v_s steigt immer mit wachsender Wechselwirkung V an, so dass wieder $\partial\chi_s/\partial V < 0$ gilt. Im Spinsektor ändert sich nur das grundlegende Verhalten der Spinsuszeptibilitäten am PÜ. Oberhalb des PÜ zeigt die Spinsuszeptibilität ein Aktivierungsverhalten und unterhalb des PÜ strebt die Spinsuszeptibilität gegen eine Konstante (5.19) für $T \rightarrow 0$. Im Tieftemperaturbereich, in dem die CFT gültig ist, gibt es aber noch universelle Skalenrelationen, die nur von thermodynamischen Größen abhängen. Diese Skalenrelationen werden universell genannt, weil sie nicht mehr wie die Spinsuszeptibilität für $T \rightarrow 0$ von einem wechselwirkungsabhängigen Parameter wie z.B. der Spinwellengeschwindigkeit v_s abhängen. Wegen $C = T\partial S/\partial T$ ist die Entropie S ebenso durch (5.14) gegeben. Also ist

$$\lim_{T \rightarrow 0} \frac{S}{T\chi_s} \equiv \frac{2\pi^2}{3}. \quad (5.20)$$

eine universelle Skalenrelationen für $V < V_c^{KT}$. Diese Größen sind aber nur für $T \ll \Delta_c$ gültig. Da sich die Spinlücke aber in der Nähe des Bereichs, in dem die Ladungslücke verschwindet, öffnet, ist dieses Kriterium in der Numerik leider nicht anwendbar. Demnach gibt es nur eine Möglichkeit, die Lage des PÜ zu bestimmen. Die Spinlücken müssen direkt aus den Spinsuszeptibilitäten durch das Aktivierungsverhalten berechnet werden. Dazu wird nun der Fall $U = 4$ exemplarisch untersucht (s. Abb. 5.14). Für $V < V_c^{KT}$ kann der Tieftemperaturbereich gut durch die CFT (5.19) erklärt werden. Ebenso ist das Aktivierungsverhalten der Spinsuszeptibilität gut für $V > V_c^{KT}$ zu erkennen. Im Inset von Abb. 5.14 werden die Spinlücken in Abhängigkeit der Wechselwirkung V gezeigt. Diese Spinlücken

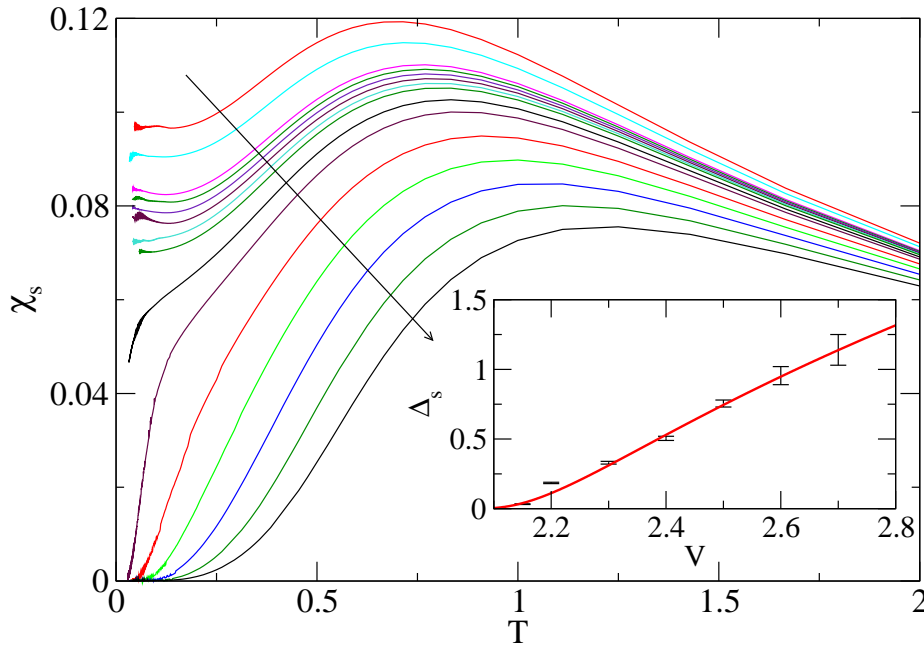


Abbildung 5.14: Temperaturabhängige Spinsuszeptibilität bei $U = 4$ für verschiedene $V = 1.8, 1.9, 2.0, 2.02, \dots, 2.1, 2.15, 2.2, 2.3, \dots, 2.7$. Inset: Spinlücke Δ_s bei $U = 4$ in Abhängigkeit von V . Der Fit $\Delta_s \sim 2.52\sqrt{V - 2.02} \cdot \exp[-0.41/(V - 2.02)]$ kann die Spinlücke gut beschreiben.

wurden ermittelt, indem das Aktivierungsverhalten (5.12) als Fit-Funktion für die Spinsuszeptibilitäten verwendet wurde. Die gezeigten Fehlerbalken entsprechen unterschiedlichen Fit-Ergebnissen, bei denen verschiedene Fit-Regionen benutzt wurden. Die Lage des PÜ kann nun mittels einer weiteren Fit-Funktion (5.17) für die Spinlücke berechnet werden. Für $U = 4$ schließt sich die Spinlücke demnach bei $V_c^{KT} \approx 2.02 \pm 0.06$, wobei der Fehler wiederum aus unterschiedlichen Fit-Regionen resultiert. Innerhalb dieser Fehlerschranken hat man einen starken Beweis, dass $V_c \neq V_c^{KT}$ für $U = 4$. Insbesondere gibt es demnach zwei unterschiedliche PÜ. Bestimmt man nun sowohl die Lage des PÜ zweiter Ordnung als auch die Lage des KT-PÜ für weitere U -Werte, so erhält man das Phasendiagramm, welches im nächsten Abschnitt 5.2.4 diskutiert wird.

5.2.4 Das Phasendiagramm

Das mit der TMRG-Methode berechnete Phasendiagramm des EHM ist in Abbildung 5.15 gezeigt. Dieses Phasendiagramm ist sehr ähnlich zu dem von Zhang [120], welches mit der DMRG-Methode bestimmt wurde. Für (U, V) -Werte oberhalb des trikritischen Punkts (U_t, V_t) gibt es einen PÜ erster Ordnung, der die SDW-Phase von der CDW-Phase trennt. Unterhalb des trikritischen Punkts gibt es zwei verschiedene PÜ-Linien. An der PÜ-Linie des KT-PÜ öffnet sich eine Spinlücke und an der PÜ-Linie des PÜ zweiter Ordnung öffnet sich eine Ladungslücke. Da sich diese beiden PÜ-Linien unterscheiden, muss sich dazwischen eine zusätzliche Phase befinden. Diese Phase, BOW-Phase genannt, wird im Abschnitt 5.2.5 detailliert beschrieben und untersucht. Allerdings gibt es quantitative Unterschiede zwischen

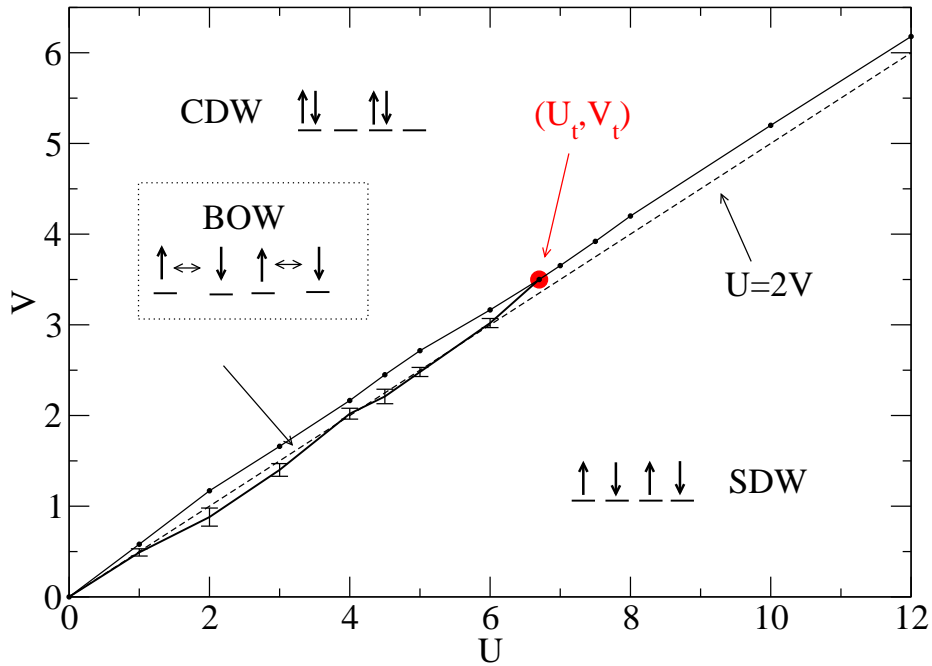


Abbildung 5.15: Das mit der TMRG-Methode berechnete Phasendiagramm des EHM. Die gestrichelte Linie bezeichnet die Ursprungsgerade $U = 2V$. Die obere durchgezogene Linie kennzeichnet die Phasengrenze der CDW-Phase. Der zugehörige Fehler ist immer kleiner als die Symbolgröße. Der Fehler der KT-Phasenlinie (untere durchgezogene Linie) ist durch die Fehlerbalken dargestellt. (U_t, V_t) ist der trikritische Punkt, wobei der Fehler durch die Symbolgröße gegeben ist.

den TMRG-Ergebnissen dieser Arbeit und Zhangs DMRG-Ergebnissen [120] bzgl. der Lage des trikritischen Punkts. In dieser Arbeit liegt der trikritische Punkt bei $(U_t = 6.7 \pm 0.2, V_t = 3.5 \pm 0.1)$, wobei sich Zhangs trikritischer Punkt bei $(U_t \approx 7.2, V_t \approx 3.746)$ befindet. Beide Werte sind aber größer als der Wert aus den QMC-Rechnungen [114] ($U_t = 4.7 \pm 0.1, V_t = 2.51 \pm 0.04$) (s. Abb. 5.1).

Außerdem widerspricht das hier beobachtete Phasendiagramm dem Phasendiagramm von Jeckelmann [116] (s. Abb. 5.2), welches ebenfalls mit der DMRG-Methode bestimmt wurde. In diesem Phasendiagramm existiert die BOW-Phase nur direkt auf der PÜ-Linie erster Ordnung (SDW-CDW) oberhalb eines trikritischen Punkts bei $U_t = 3.7 \pm 0.2$ bis hin zu einem weiteren kritischen Punkt bei $U \approx 8$.

Das Phasendiagramm 5.15 widerspricht aber auch den Phasendiagrammen anderer QMC-Ergebnissen [119] und DMRG-Ergebnissen [122]. In beiden Arbeiten hat das Phasendiagramm zwei verschiedene trikritische Punkte (s. Abb. 5.3). Ein trikritischer Punkt liegt auf der BOW-CDW-Phasenübergangslinie, an dem sich die Ordnung des PÜ ändert. Oberhalb gibt es einen PÜ erster Ordnung und unterhalb einen PÜ zweiter Ordnung. Der andere trikritische Punkt kennzeichnet dann das Ende der BOW-Phase. Der qualitative Unterschied zu den hier berechneten TMRG-Ergebnissen besteht also darin, dass in deren Phasendiagramme die BOW-Phase nicht an dem trikritischen Punkt endet, an dem sich die Ordnung des PÜ ändert, sondern darüber hinaus existiert und erst an einem

weiteren trikritischen Punkt endet. Die beiden trikritischen Punkte liegen in den QMC-Rechnungen [119] bei $U_{t_1} \approx 5.5$ und bei $U_{t_1} \approx 9$. In den neueren DMRG-Rechnungen [122] liegen sie bei $(U_{t_1} \approx 5.89, V_{t_1} \approx 3.1)$, an dem sich die Ordnung des PÜ ändert, und bei $(U_{t_1} \approx 9.25, V_{t_1} \approx 4.76)$, an dem die BOW-Phase endet.

