

Untersuchung von frustrierten Quantenspinsystemen
Anwendung der Coupled-Cluster-Methode

Dissertation

zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium
(Dr. rer. nat.)

genehmigt durch die Fakultät für Naturwissenschaften
der Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg

von Diplomphysiker Oliver Götze
geboren am 13. April 1983 in Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr. Johannes Richter
 Prof. Dr. Jürgen Schnack

eingereicht am: 15.12.2016

verteidigt am: 19.04.2017

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	7
2. Die Coupled-Cluster-Methode	13
2.1. Theoretische Grundlagen	13
2.1.1. Der Grundzustand	14
2.1.2. Berechnung der Grundzustandsenergie	16
2.1.3. Berechnung von Erwartungswerten anderer Systemobservablen . . .	17
2.1.4. Die Näherung des CCM-Formalismus	19
2.1.5. Ergänzungen	20
2.2. Die Bedeutung von Symmetrien in der CCM	22
2.2.1. Grundlagen	23
2.2.2. Symmetrien im Spinraum	25
2.2.3. Gittersymmetrien und fundamentale Konfigurationen	25
2.3. Formulierung der CCM mit Einteilchen-Spinoperatoren	28
2.3.1. Kollineare Modellzustände	30
2.3.2. Nicht-Kollineare Modellzustände	31
2.3.3. Magnetischer Ordnungsparameter	32
2.3.4. Ähnlichkeitstransformation des Hamiltonoperators	33
2.3.5. Approximationsschemata	35
2.3.6. Extrapolation der Resultate	36
2.4. Formulierung der CCM mit Dimer-Spinoperatoren	41
2.4.1. Motivation	41
2.4.2. Theoretische Grundlagen	42
2.4.3. Dimeroperatoren	43
2.4.4. Die Clusteroperatoren	46
2.4.5. Der Dimer-Ordnungsparameter	49
2.4.6. Approximationsschemata	54
2.4.7. Extrapolationen	56
3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter	57
3.1. Das isotrope Kagome-Gitter mit beliebigem Spin	57
3.1.1. Grundzustand und Modellzustandswahl	59

3.1.2.	Berechnete Näherungsstufen und Extrapolationen	62
3.1.3.	Resultate	65
3.1.4.	Zusammenfassung	69
3.2.	Das XXZ-Modell auf dem Kagome-Gitter mit beliebigem Spin	70
3.2.1.	Der klassische Grundzustand und die Auswahl des Modellzustands .	71
3.2.2.	Resultate	72
3.2.3.	Zusammenfassung	78
3.3.	Das geschichtete Kagome-Gitter	78
3.3.1.	Die Auswahl der Modellzustände	79
3.3.2.	Resultate	80
3.3.3.	Zusammenfassung	82
4.	Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen	83
4.1.	Das eindimensionale antiferromagnetische J_1 - J_2 -Modell für $s = 1/2$	83
4.1.1.	Bekannte Grundzustandsphasen und die Auswahl geeigneter Modellzustände	84
4.1.2.	Die Grundzustandsenergie	87
4.1.3.	Ordnungsparameter	95
4.1.4.	Zusammenfassung	100
4.2.	J - J' -Modell	102
4.2.1.	Der klassische Grundzustand und die Auswahl der Modellzustände .	103
4.2.2.	Resultate	104
4.2.3.	Extrapolationsschemata für die Grundzustandsenergie und den Dimer-Ordnungsparameter	109
4.2.4.	Zusammenfassung	111
4.3.	J - J' - J_d -Modell	113
4.3.1.	Modellzustandswahl	114
4.3.2.	Resultate	115
4.3.3.	Zusammenfassung	121
4.4.	Der Spin-1/2-HAFM auf dem Star-Gitter	123
4.4.1.	Modellzustandsauswahl	124
4.4.2.	Resultate	126
4.4.3.	Zusammenfassung	131
A.	Anhang	133
A.1.	Lösungsalgorithmen für das CCM-Gleichungssystem	133
A.1.1.	Struktur des Ket-Gleichungssystems	133
A.1.2.	Numerische Lösung mittels „Direkter Iteration“	136
A.1.3.	Numerische Lösung mit dem Newton-Raphson-Verfahren	137