5.2.5 Die Existenz der BOW-Phase

Das Phasendiagramm in Abb. 5.15 zeigt, dass unterhalb des trikritischen Punkts (U_t, V_t) ein KT-PÜ existiert, an dem sich eine Spinlücke öffnet. Außerdem gibt es noch einen weiteren PÜ, an dem sich eine Ladungslücke öffnet. Die Phase dazwischen hat im Gegensatz zur SDW-Phase eine Spinlücke, unterscheidet sich aber von der CDW-Phase, weil jeder Platz mit nur einem Teilchen besetzt ist. Demnach ist diese Phase die sog. BOW-Phase, die nach der Feldtheorie einen Mott-Isolator mit Dimerisierung beschreibt. Da solch eine Dimerisierung keine kontinuierlichen Symmetrien bricht, gibt es sogar in einer Dimension bei $T = 0$ eine echte langreichweitige Ordnung. Somit hat die Korrelationsfunktion

$$F(r) = (-1)^r \left(\langle A_0 A_r \rangle - \langle A_r \rangle^2 \right) \quad (5.21)$$

für die Operatoren $A_r = S_r^z S_{r+1}^z$ oder $A_r = \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow} (c_{r,\sigma}^\dagger c_{r+1,\sigma} + h.c.)$ folgendes Verhalten:

$$\lim_{r \rightarrow \infty} F(r) = \text{konstant} \neq 0. \quad (5.22)$$

Das Verhalten der Korrelationsfunktionen bei großen Abständen kann sehr gut mithilfe der Korrelationslängen beschrieben werden. Mit der TMRG-Methode können nach (2.16) und (2.17) Korrelationslängen direkt berechnet werden.

Wenn eine Korrelationsfunktion bei $T = 0$ algebraisch abfällt, dann wird die Korrelationslänge wie $\xi \sim 1/T$ divergieren. Fällt die Korrelationsfunktion hingegen (sogar bei $T = 0$) exponentiell ab, so bleibt die Korrelationslänge immer endlich. Zeigt die Korrelationsfunktion allerdings eine echte langreichweitige Ordnung bei $T = 0$, so wird die Korrelationslänge wie

$$\xi \sim \frac{\exp(\Delta/T)}{\sqrt{T}} \quad (5.23)$$

divergieren. Dabei ist Δ die zugehörige Anregungslücke.

Im Folgenden werden verschiedene Korrelationslängen berechnet. Die Korrelationslänge zum S_z -Operator wird als SDW-Korrelationslänge, die Korrelationslänge zum Dichteoperator (oder Teilchenzahloperator n) als CDW-Korrelationslänge und die Korrelationslänge zur kinetischen Energie $k = \sum_{\sigma} (c_{r,\sigma}^\dagger c_{r+1,\sigma} + h.c.)$ als BOW-Korrelationslänge bezeichnet. Diese Bezeichnungen sind sinnvoll, weil durch diese verschiedenen Korrelationslängen die jeweilige Phase bestimmt werden kann. In der BOW-Phase muss die BOW-Korrelationslänge eine langreichweitige Ordnung zeigen und somit durch (5.23) beschrieben werden können (s. Abb. 5.16a). In der CDW-Phase zeigt dann die CDW-Korrelationslänge die langreichweitige Ordnung (s. Abb. 5.17b). Allerdings gibt es in der SDW-Phase nicht so eine einfache Charakterisierung. Prinzipiell soll die SDW-Korrelationslänge bei tiefen Temperaturen zur führenden Korrelationslänge werden, sodass das Verhalten bei großen Abständen in dieser Phase einzig durch diese Korrelationslänge beschrieben werden kann. Da die SDW-Phase aber nur quasi-langreichweitige Ordnung zeigt, wird die SDW-Korrelationslänge ξ_{SDW} in

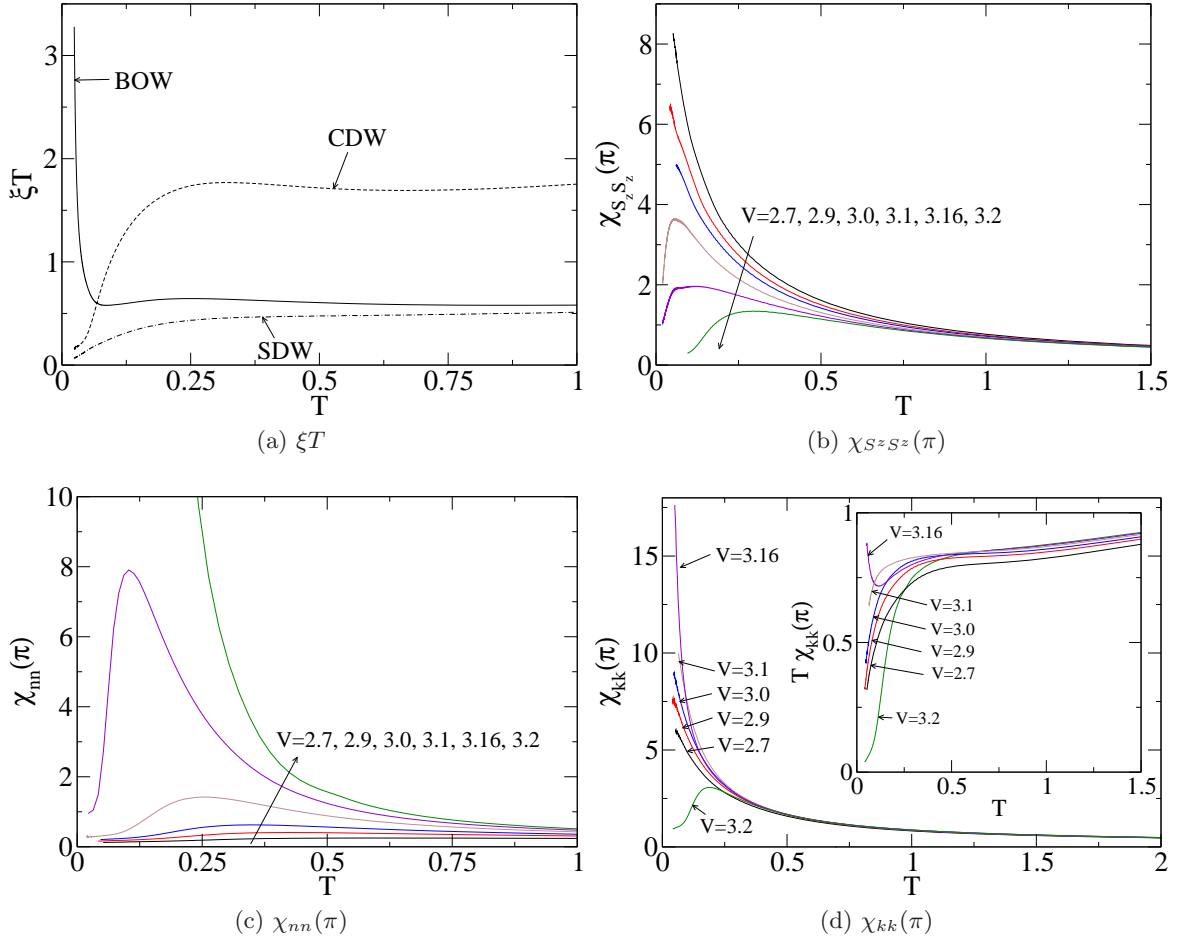


Abbildung 5.16: (a): Führende SDW-, CDW- und BOW-Korrelationslängen gezeichnet als ξT bei $U = 6$ und $V = 3.16$. (b)-(d): Alternierende statische Suszeptibilitäten für den longitudinalen Spin, für die Dichte und für die kinetische Energie $k = \sum_{\sigma} (c_{r,\sigma}^{\dagger} c_{r+1,\sigma} + h.c.)$ bei $U = 6$ und verschiedenen V -Werten.

der SDW-Phase wie $\sim 1/T$ divergieren und als $\xi_{SDW} \cdot T$ aufgetragen für $T \rightarrow 0$ gegen eine Konstante streben (s. Abb. 5.17a). Allerdings gibt es keinen Grund dafür, dass nicht auch die BOW-Korrelationslänge zur führenden Korrelationslänge werden könnte. Sie darf dann nur, wie die SDW-Korrelationslänge, keine langreichweitige Ordnung zeigen. Bei einer langreichweitigen BOW-Ordnung, wäre man schließlich in der BOW-Phase. Man erwartet demnach für die SDW-Phase, dass die SDW-Korrelationslänge bei tiefen T zur führenden Korrelationslänge wird und dass in der Nähe des PÜ zur CDW-Phase oder zur BOW-Phase, sowohl die SDW- als auch die BOW-Korrelationslänge führend werden können. Die BOW-Korrelationslänge wird in diesem Fall aber nie langreichweitige Ordnung zeigen (s. Abb. 5.18a).

In Abbildung 5.16a sind die führenden SDW-, CDW- und BOW-Korrelationslängen bei $U = 6$ und $V = 3.16$ abgebildet. Die führenden SDW- und CDW-Korrelationslängen bleiben hier endlich, während die führende BOW-Korrelationslänge schneller als $1/T$ divergiert, d.h.

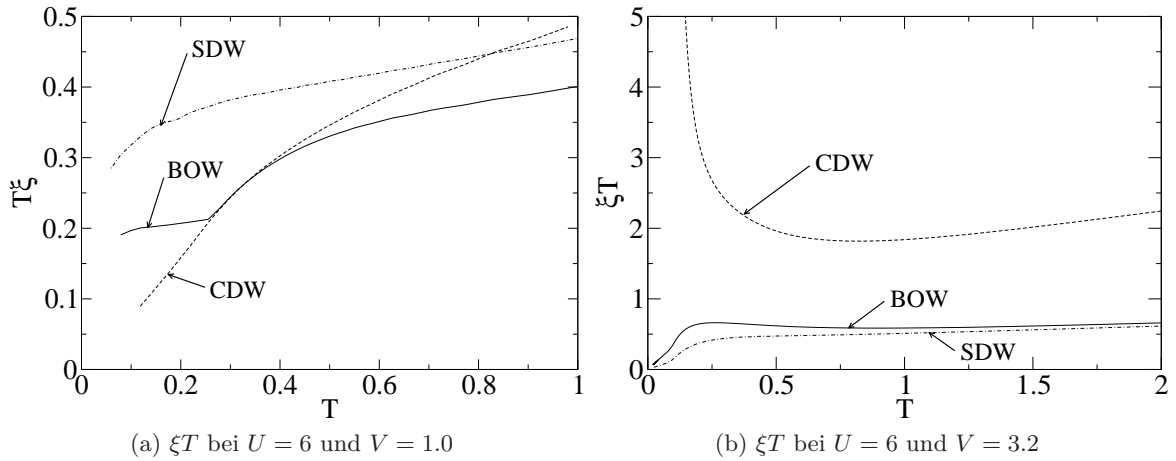


Abbildung 5.17: Führende SDW-, CDW- und BOW-Korrelationslängen gezeichnet als ξT bei $U = 6.0$ und verschiedenen V -Werten. (a) bzw. (b) zeigt die Korrelationslängen in der SDW-Phase bzw. CDW-Phase. Hinweis: In Abb. 5.16a sind die Korrelationslängen in der BOW-Phase bei $U = 6.0$ und $V = 3.16$ gezeigt.

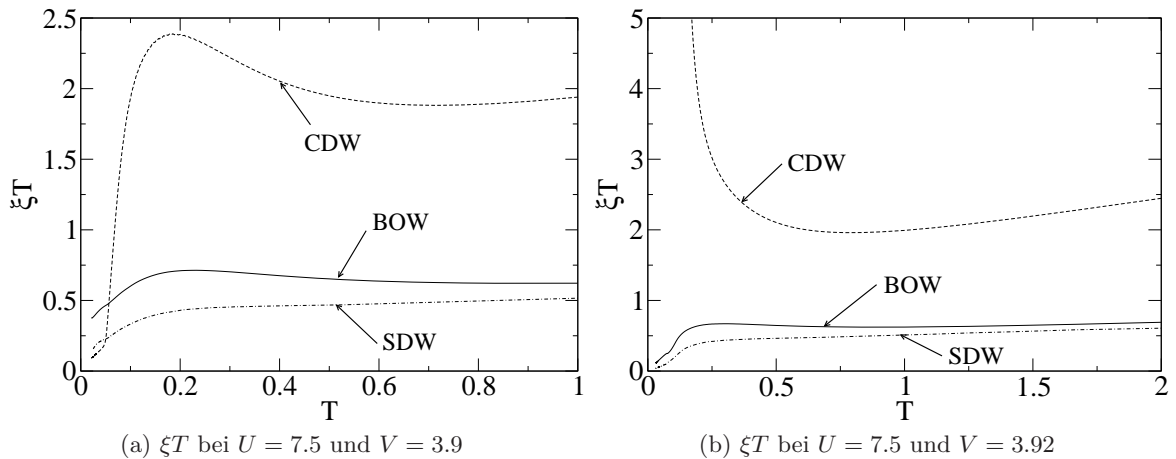


Abbildung 5.18: Führende SDW-, CDW- und BOW-Korrelationslängen gezeichnet als ξT bei $U = 7.5$ und verschiedenen V -Werten. (a) bzw. (b) zeigt die Korrelationslängen in der SDW-Phase bzw. CDW-Phase.

eine langreichweitige Ordnung bei $T = 0$ zeigt. Daher befindet man sich bei $U = 6$ und $V = 3.16$ innerhalb der BOW-Phase.

Weiterhin kann die BOW-Phase bestimmt werden, indem statische Suszeptibilitäten

$$\chi_{OO}(q) = \sum_r e^{iqr} \int_0^\beta d\tau \langle O_0(0) O_r(\tau) \rangle \quad (5.24)$$

für einen Operator O_r mithilfe der TMRG (s. Gl. (2.18), (2.19) und (2.20)) berechnet werden. Bei echter langreichweitiger Ordnung divergiert die zugehörige statische Suszeptibilität $\chi(q)$ exponentiell mit der Temperatur, sie geht jedoch gegen eine Konstante bei kurzreichweitiger Ordnung. Ist der Operator O zudem noch erhalten, d.h. kommutiert er mit dem Hamiltonoperator, so geht die zugehörige statische Suszeptibilität gegen null bei kurzreichweitiger Ordnung. Allerdings ist die Situation bei quasi-langreichweitiger Ordnung, d.h. beim algebraischem Zerfall der Korrelationen, schwieriger. Dazu werden nun die Fälle betrachtet, bei denen die Anregungen lückenlos sind (z.B. die Spinanregungen). Nach der CFT ist bekannt, dass die zugehörige algebraisch abfallende Korrelationsfunktion bei großen Abständen das folgende Verhalten hat

$$\langle O_0(0) O_r(\tau) \rangle \sim \left(\frac{2\pi T}{v} \right)^{2x} \exp \left[\frac{-2\pi T x}{v} r \right] \exp[-ikr] \exp[2\pi i T (d^+ - d^-) \tau]. \quad (5.25)$$

Dabei ist v die Geschwindigkeit der Elementaranregungen, $x = d^+ + d^-$ ist die Skalendimension, d^\pm sind die konformen Gewichte und k ist der charakteristische Wellenvektor. Weiterhin ist bekannt, dass das τ -Integral bei den statischen Suszeptibilitäten $\chi_{OO}(k)$ aus (5.24) explizit ausgerechnet werden kann:

$$\int_0^\beta d\tau \exp[2\pi i T (d^+ - d^-) \tau] = \frac{e^{2\pi i (d^+ - d^-)} - 1}{2\pi i T (d^+ - d^-)}. \quad (5.26)$$

Demnach ist das Integral gleich null, wenn der konforme Spin $s = d^+ - d^-$ eine ganze Zahl ungleich null ist, d.h. bei jeder Art von Teilchen-Loch-Anregung. Wenn allerdings $s = 0$ ist, dann ist (5.25) nicht mehr zeitabhängig und das Integral (5.26) ergibt ein $1/T$ -Verhalten. Bei $s = 0$ verhält sich die statische Suszeptibilität wie $\chi_{OO}(k) \sim T^{2x-2}$. Für den alternierenden Teil der longitudinalen Spin-Spin-Korrelationsfunktion ist $d^+ = d^- = 1/4$, sodass $\chi_{S_z S_z}(\pi) \sim 1/T$ gilt. Wenn die Skalendimension $x > 1$ ist, dann reicht es nicht mehr, nur das langreichweitige Verhalten im Grenzfall $T \rightarrow 0$ zu diskutieren. Demnach wird für einen nicht-erhaltenden Operator O die statische Suszeptibilität $\chi_{OO}(k)$ im Grenzfall $T \rightarrow 0$ gegen eine Konstante streben. Es ergibt sich somit das gleiche Verhalten wie bei den exponentiell zerfallenden Korrelationsfunktion (s. obige Diskussion).

In den Abbildungen 5.16b, 5.16c und 5.16d ist die statische Suszeptibilität für den longitudinalen Spin, die Dichte und die kinetische Energie für $U = 6$ und verschiedene V gezeigt. Anhand von Abb. 5.16b erkennt man, dass sich für $V \gtrsim 3.1$ eine Spinlücke bildet. Da es aber bei $V = 3.1$ und $V = 3.16$ noch keine langreichweitige Dichteordnung gibt (s. Abb. 5.16c), muss dort die BOW-Phase existieren. Zumindest für $V = 3.16$ erkennt man in Abb. 5.16d, dass in dieser Phase eine langreichweitige BOW-Ordnung existiert. Das stimmt auch mit dem Verhalten der Korrelationslängen überein (s. Abb. 5.16a).

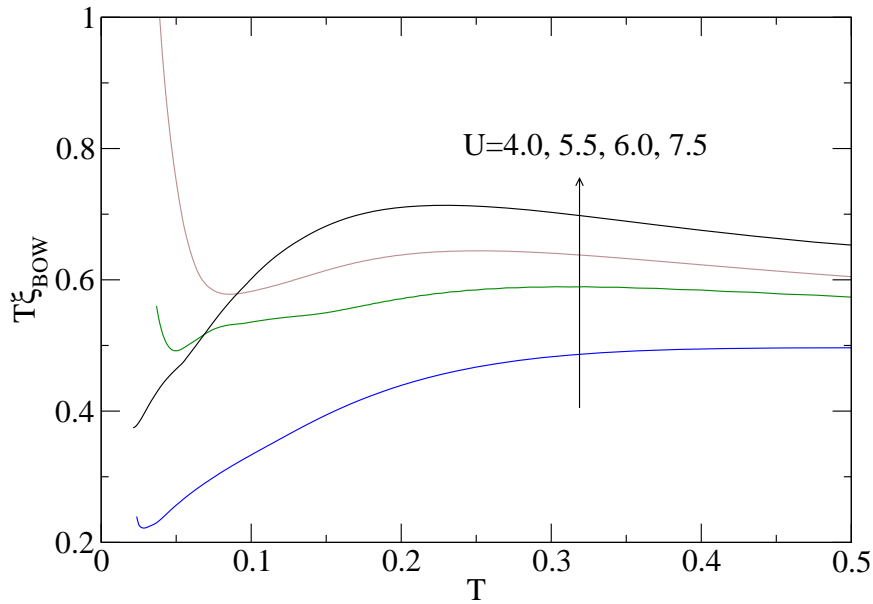


Abbildung 5.19: Die führenden BOW-Korrelationslängen gezeichnet als ξT bei verschiedenen (U, V) -Werten ((4.0, 2.14), (5.5, 2.9), (6.0, 3.16) und (7.5, 3.9)) in der BOW-Phase. Hinweis: Die führende BOW-Korrelationslänge bei $U = 7.5$ zeigt keine langreichweitige Ordnung, weil oberhalb des trikritischen Punkts ($U_t = 6.7 \pm 0.2$, $V_t = 3.5 \pm 0.1$) keine BOW-Phase mehr existiert. Bei $U = 7.5$ und $V = 3.9$ befindet man sich in der SDW-Phase.

Diese Ergebnisse für $U = 6$ beweisen, dass unterhalb des trikritischen Punkts und zwischen der PÜ-Linie zweiter Ordnung und der KT-PÜ-Linie die BOW-Phase existiert (s. Abb. 5.15). Für $U < 6.0$ wird es immer schwieriger die BOW-Phase nachzuweisen, weil die zugehörige Dimerlücke Δ_d mit abnehmenden U kleiner wird. In Abbildung 5.19 sind führende BOW-Korrelationslängen für verschiedene U als ξT in Abhängigkeit der Temperatur gezeigt. Das zugehörige V ist so gewählt worden, dass der Punkt (U, V) innerhalb der BOW-Phase und knapp unterhalb der PÜ-Linie zweiter Ordnung liegt (s. Abb. 5.15), weil die zugehörige Dimerlücke auch bei festem U mit abnehmenden V kleiner wird [122]. Für verschiedene U -Werte können die Dimerlücken Δ_d durch (5.23) als Fit-Funktion bestimmt werden. Die so ermittelten Dimerlücken Δ_d für (U, V) -Werte knapp unterhalb der PÜ-Linie zweiter Ordnung, innerhalb der BOW-Phase, sind in Tabelle 5.1 angegeben. In Abb. 5.19 erkennt man sehr gut, dass die Dimerlücken mit wachsendem U ansteigen. Außerdem sieht man, dass der exponentielle Anstieg der BOW-Korrelationslänge mit fallendem

U	V	Δ_d
4.0	2.14	0.01
5.5	2.9	0.03
6.0	3.9	0.08

Tabelle 5.1: Die Dimerlücken Δ_d für verschiedene (U, V) -Werte knapp unterhalb der PÜ-Linie zweiter Ordnung, innerhalb der BOW-Phase.

U bei immer tieferen Temperaturen stattfindet, sodass ein Beweis für die langreichweitige BOW-Ordnung unterhalb von $U \lesssim 4$ mit der TMRG-Methode wahrscheinlich unmöglich sein wird. Da die BOW-Phase aber zusammenhängend ist (s. Abb. 5.15), sollte innerhalb dieser Phase das physikalische Verhalten identisch sein. Deswegen reicht es aus, die langreichweitige BOW-Ordnung für $U \gtrsim 4$ zu zeigen. Auch wenn dieses Verhalten für $U \lesssim 4$ erst bei tieferen Temperaturen als $T \lesssim 0.03$ in den hier betrachteten thermodynamischen Größen erkannt werden kann.

Keine BOW-Phase oberhalb des trikritischen Punkts

Das Phasendiagramm aus Abb. 5.3 [119, 122] zeigt die Existenz der BOW-Phase auch oberhalb des trikritischen Punkts, d.h. des Punkts, an dem sich auf der PÜ-Linie die Ordnung des PÜ von erster Ordnung zu zweiter Ordnung ändert. Dort endet die BOW-Phase erst bei $U \lesssim 9$. Hier wird nun bewiesen, dass es oberhalb des trikritischen Punkts keine BOW-Phase geben kann. Wie oben schon erwähnt, werden in Abb. 5.19 BOW-Korrelationslängen bei verschiedenen U -Werten gezeigt. Zusätzlich ist in dieser Abbildung die BOW-Korrelationslänge zu dem Wert ($U = 7.5, V = 3.9$) gezeigt, bei dem es nach [119, 122] eine BOW-Phase geben soll. Hier wird deutlich, dass diese BOW-Korrelationslänge keine langreichweitige Ordnung zeigt, sondern lediglich ein $1/T$ -Verhalten. Dieses Verhalten besagt nun, dass man sich bei diesem Wert innerhalb der SDW-Phase befindet. Das ist auch gut in Abb. 5.18a zu erkennen. Der Wert ($U = 7.5, V = 3.9$) befindet sich auch, wie bei den anderen U -Werten in Abb. 5.19, schon knapp unterhalb des PÜ (CDW-SDW), denn bei ($U = 7.5, V = 3.92$) befindet man sich schon deutlich innerhalb der CDW-Phase (s. Abb. 5.18a). Demnach gibt es für $U = 7.5$ keine BOW-Phase. Das Argument, dass die BOW-Korrelationslänge für ($U = 7.5, V = 3.9$) erst bei tieferen Temperaturen einen exponentiellen Anstieg und somit eine langreichweitige BOW-Ordnung zeigt, kann entkräftet werden, weil, wie oben schon erwähnt, die Temperatur, an dem der exponentielle Anstieg festgestellt werden kann, mit wachsendem U ansteigt (s. Abb. 5.19). Somit erwartet man den exponentiellen Anstieg für $U = 7.5$ schon bei Temperaturen $T \gtrsim 0.1$. Doch bei $T \sim 0.02$ ist davon noch immer nichts zu erkennen. Ebenso zeigt die magnetische Suszeptibilität bei $U = 7.5$ kein Aktivierungsverhalten in diesem Bereich (s. Abb. 5.20). Eine mögliche Erklärung, dass mit anderen Methoden für U -Werte oberhalb des trikritischen Punkts eine BOW-Phase gesehen wird, ist vielleicht der Aspekt, dass innerhalb der SDW-Phase auch die BOW-Korrelationslänge die führende Korrelationslänge bei tiefen Temperaturen sein kann (s. Abb. 5.18a). Doch dieser Aspekt beweist, wie oben schon erwähnt, keine langreichweitige BOW-Ordnung.

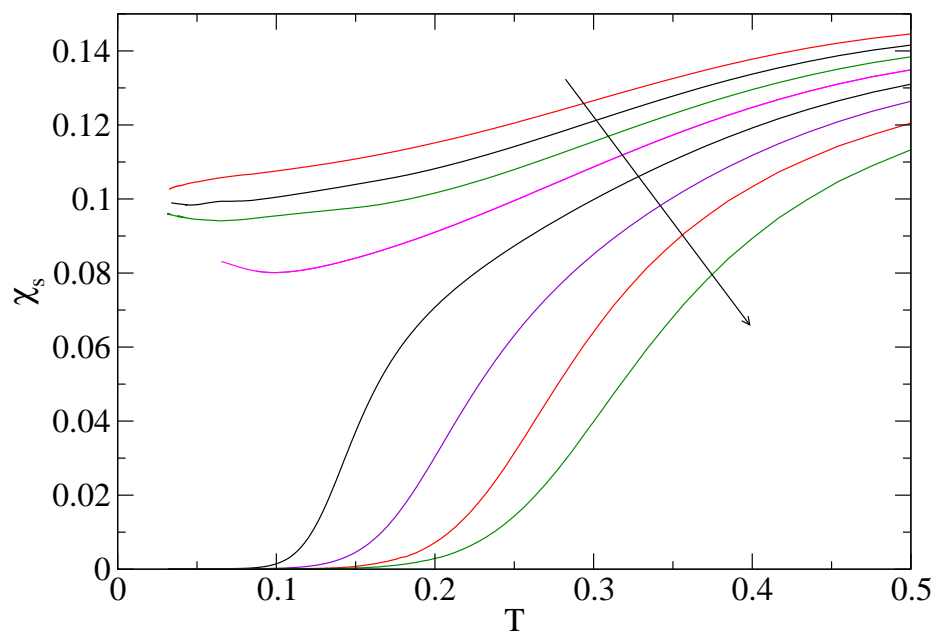


Abbildung 5.20: Magnetische Suszeptibilitäten in Abhängigkeit der Temperatur T bei $U = 7.5$ für verschiedene $V = 3.84, 3.86, \dots, 3.94, 3.98, 4.0$ (in Pfeilrichtung).

6 Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit verwendet die Transfermatrix-Renormierungsgruppe, um thermodynamische Eigenschaften von eindimensionalen Quantensystemen zu berechnen. Diese Methode basiert auf einer Trotter-Suzuki-Zerlegung [18–20], die ein eindimensionales Quantensystem auf ein zweidimensionales klassisches System abbildet. Für das klassische System kann nun eine Quanten-Transfermatrix (QTM) definiert werden, die für Temperaturen $T > 0$ die wichtige Eigenschaft besitzt, dass ihr größter Eigenwert Λ_0 immer von allen anderen durch eine Lücke getrennt ist. Dadurch können im thermodynamischen Limes, d.h. für die Kettenlänge gilt $L \rightarrow \infty$, thermodynamische Größen, wie thermodynamische Potentiale, Erwartungswerte lokaler Operatoren und Korrelationsfunktionen, mit dem größten Eigenwert und den zugehörigen linken und rechten Eigenvektoren berechnet werden. Wenn zusätzlich die nächstführenden Eigenwerte der QTM bekannt sind, können sogar Korrelationslängen bestimmt werden. Diese Methode kann auf jedes eindimensionale Quantensystem mit kurzreichweitiger Wechselwirkung angewandt werden.

Mit der Kenntnis des größten Eigenwerts der QTM ist es demnach möglich alle thermodynamischen Größen zu berechnen. Für integrable Modelle verwendet man dazu den Bethe-Ansatz [11]. Für alle anderen Modelle müssen numerische Methoden verwendet werden. Die Dichtematrix-Renormierungsgruppe (DMRG) [14] ist beispielsweise gut geeignet, um physikalische Eigenschaften bei $T = 0$ zu berechnen. Dazu wird der sehr große Hilbertraum der Dimension S^L einer Spinkette mit dem Spin S und der Länge L durch eine kleine Anzahl von Zuständen (der Größenordnung L) beschrieben. Diese Zustände werden mittels einer iterativen Methode optimal ausgewählt. In der Transfermatrix-Renormierungsgruppe (TMRG) wird nun die DMRG-Methode auf die QTM angewandt. Dadurch können thermodynamische Größen durch den größten Eigenwert der QTM im thermodynamischen Limes exakt berechnet werden, während die imaginäre Zeitrichtung (hier: Temperatur) mit der DMRG-Methode behandelt wird. Mit der TMRG-Methode können so thermodynamische Größen bei endlicher Temperatur im thermodynamischen Limes berechnet werden. Dadurch hat die TMRG-Methode verglichen mit anderen numerischen Methoden große Vorteile. Sie ist sogar gegenüber der Quanten-Monte-Carlo-Methode (QMC) konkurrenzfähig. Im Gegensatz zur QMC-Methode führt die TMRG-Methode den thermodynamischen Limes exakt aus. Außerdem gibt es kein Minuszeichen-Problem wie in der QMC-Methode für fermionische Systeme. In dieser Arbeit wurde erklärt, wie die TMRG-Methode funktioniert. Dazu wurden zwei verschiedene Trotter-Suzuki-Zerlegungen betrachtet und erläutert, wie mit der QTM physikalische Größen berechnet werden. Desweiteren wurde der DMRG-Algorithmus mit den QTM verbunden, um die thermodynamischen Größen über einen großen Temperaturbereich berechnen zu können.

Desweiteren ist die Genauigkeit der TMRG-Methode überprüft worden. Dazu wurden zum Hubbard-Modell thermodynamische Größen wie die spezifische Wärme und die Suszeptibilität berechnet und mit den exakten Ergebnissen aus dem Bethe-Ansatz [41] verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass die TMRG-Methode über einen weiten Temperaturbereich

sehr genaue Ergebnisse liefert. Weiterhin wurden zwei Fehlerquellen diskutiert. Zum einen existiert der sog. Trotter-Suzuki-Fehler aufgrund der Trotter-Suzuki-Zerlegung mit dem Parameter ϵ . Es konnte gezeigt werden, dass dieser Fehler von der Größenordnung $\mathcal{O}(\epsilon^2)$ ist und bei hohen und mittleren Temperaturen der dominierende Fehler ist. Zum anderen gibt es noch den Trunkierungsfehler. Dieser Fehler dominiert bei tiefen Temperaturen und hängt von der Anzahl der mitgenommenen Zustände für die Trunkierung des Hilbertraums ab. Im Gegensatz zum Trotter-Suzuki-Fehler kann dieser Fehler nicht so einfach kontrolliert werden. Die einzige Möglichkeit gute Ergebnisse bei sehr tiefen Temperaturen zu erzielen, ist demnach die Anzahl der mitgenommenen Zustände zu erhöhen.

Die TMRG-Methode ist weiterhin auf eine antiferromagnetische Spin-1/2 Heisenberg-Kette (AFHK) mit einem gestagerten Magnetfeld angewandt worden, um die Materialien Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat und Kupfer-Benzoesäure zu modellieren. Beide Materialien zeigen aufgrund ihres alternierenden Landé-Tensors und der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung eine richtungsabhängige Magnetisierung. Wirkt das angelegte Magnetfeld entlang der magnetischen Hauptachse a'' , so verhalten sich beide Materialien wie ideale isotrope Spin-1/2 Heisenberg-Ketten. Ändert man allerdings die Richtung des externen Magnetfelds der Stärke H , so bildet sich ein effektives gestagertes Magnetfeld der Stärke cH senkrecht zur Magnetfeldrichtung. In dieser Arbeit wurden TMRG-Rechnungen durchgeführt, um die Magnetisierung beider Stoffe in Abhängigkeit von der Stärke und der Richtung des externen Magnetfelds bei verschiedenen Temperaturen zu berechnen und mit den experimentellen Daten zu vergleichen. Aufgrund der guten Übereinstimmung der theoretischen und experimentellen Daten konnten sowohl der Proportionalitätsfaktor c als auch der Landé-Faktor g beider Materialien bestimmt werden.

Zusätzlich wurde das Verhalten der gestagerten Magnetisierung in diesen Systemen mit der TMRG-Methode untersucht und mit der Feldtheorie [48] verglichen. Es konnte gezeigt werden, dass sich die gestagerte Magnetisierung m_s bei $T = 0$ wie $m_s \propto H^{1/3}$ und bei endlichen Temperaturen linear verhält. Ebenso konnte bestätigt werden, dass die Suszeptibilität einer gestagerten Spin-1/2 AFHK wie $\chi(T) \propto 1/T$ divergiert. Dadurch konnte die Divergenz in den Experimenten als intrinsische Eigenschaft des Modells bzw. des Materials erklärt und die Annahme widerlegt werden, dass hier dieses Verhalten durch paramagnetische Störstellen entsteht.

In Kapitel 4 dieser Arbeit wurde eine dimerisierte Spin-1/2 AFHK untersucht, um das Material Vanadyl-Diphosphat zu modellieren. In einer Spin-1/2 AFHK wird eine Dimerisierung δ erzielt, indem in der Spinkette zwei verschiedene Kopplungsstärken $J_{1,2} = J(1 \pm \delta)$ definiert werden, die immer abwechselnd auftreten. Es konnte gezeigt werden, dass Vanadyl-Diphosphat keine relevanten Kopplungen zwischen den einzelnen Spinketten aufweist und somit eine Realisierung eines eindimensionalen Modells ist. Dazu hat ein Vergleich der TMRG-Ergebnisse mit den experimentellen Ergebnissen zur spezifischen Wärme und zu den Ausdehnungskoeffizienten beigetragen.

Üblicherweise gilt in Festkörpern die Grüneisen-Skalierung, d.h. die Ausdehnungskoeffizienten sind proportional zur spezifischen Wärme. Sobald aber eine Dimerisierung vorhanden ist, gilt diese Proportionalität nicht mehr. Anhand der Ausdehnungskoeffizienten können somit zusätzliche Eigenschaften festgestellt werden. In dimerisierten Spin-1/2 AFHK existieren beispielsweise zwei verschiedene Energieskalen. Die große Energieskala wird hier durch die Kopplungskonstante $J_1 = J(1 + \delta)$ und die kleine Energieskala durch die Anregungslücke Δ beschrieben. Aufgrund der Dimerisierung existiert in diesem System

eine Anregungslücke. Die isotrope Spin-1/2 AFHK hat keine Anregungslücke. In dieser Arbeit konnte gezeigt werden, dass diese beiden Energieskalen natürlicherweise in einer dimerisierten Spin-1/2 AFHK vorkommen. Zusätzliche Kopplungen zwischen den einzelnen Spinketten wurden demnach nicht benötigt, um die auftretenden physikalischen Anomalien zu erklären. Eine Anomalie tritt als Schulter in der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen in Erscheinung. Diese Anomalie tritt wegen der Anregungslücke auf. Eine weitere Anomalie ist in den Ausdehnungskoeffizienten zu erkennen. Entlang der Spinkette gemessen, nimmt der Ausdehnungskoeffizient hier bei tiefen Temperaturen negative Werte an. Es bildet sich sogar bei $T \approx 13$ K ein Minimum. Bei hohen Temperaturen ist der Ausdehnungskoeffizient zwar wieder positiv, aber im Vergleich zu anderen Festkörpern ziemlich klein. Diese Eigenschaft ist wiederum eine Folge der Dimerisierung, bzw. der zwei Energieskalen. In schwach dimerisierten Spin-1/2 AFHK sind diese beiden Energieskalen klar voneinander getrennt und können somit mit experimentellen und theoretischen Methoden nachgewiesen werden. In dieser Arbeit konnte nicht nur das gesamte temperaturabhängige Verhalten der Ausdehnungskoeffizienten, insbesondere das obige Minimum, berechnet werden. Es konnte auch gezeigt werden, auf welchen physikalischen Prinzipien diese Anomalie beruht. Ein zusätzlicher Beitrag in der dimerisierten Spin-1/2 AFHK führt nämlich zur Verletzung der Grüneisen-Skalierung.

Ein weiteres Hauptthema dieser Arbeit war die Thermodynamik des erweiterten Hubbard-Modells (EHM). Dazu wurde zunächst das eindimensionale Hubbard-Modell beschrieben und erklärt, wie die Fermi-Statistik in der TMRG-Methode mittels einer Jordan-Wigner-Transformation berücksichtigt werden kann. Danach wurde das Hubbard-Modell, das nur eine Coulomb-Abstoßung U am selben Platz berücksichtigt, durch eine zusätzliche Nächste-Nachbar-Coulomb-Abstoßung V erweitert. Obwohl dieses Modell schon seit mehr als zwei Jahrzehnten untersucht wird, wird sein vielfältiges Phasendiagramm immer noch kontrovers in der Literatur diskutiert. Einigkeit gibt es nur darin, dass bei $U \approx 2V$ ein Phasenübergang existiert, der die Phase mit einer Ladungsdichtewelle (CDW) von der Phase mit der Spindichtewelle (SDW) trennt. Allerdings wird sowohl die Ordnung dieses Phasenübergangs als auch die Existenz einer zusätzlichen Phase mit langreichweitiger Dimer-Ordnung (BOW) in einem mehr oder weniger ausgedehntem Gebiet um $U \approx 2V$ weiterhin diskutiert.

In dieser Arbeit wurden die zahlreichen Phasenübergänge mit thermodynamischen Größen des EHM untersucht. Dazu wurden z.B. die magnetische Suszeptibilität χ_s und die isotherme Kompressibilität χ_c mit der TMRG-Methode berechnet. Im Bereich starker Kopplung wurden zusätzlich die Ladungslücke in der SDW-Phase, sowie die Ladungslücke und die Spinlücke in der CDW-Phase in niedrigster Ordnung Störungsrechnung berechnet. Diese Ergebnisse konnten durch die TMRG-Ergebnisse zu χ_s und χ_c bestätigt werden. Zwischen der CDW-Phase und SDW-Phase konnte so ein Phasenübergang erster Ordnung festgestellt werden. Im Bereich schwacher Kopplung sind die Phasenübergänge kontinuierlich. Es konnte gezeigt werden, dass sich alle Kurven zur isothermen Kompressibilität für ein festes U und unterschiedlichen V als Funktion der Temperatur (in einem Punkt) schneiden, falls man sie in der SDW- oder BOW-Phase berechnet. In der CDW-Phase schneiden sich diese Kurven nicht mehr. Mit diesem Kriterium konnte die Lage des Phasenübergangs zweiter Ordnung zur CDW-Phase sehr genau bestimmt werden. Die SDW-Phase hingegen ist durch einen Phasenübergang vom Kosterlitz-Thouless-Typ begrenzt. An dieser Linie öffnet sich die Spinlücke exponentiell langsam. Mit der TMRG-Methode war es dennoch möglich die Spinlücke in der CDW- und BOW-Phase zu berechnen, sodass mit einem feldtheoretischen

Fit der Phasenübergang genau lokalisiert werden konnte. Da sich beide Phasenübergangslinien unterscheiden, konnte hier nachgewiesen werden, dass dazwischen eine zusätzliche Phase existiert. Mit der TMRG-Methode konnte weiterhin bewiesen werden, dass diese Phase langreichweitige Dimer-Ordnung zeigt und somit die BOW-Phase sein muss. Dazu wurden Korrelationslängen und statische Suszeptibilitäten untersucht. Desweiteren konnte ein trikritischer Punkt bestimmt werden, an dem sich die Ordnung des Phasenübergangs ändert. An diesem Punkt endet sowohl die Linie des Phasenübergangs erster Ordnung als auch die BOW-Phase. Mit der TMRG-Methode konnte somit das gesamte Phasendiagramm bestimmt werden.

A Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung

Die in Kapitel 3 untersuchten Materialien Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat und Kupfer-Benzolat können mithilfe der isotropen Spin-1/2 Heisenberg-Kette und einem effektiven gestagerten Magnetfeld theoretisch beschrieben werden. In diesem Anhang wird nun erklärt, wie dieses Modell aus einer XXX-Kette mit Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung (DM-WW) (s. Gln. (3.5) und (3.6))

$$\hat{H} = J \sum_i \vec{S}_i \vec{S}_{i+1} - \sum_i (-1)^i \vec{D} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_{i+1}) \quad (\text{A.1})$$

hervorgeht. Der DM-Vektor \vec{D} zeige o.B.d.A. in die z -Richtung $\vec{D} = (0, 0, D)^T$, sodass sich der Hamiltonoperator zu

$$\hat{H} = J \sum_i [S_i^x S_{i+1}^x + S_i^y S_{i+1}^y + S_i^z S_{i+1}^z] - \sum_i (-1)^i D (S_i^x S_{i+1}^y - S_i^y S_{i+1}^x) \quad (\text{A.2})$$

vereinfacht. Werden nun die Auf- und Absteigeoperatoren $S^\pm = S^x \pm iS^y$

$$\begin{aligned} S^x &= \frac{1}{2} (S^+ + S^-) \\ S^y &= \frac{1}{2i} (S^+ - S^-) \end{aligned} \quad (\text{A.3})$$

in den Hamiltonoperator eingesetzt, so erhält man:

$$\hat{H} = \frac{J}{2} \sum_i [S_i^+ S_{i+1}^- + S_i^- S_{i+1}^+ + 2S_i^z S_{i+1}^z] - i \frac{D}{2} \sum_i (-1)^i (S_i^+ S_{i+1}^- - S_i^- S_{i+1}^+) \quad (\text{A.4})$$

Mit der Definition $\mathcal{J} \equiv J + iD$ geht der Hamiltonoperator über in:

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_i [\mathcal{J} S_{2i-1}^+ S_{2i}^- + \mathcal{J}^* S_{2i}^+ S_{2i+1}^- + h.c.] + J \sum_i [S_{2i-1}^z S_{2i}^z + S_{2i}^z S_{2i+1}^z], \quad (\text{A.5})$$

wobei * die komplexe Konjugation kennzeichnet. Wie in Kapitel 3.1.2 beschrieben, wird nun eine Drehung im Spinraum um den DM-Vektor \vec{D} mit einem Winkel von $\pm \arctan(D/J)/2$ auf geraden/ungeraden Plätzen durchgeführt, um die DM-WW in ein gestagertes Magnetfeld zu überführen. Die Drehung im Spinraum kann mit $\tan \alpha = D/J$ als

$$S_{2i}^+ \longrightarrow S_{2i}^+ e^{i\alpha/2} \quad S_{2i\pm 1}^+ \longrightarrow S_{2i\pm 1}^+ e^{-i\alpha/2} \quad (\text{A.6})$$

$$S_{2i}^- \longrightarrow S_{2i}^- e^{-i\alpha/2} \quad S_{2i\pm 1}^- \longrightarrow S_{2i\pm 1}^- e^{i\alpha/2} \quad (\text{A.7})$$

dargestellt werden. Eingesetzt in den Hamiltonoperator liefert das

$$\hat{H} = \frac{1}{2} \sum_i \left[\underbrace{\mathcal{J} e^{-i\alpha}}_{|\mathcal{J}|} S_{2i-1}^+ S_{2i}^- + \underbrace{\mathcal{J}^* e^{i\alpha}}_{|\mathcal{J}|} S_{2i}^+ S_{2i+1}^- + h.c. \right] + J \sum_i [S_{2i-1}^z S_{2i}^z + S_{2i}^z S_{2i+1}^z]. \quad (\text{A.8})$$

Nun werden erneut die Relationen der Auf- und Absteigeoperatoren (A.3) in den Hamiltonoperator eingesetzt, um den folgenden Ausdruck zu erhalten:

$$\hat{H} = |\mathcal{J}| \sum_i \left[S_i^x S_{i+1}^x + S_i^y S_{i+1}^y \right] + J \sum_i S_i^z S_{i+1}^z. \quad (\text{A.9})$$

Dieses ist der Hamiltonoperator einer XXZ-Kette. Er geht unter der erfüllten Annahme $D \ll J$ in den Hamiltonoperator einer XXX-Kette über. Diese Annahme ist erfüllt, weil $|\mathcal{J}| = \sqrt{J^2 + D^2} \rightarrow J$ gilt.

Da die angewandte Drehung im Spinraum die z -Komponente des Hamiltonoperators nicht verändert, wird ein angelegtes Magnetfeld in z -Richtung nur durch den Zusatzterm $-H \sum_i S_i^z$ in (A.9) dargestellt. Wie in Kapitel 3 ausführlich beschrieben, stimmt dieses auch mit den experimentellen Ergebnissen überein. Schließlich verhalten sich beide Materialien für ein Magnetfeld entlang der a'' -Achse wie eine XXX-Kette. Es bleibt noch die Frage zu beantworten, was eine Drehung im Spinraum auf ein Magnetfeld in x -Richtung, geschrieben als $-H \sum_i S_i^x$, bewirkt. Setzt man dazu in den Term $-H \sum_i S_i^x$ die Auf- und Absteigeoperatoren (A.3) ein, führt dann die Drehung im Spinraum aus und setzt erneut die Relationen der Auf- und Absteigeoperatoren ein, so erhält man

$$-H \sum_i S_i^x = -H \sum_i \left[\cos \frac{\alpha}{2} S_i^x + (-1)^i \sin \frac{\alpha}{2} S_i^y \right]. \quad (\text{A.10})$$

Mit der Annahme $D \ll J$ gilt $\tan \alpha = D/J \approx D/J$ und somit $\cos \frac{\alpha}{2} \approx 1$, sowie $\sin \frac{\alpha}{2} \approx \frac{D}{2J}$. Damit ergibt sich

$$-H \sum_i S_i^x \approx -H \sum_i \left[S_i^x + (-1)^i \frac{D}{2J} S_i^y \right]. \quad (\text{A.11})$$

Somit wird ein Magnetfeld entlang der x -Richtung einerseits in ein homogenes Magnetfeld entlang der x -Richtung und andererseits in ein dazu senkrecht stehendes gestagertes Magnetfeld mit der Stärke $c = \frac{DH}{2J}$ aufgespalten. Ohne Berücksichtigung eines anisotropen Landé-Tensors, stimmt das mit (3.9b) überein. Legt man allerdings ein homogenes Magnetfeld der Art $H(\sin \beta, 0, \cos \beta)^T$ an, so erhält man ein gestagertes Magnetfeld der Art $\frac{1}{2J} (\vec{H} \times \vec{D}) \cdot (0, 1, 0)^T$, welches ohne Berücksichtigung eines anisotropen Landé-Tensors genau mit (3.9b) übereinstimmt. Zur Erklärung von (3.9b), sollte noch erwähnt werden, dass der zweite Term allein auf den anisotropen Teil des Landé-Tensors zurückgeführt werden kann.

B Klassifizierung kritischer Punkte

In diesem Anhang werden zuerst verschiedene Arten von Phasenübergängen (PÜ) kurz beschrieben, um schließlich den kritischen Punkt im Phasendiagramm des Wassers näher zu erklären (näheres s. [75, 131]). Danach werden verschiedene Arten von kritischen Punkten, wie z.B. trikritische Punkte, eingeführt.

Die Thermodynamik eines Stoffes (z.B. Wasser) kann mithilfe von thermodynamischen Potentialen beschrieben werden. Die innere Energie $U(S, V)$, die von der Entropie S und dem Volumen V abhängt, ist solch ein thermodynamisches Potential. Eine Phase, d.h. ein konkreter physikalischer Zustand des Systems, ist stabil, wenn für alle $dS, dV > 0$ die Krümmung des Potentials $d^2U > 0$ positiv definit ist. Daraus folgen diese Bedingungen:

$$\left. \frac{\partial T}{\partial S} \right|_V = \frac{T}{c_V} > 0, \quad (\text{B.1})$$

$$\left. \frac{\partial P}{\partial V} \right|_T = \frac{1}{V\kappa_T} > 0. \quad (\text{B.2})$$

Hier ist c_V die spezifische Wärme, T die Temperatur, P der Druck und κ_T die isotherme Kompressibilität. Phasenübergänge gibt es nur dort, wo die obigen Stabilitätsbedingungen gebrochen werden. Dann nimmt das System mehrere Phasen gleichzeitig an. Bei Wasser geschieht das z.B. unter Normaldruck bei einer Temperatur von $T = 0^\circ \text{C}$ (s. Abb. B.1). Dort koexistieren dann Eis (feste Phase) und Wasser (flüssige Phase). Am Tripelpunkt koexistieren sogar alle drei Phasen.

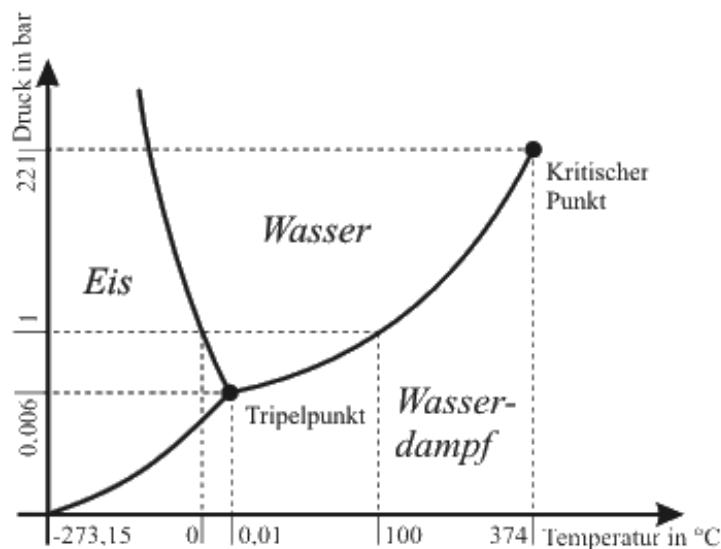


Abbildung B.1: Das Phasendiagramm von Wasser.

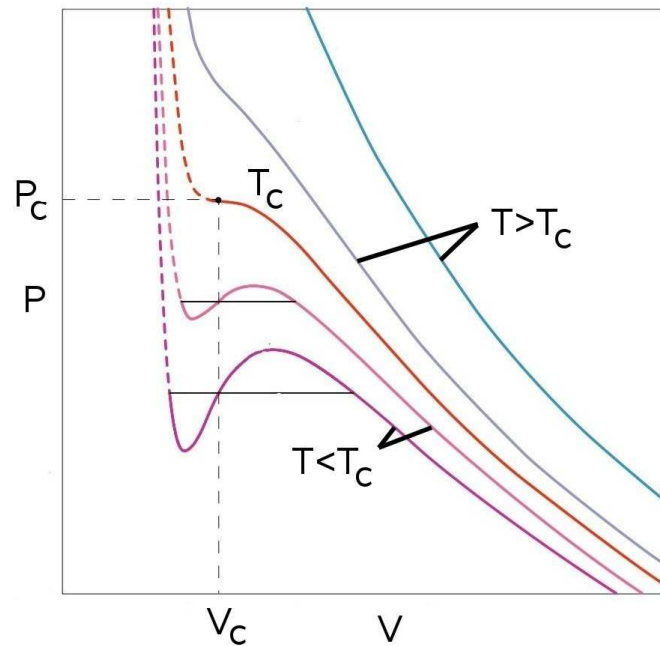


Abbildung B.2: Schematisches PV-Phasendiagramm der van-der-Waals Gleichung. Die waagerechten Linien bezeichnen die Maxwell-Konstruktion, die so gebildet wird, sodass die einzelnen Kurven die Stabilitätsbedingung (B.2) erfüllen. Die gestrichelten Linien bezeichnen die flüssige Phase und die durchgezogenen Linien die gasförmige Phase. Hinweis: Oberhalb der kritischen Temperatur können diese beiden Phasen nicht mehr unterschieden werden, weswegen diese Linien durch durchgezogenen Linien gekennzeichnet werden.

Anhand der Verdampfungskurve (flüssig-gasförmig) des Wassers wird nun ein PÜ erster Ordnung erklärt, der gut durch die van-der-Waals Gleichung

$$P = \frac{NRT}{V - bN} - \frac{N^2a}{V^2} \quad (\text{B.3})$$

beschrieben wird, wobei N die Teilchenzahl ist, sowie a und b materialspezifische Parameter sind. In Abb. B.2 werden diese Kurven für verschiedene Temperaturen in einem PV-Diagramm gezeigt. Bei einer festen Temperatur unterhalb der kritischen Temperatur T_c erkennt man, dass es für einen Druck zwei verschiedene Volumina gibt. Demnach wird das Volumen springen, wenn der Druck isotherm geändert wird. Nach Ehrenfest [75] wird bei einem PÜ n -ter Ordnung die n -te Ableitung eines thermodynamischen Potentials springen. Hier handelt es sich also um einen PÜ erster Ordnung. Oberhalb der kritischen Temperatur kann solch ein Verhalten nicht mehr erkannt werden. Dort können die flüssige und feste Phase also nicht mehr voneinander unterschieden werden. Das Ende einer PÜ-Linie wird als kritischer Punkt bezeichnet (s. Abb. B.1).

Die Krümmung der inneren Energie d^2U für alle $dS, dV > 0$ sollte demnach weder positiv definit (stabil) noch indefinit (PÜ 1. Ordnung) sein, wenn ein PÜ zweiter Ordnung be-

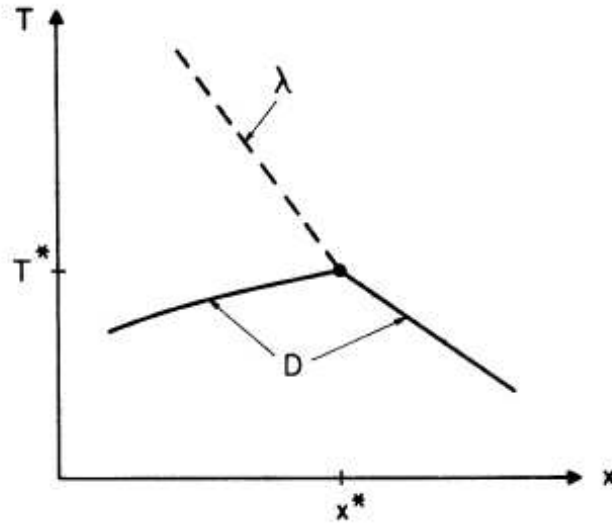


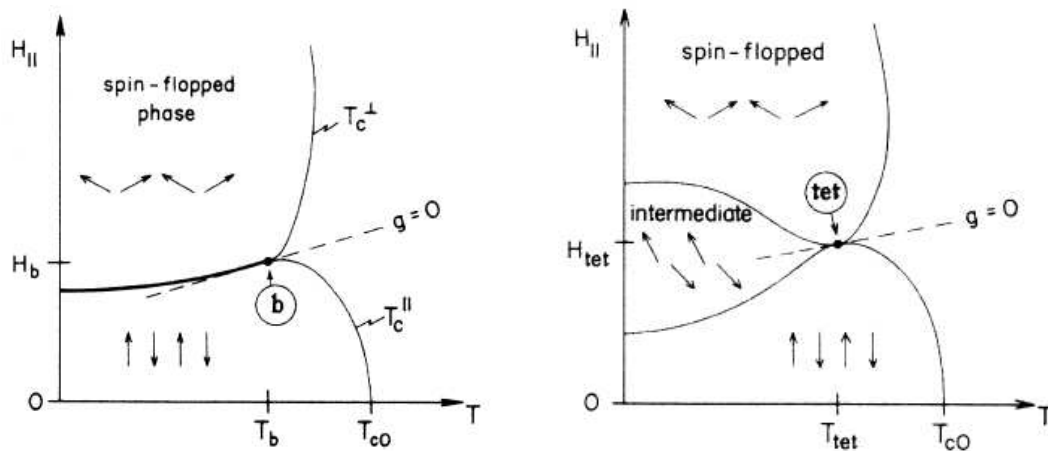
Abbildung B.3: Das schematische Phasendiagramm für ein $\text{He}^3\text{-He}^4$ -Gemisch in der Nähe des trikritischen Punkts. Die Two-Fluid-Koexistenzlinien werden mit D bezeichnet und die gestrichelte Linie ist die Linie des Lambda-Übergangs (PÜ 1. Ordnung). x bezeichnet das Mischungsverhältnis. Diese Abbildung wurde Ref. [132] entnommen.

schrieben werden soll. Erlaubt man weiterhin, dass ein PÜ zweiter Ordnung nicht nur einen Sprung in der zweiten Ableitung eines thermodynamischen Potentials haben darf, sondern auch die Divergenz dieser Größe ausreicht, so sollte die Krümmung der inneren Energie d^2U positiv semidefinit sein. Ist das der Fall, ergeben sich die folgenden asymptotischen Beziehungen an der Divergenz:

$$\frac{c_v}{T} \rightarrow \infty, \quad (\text{B.4})$$

$$V\kappa_T \rightarrow \infty. \quad (\text{B.5})$$

Nachdem oben schon ein kritischer Punkt beschrieben wurde, werden nun bikritische, trikritische und tetrakritische Punkte erklärt. Ein trikritischer Punkt separiert die PÜ-Linie erster Ordnung von der PÜ-Linie höherer Ordnung (s. Abb. B.3) [132–134]. Solch einen PÜ gibt es beispielsweise in einem $\text{He}^3\text{-He}^4$ -Gemisch oder im trikritischen Ising-Modell [134]. Allerdings verschwinden am bikritischen Punkt zwei Ordnungsparameter, weil zwei geordnete Phasen an diesem Punkt in eine ungeordnete Phase übergehen [135]. Das ist in Abbildung B.4a anhand eines anisotropen Antiferromagneten in einem uniformen Magnetfeld gezeigt. An einem tetrakritischen Punkt gibt es zusätzlich noch eine geordnete Zwischenphase. Mit diesen Informationen zu den bikritischen und trikritischen Punkten wird deutlich, dass es im erweiterten Hubbard-Modell (EHM) (s. Kap. 5) keinen bikritischen Punkt geben kann. Schließlich hat das EHM keine ungeordnete Phase, die für einen bikritischen Punkt notwendig ist. Demnach handelt es sich bei dem kritischen Punkt im EHM um einen trikritischen Punkt.



(a) Ein bikritischer Punkt. Die fettgedruckte Linie kennzeichnet einen PÜ erster Ordnung, die anderen Linien entsprechen PÜ zweiter Ordnung.

(b) Ein tetrakritischer Punkt. Der Unterschied zum bikritischen Punkt besteht in der Existenz einer zusätzlichen geordneten Zwischenphase.

Abbildung B.4: Schematische Phasendiagramme eines anisotropen Antiferromagneten in einem uniformen Magnetfeld mit einem bikritischen bzw. tetrakritischen Punkt.
Hinweis: Rechts neben den PÜ-Linien zweiter Ordnung existiert nur eine ungeordnete Phase.
Diese Abbildungen wurden Ref. [135] entnommen.

Literaturverzeichnis

- [1] F. Haldane. *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1153 (1983).
- [2] D. Dender, P. R. Hammar, D. H. Reich, C. Broholm und G. Aeppli. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 1750 (1997).
- [3] M. B. Stone, D. H. Reich, C. Broholm, K. Lefmann, C. Rischel, C. P. Landee und M. M. Turnbull. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 037205 (2003).
- [4] N. D. Mermin und H. Wagner. *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 (1966).
- [5] P. C. Hohenberg. *Phys. Rev.* **158**, 383 (1967).
- [6] Sachdev. „Quantum Phase Transitions“. Cambridge University Press (1999).
- [7] J. A. Bednorz und K. A. Müller. *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [8] Schilling, M. Cantoni, J. D. Guo und H. R. Ott. *Nature* **363**, 56 (1993).
- [9] L. Gao, Y. Y. Xue, F. Chen, Q. Xiong, R. L. Meng, D. Ramirez, C. W. Chu, J. H. Eggert und H. K. Mao. *Phys. Rev. B* **50**, 4260 (1994).
- [10] R. J. Baxter. „Exactly Solved Models in Statistical Mechanics“. Academic Press (1982).
- [11] A. Klümper. *Z. Phys. B* **91**, 507 (1993).
- [12] C. Lanczos. *J. Research of the National Bureau of Standards* **45**, 255 (1950).
- [13] K. G. Wilson. *Rev. Mod. Phys.* **47**, 773 (1975).
- [14] S. R. White. *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2863 (1992).
- [15] I. Peschel, X. Wang, M. Kaulke und K. Hallberg. „Density-Matrix Renormalization, Lecture Notes in Physics“, Bd. 528. Springer, Berlin (1999). und darin enthaltende Referenzen.
- [16] N. Metropolis, A. Rosenbluth, M. Rosenbluth, A. Teller und E. Teller. *J. Chem. Phys.* **21**, 1087 (1953).
- [17] T. Nishino. *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 3598 (1995).
- [18] H. F. Trotter. *Proc. Amer. Math. Soc.* **10**, 545 (1959).
- [19] M. Suzuki. *Commun. Math. Phys.* **51**, 183 (1976).
- [20] M. Suzuki. *Phys. Rev. B* **31**, 2957 (1985).

- [21] R. J. Bursill, T. Xiang und G. A. Gehring. *J. Phys. Cond. Mat.* **8**, L583 (1996).
- [22] X. Wang und T. Xiang. *Phys. Rev. B* **56**, 5061 (1997).
- [23] N. Shibata. *J. Phys. Soc. Jpn.* **66**, 2221 (1997).
- [24] S. Eggert und S. Rommer. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 1690 (1998).
- [25] A. Klümper, R. Raupach und F. Schönfeld. *Phys. Rev. B* **59**, 3612 (1999).
- [26] B. Ammon, M. Troyer, T. M. Rice und N. Shibata. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 3855 (1999).
- [27] J. Sirker und G. Khaliullin. *Phys. Rev. B* **67**, 100408(R) (2003).
- [28] J. Sirker. *Phys. Rev. B* **69**, 104428 (2004).
- [29] T. Mutou, N. Shibata und K. Ueda. *Phys. Rev. Lett.* **81**, 4939 (1998).
- [30] J. Sirker und A. Klümper. *Europhys. Lett.* **60**, 262 (2002).
- [31] J. Sirker und A. Klümper. *Phys. Rev. B* **66**, 245102 (2002).
- [32] F. Naef, X. Wang, X. Zotos und W. von der Linden. *Phys. Rev. B* **60**, 359 (1999).
- [33] S. Rommer und S. Eggert. *Phys. Rev. B* **59**, 6301 (1999).
- [34] J. Sirker und A. Klümper. *Phys. Rev. B* **71**, 241101(R) (2005).
- [35] M. Suzuki und M. Inoue. *Prog. Theor. Phys.* **78**, 787 (1987).
- [36] X. Wang und T. Xiang. *Phys. Rev. B* **56**, 5061 (1997).
- [37] J. Sirker. „Transfer matrix approach to thermodynamics and dynamics of one-dimensional quantum systems“. Dissertation, Universität Dortmund (2002).
- [38] J. Sirker und A. Klümper. *Phys. Rev. B* **66**, 245102 (2002).
- [39] <http://www.caam.rice.edu/software/ARPACK>.
- [40] <http://www.netlib.org/lapack>.
- [41] G. Jüttner, A. Klümper und J. Suzuki. *Nucl. Phys. B* **522**, 471 (1998).
- [42] E. Ising. *Z. Phys.* **31**, 253 (1925).
- [43] W. Heisenberg. *Z. Phys.* **49**, 619 (1928).
- [44] H. Bethe. *Z. Phys.* **71**, 205 (1931).
- [45] A. Fledderjohann, C. Gerhardt, K. H. Mütter, A. Schmitt und M. Karbach. *Phys. Rev. B* **54**, 7168 (1996).
- [46] A. Klümper und D. Johnston. *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4701 (2000).

-
- [47] N. W. Ashcroft und N. D. Mermin. „Festkörperphysik, 2. Auflage“. Oldenbourg Wissenschaftsverlag (2005).
- [48] I. Affleck und M. Oshikawa. *Phys. Rev. B* **60**, 1038 (1999).
- [49] I. Dzyaloshinskii. *J. Phys. Chem. Solids* **4**, 241 (1958).
- [50] T. Moriya. *Phys. Rev.* **120**, 91 (1960).
- [51] M. Oshikawa und I. Affleck. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2883 (1997).
- [52] I. Affleck und M. Oshikawa. *Phys. Rev. B* **62**, 9200 (2000).
- [53] R. Feyerherm, S. Abens, D. Günther, T. Ishida, M. Meißner, M. Meschke, T. Nogami und M. Steiner. *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 8495 (2000).
- [54] I. Affleck, D. Gepner, H. J. Schulz und T. Ziman. *J. Phys. A: Math. Gen.* **22**, 511 (1989).
- [55] A. U. B. Wolter u. a.. *Phys. Rev. Lett.* **94**, 057204 (2005).
- [56] T. Ishida und T. Nogami. *Recent Res. Dev. Pure Appl. Chem.* **1**, 1 (1997).
- [57] T. Ishida, K. Nakayama, M. Nakagawa, W. Sato, Y. Ishikawa, M. Yasui, F. Iwasaki und T. Nogami. *Synth. Met.* **85**, 1655 (1997).
- [58] R. Feyerherm, T. Ishida, T. Nogami und M. Steiner. *Mol. Cryst. Liq. Cryst.* **335**, 947 (1999).
- [59] J. Bonner und M. Fisher. *Phys. Rev.* **135**, A640 (1964).
- [60] H. Schulz. *Phys. Rev. Lett.* **77**, 2790 (1996).
- [61] A. U. B. Wolter u. a.. *Phys. Rev. B* **68**, 220406(R) (2003).
- [62] A. U. B. Wolter. „Longitudinal and Transverse Magnetization in Low-Dimensional Molecule-based Quantum Magnets“. Dissertation, Universität Braunschweig (2006).
- [63] A. Klümper. *Eur. Phys. J. B* **5**, 677 (1999).
- [64] A. U. B. Wolter. Private Kommunikation (2005).
- [65] S. A. Zvyagin, A. K. Kolezhuk, J. Krzystek und R. Feyerherm. *Phys. Rev. Lett.* **93**, 027201 (2004).
- [66] H. Koizumi, K. Osaki und T. Watanbé. *J. Phys. Soc. Japan* **18**, 117 (1963).
- [67] K. Oshima, K. Okuda und M. Date. *J. Phys. Soc. Japan* **44**, 757 (1978).
- [68] M. Date, H. Yamazaki, M. Motokawa und S. Tazawa. *Suppl. Progr. Theor. Phys.* **46**, 194 (1970).
- [69] F. H. L. Essler. *Phys. Rev. B* **59**, 14376 (1999).

- [70] S. Glocke, A. Klümper, H. Rakoto, J. M. Broto, A. U. B. Wolter und S. Süllo. *Phys. Rev. B* **73**, 220403(R) (2006).
- [71] J. Z. Zhao, X. Q. Wang, Z. B. Su und L. Yu. *Phys. Rev. Lett.* **90**, 207204 (2003).
- [72] J. C. Bonner, H. W. J. Blöte, J. W. Bray und I. S. Jacobs. *J. Appl. Phys.* **50**, 1810 (1979).
- [73] D. C. Johnston, R. K. Kremer, M. Troyer, X. Wang, A. Klümper, S. L. Bud'ko, A. F. Panchula und P. C. Canfield. *Phys. Rev. B* **61**, 9558 (2000).
- [74] T. H. K. Barron, J. G. Collins und G. K. White. *Adv. Phys.* **29**, 609 (1980).
- [75] H. B. Callen. „Thermodynamics“. John Wiley & Sons, Inc. (1960).
- [76] L. Zhu, M. Garst, A. Rosch und Q. Si. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 066404 (2003).
- [77] B. Wolf. private Mitteilung (2005).
- [78] M. Azuma, T. Saito, Y. Fujishiro, Z. Hiroi, M. Takano, F. Izumi, T. Kamiyama, T. Ikeda, Y. Narumi und K. Kindo. *Phys. Rev. B* **60**, 10145 (1999).
- [79] D. C. Johnston, T. Saito, M. Azuma, M. Takano, T. Yamauchi und Y. Ueda. *Phys. Rev. B* **64**, 134403 (2001).
- [80] A. W. Garrett, S. E. Nagler, D. A. Tennant, B. C. Sales und T. Barnes. *Phys. Rev. Lett.* **79**, 745 (1997).
- [81] C. Gross, M. Anton, A. Löffert, A. Prokofiev und W. Assmus. *High Press. Res.* **22**, 581 (2002).
- [82] O. K. Andersen und T. Saha-Dasgupta. *Phys. Rev. B* **62**, R16219 (2000).
- [83] A. Brühl, B. Wolf, M. Anton, C. Gross, W. Assmus, R. Valenti, S. Glocke, A. Klümper, T. Saha-Dasgupta, B. Rahaman und M. Lang. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 057204 (2007).
- [84] T. Saito, T. Terashima, M. Azuma, M. Takano, T. Goto, H. Ohta, W. Utsumi, P. Bordet und D. C. Johnston. *J. Solid State Chem.* **153**, 124 (2000).
- [85] R. Pott und R. Schefzyk. *J. Phys. E* **16**, 444 (1983).
- [86] J. Müller, M. Lang, R. Helfrich, F. Steglich und T. Sasaki. *Phys. Rev. B* **65**, 140509 (2002).
- [87] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **276**, 238 (1963).
- [88] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **277**, 237 (1964).
- [89] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **281**, 401 (1964).
- [90] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **285**, 542 (1965).
- [91] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **296**, 82 (1967).

-
- [92] J. Hubbard. *Proc. R. Soc. (London) A* **296**, 100 (1967).
- [93] M. C. Gutzwiller. *Phys. Rev. Lett.* **10**, 159 (1963).
- [94] J. Kanamori. *Prog. Theor. Phys.* **30**, 275 (1963).
- [95] M. Born und J. R. Oppenheimer. *Ann. Physik Lpz.* **84**, 457 (1927).
- [96] M. Born und K. Huang. „Dynamical Theory of Crystal Lattices“. Oxford: The Clarendon Press (1954).
- [97] E. H. Lieb und F. Wu. *Phys. Rev. Lett.* **20**, 1445 (1968).
- [98] F. H. L. Essler, H. Frahm, F. Göhmann, A. Klümper und V. E. Korepin. „The One-Dimensional Hubbard Model“. Cambridge University Press (2005).
- [99] P. Jordan und E. Wigner. *Z. Phys.* **47**, 631 (1928).
- [100] E. Lieb, T. Schultz und D. Mattis. *Ann. Phys. (N.Y.)* **16**, 407 (1961).
- [101] T. Ishiguro und K. Yamaji. „Organic Superconductors“. Springer-Verlag, Berlin (1990).
- [102] H. G. Weiss. „Conjugated Conduction Polymers“. Springer-Verlag, Berlin (1992).
- [103] V. J. Emery, S. A. Kivelson und O. Zachar. *Phys. Rev. B* **56**, 6120 (1997).
- [104] V. J. Emery. „Highly Conducting One-Dimensional Solids“. Plenum, New York (1979).
- [105] J. E. Hirsch. *Phys. Rev. Lett.* **53**, 2327 (1984).
- [106] J. W. Cannon und E. Fradkin. *Phys. Rev. B* **41**, 9435 (1990).
- [107] J. W. Cannon, R. T. Scalettar und E. Fradkin. *ibid.* **44**, 5995 (1991).
- [108] J. Voit. *Phys. Rev. B* **45**, 4027 (1992).
- [109] P. G. J. van Dongen. *Phys. Rev. B* **49**, 7904 (1994).
- [110] G. P. Zhang. *Phys. Rev. B* **56**, 9189 (1997).
- [111] M. Nakamura. *J. Phys. Soc. Jpn.* **68**, 3123 (1999).
- [112] M. Nakamura. *Phys. Rev. B* **61**, 16377 (2000).
- [113] M. Tsuchiizu und A. Furusaki. *Phys. Rev. Lett.* **88**, 056402 (2002).
- [114] P. Sengupta, A. W. Sandvik und D. K. Campbell. *Phys. Rev. B* **65**, 155113 (2002).
- [115] E. Jeckelmann. *Phys. Rev. Lett.* **89**, 236401 (2002).
- [116] E. Jeckelmann. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 089702 (2003).
- [117] A. W. Sandvik, P. Sengupta und D. K. Campbell. *Phys. Rev. Lett.* **91**, 089701 (2003).

- [118] G. P. Zhang. *Phys. Rev. B* **68**, 153101 (2003).
- [119] A. W. Sandvik, L. Balents und D. K. Campbell. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 236401 (2004).
- [120] Y. Z. Zhang. *Phys. Rev. Lett.* **92**, 246404 (2004).
- [121] K.-M. Tam, S.-W. Tsai und D. K. Campbell. *Phys. Rev. Lett.* **96**, 036408 (2006).
- [122] S. Ejima und S. Nishimoto. *Phys. Rev. Lett.* **99**, 216403 (2007).¹
- [123] R. A. Bari. *Phys. Rev. B* **3**, 2662 (1971).
- [124] J. Sólyom. *Adv. Phys.* **28**, 201 (1979).
- [125] J. M. Kosterlitz und D. J. Thouless. *J. Phys. C* **6**, 1181 (1973).
- [126] J. M. Kosterlitz. *J. Phys. C* **7**, 1046 (1974).
- [127] M. Nakamura, A. Kitazawa und K. Nomura. *Phys. Rev. B* **60**, 7850 (1999).
- [128] G. Jüttner, A. Klümper und J. Suzuki. *Nucl. Phys. B* **487**, 650 (1997).
- [129] D. Vollhardt. *Phys. Rev. Lett.* **78**, 1307 (1997).
- [130] A. Kemper und A. Schadschneider. *Phys. Rev. B* **68**, 235102 (2003).
- [131] H. E. Stanley. „Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena“. Oxford University Press (1987).
- [132] R. B. Griffiths. *Phys. Rev. Lett.* **24**, 715 (1970).
- [133] R. B. Griffiths. *Phys. Rev. B* **7**, 545 (1972).
- [134] K. A. Seaton. *J. Phys. A: Math. Gen.* **35**, 1597 (2002).
- [135] M. E. Fisher und D. R. Nelson. *Phys. Rev. Lett.* **32**, 1350 (1974).

¹S. Ejima und S. Nishimoto haben Ihre Ergebnisse erst am 23.11.2007 veröffentlicht. Bei der Abgabe der Dissertation lag mir ein vorläufiges Manuskript von [122] vor. Außerdem habe ich persönlich mit S. Nishimoto gesprochen.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zur Durchführung dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt hierbei Herrn Prof. Dr. Andreas Klümper für die Betreuung der vorliegenden Arbeit. Seine zahlreichen Anregungen und seine stete Diskussionsbereitschaft waren immer sehr hilfreich.

Außerdem danke ich Dr. Jesko Sirker für die vielen Diskussionen, die wesentlich zur Entwicklung dieser Arbeit beitrugen.

Weiterhin danke ich Prof. Dr. Stefan Süllo und Dr. Anja U. B. Wolter für die Bereitstellung der experimentellen Daten und für die aufschlussreichen Diskussionen, sowie allen anderen, die das Projekt zum Kupfer-Pyrimidin-Dinitrat und Kupfer-Benzolat unterstützt haben.

Ebenso gebührt Frau Prof. Dr. Roser Valenti großer Dank. Ohne sie wäre das Projekt zum Vanadyl-Diphosphat niemals zustande gekommen. Prof. Dr. Michael Lang, Priv.-Doz. Dr. Bernd Wolf, Dipl.-Phys. Andreas Brühl und allen an diesem Projekt Beteiligten danke ich für die Diskussionsbereitschaft und die Überlassung der experimentellen Daten.

Bei Herrn Prof. Dr. Reinhard Hentschke bedanke ich mich für die Bereitschaft, das Zweitgutachten zu übernehmen. Ebenso danke ich den weiteren Mitgliedern des Prüfungsausschusses Prof. Dr. Ralf Koppmann und Priv.-Doz. Dr. Michael Karbach.

Von unschätzbarem Wert war das bereitwillige Korrekturlesen des Manuskripts von den Herren Priv.-Doz. Dr. Andreas Fledderjohann, Dipl.-Phys. Nils Peter Hasenclever und Dipl.-Phys. Christian Trippe.

Ebenso danke ich den Herren Priv.-Doz. Dr. Michael Karbach, Dipl.-Phys. Jens Damerau und Dipl.-Phys. Christian Trippe für die Hilfe bei der Lösung von Computerproblemen jeglicher Art.

Zusätzlicher Dank gilt den Mitgliedern des Lehrstuhls „Vielteilchensysteme“ und des Graduiertenkollegs „Darstellungstheorie und ihre Anwendungen in Mathematik und Physik“ in früherer und aktueller Besetzung für die zahlreichen Diskussionen und das angenehme Arbeitsklima.

Für die Finanzierung meiner Arbeit durch das DFG-Schwerpunktprogramm „Kollektive Quantenzustände in elektronisch eindimensionalen Übergangsmetallverbindungen“ und das Graduiertenkolleg „Darstellungstheorie und ihre Anwendungen in Mathematik und Physik“ bin ich sehr dankbar.

Vor allem danke ich meiner Familie für ihre liebevolle Unterstützung und Geduld.

Ich versichere, die vorliegende Dissertation selbständig verfasst zu haben, nur die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt zu haben und die Stellen der Arbeit (einschließlich der Abbildungen), die anderen Werken im Wortlaut oder Sinn entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung gekennzeichnet zu haben. Außerdem versichere ich, dass die Dissertation in der gegenwärtigen oder einer anderen Fassung noch keinem anderen Fachbereich und keiner anderen Universität vorgelegen hat.