A.2. Eigensystem des Dimeroperators	140
A.2.1. Dimeroperator mit offenen Randbedingungen	141
A.2.2. Dimeroperator mit periodischen Randbedingungen	143
A.2.3. Auswertung	145
A.3. Darstellung alternativer Dimerzustände	145
A.4. Fitfunktionen für die Extrapolation der CCM-Rohdaten	149
A.4.1. Isotroper Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagomegitter	149
A.4.2. XXZ Modell auf dem Kagomegitter	157
A.4.3. HAFM auf dem geschichteten Kagomegitter	162
A.4.4. J - J' - J_d -Modell auf dem Quadratgitter	166
Literatur	177

1. Einleitung

Magnetismus ist ein physikalisches Phänomen, das der Mensch bereits seit mehreren tausend Jahren kennt (früheste bekannte Aufzeichnungen gehen zurück auf Thales von Milet im Jahr 624 v. Chr.), die erste Formulierung einer vollständigen phänomenologischen Theorie gelang allerdings erst im Jahr 1864 durch James Clark Maxwell (Maxwell-Gleichungen). Die Grundlagen für ein wirkliches Verständnis lange bekannter Phänomene, wie dem Para- oder dem Ferromagnetismus in Festkörpern, konnten aber erst mit der Entwicklung einer Theorie der Quantenmechanik gelegt werden, wobei insbesondere die Entdeckung des Elektronenspins im Jahre 1925 von elementarer Bedeutung war. Man erkannte in der Folge, dass die Grundbausteine der Materie (die Atome und Moleküle) ein eigenes, mit ihrem Spin verknüpftes, magnetisches Moment tragen und dass die magnetischen Eigenschaften von Festkörpern gerade auf die kollektiven Wechselwirkungen dieser durch die klassische Physik nicht erklärbar Momenten zurückgehen.

Eines der bedeutendsten, erst durch die neue Theorie beschriebenen, Phänomene innerhalb des Quantenmagnetismus, ist das Konzept der Frustration. Sie spielt eine besondere Rolle bei den sogenannten Antiferromagneten, in denen sie in der Regel geometrische Ursachen hat (man spricht hier auch von *geometrischer Frustration*). In einem Antiferromagneten sind die einzelnen magnetischen Momente bestrebt sich antiparallel zueinander auszurichten, dies ist allerdings nur dann eindeutig möglich, wenn es keine zusätzlichen konkurrierenden Bindungen zwischen direkten oder indirekten gemeinsamen Nachbarn gibt. Ein typisches Beispiel dafür ist die Orientierung von drei sogenannten Ising-Spins, die zu einem Dreieck angeordnet sind und jeweils nur zwei mögliche Zustände einnehmen können (siehe Abbildung 1.1). In dieser Konstellation ist es nicht mehr möglich alle Paarbindungen

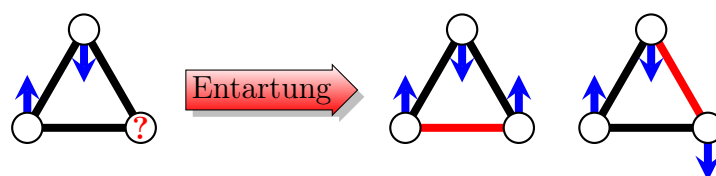


Abbildung 1.1.: Beispiel für die geometrische Frustration antiferromagnetisch gekoppelter Ising-Spins auf einem Dreieck. Dargestellt sind zwei der sechs möglichen Zustände, mit ihren in rot hervorgehobenen „unbefriedigten“ Bindungen.

gleichermaßen zu „befriedigen“, die Frustration hat außerdem zur Folge, dass es mehr als nur einen möglichen Kompromisszustand gibt. Dies ist ein gutes Beispiel für das Konzept

1. Einleitung

der *Entartung* in der Quantenmechanik und insbesondere auch dafür, wie die Frustration zu ihrer Verstärkung beiträgt. In der Folge sind die Energieniveaus makroskopisch großer Zahlen von Spinträgern, wie sie in Festkörpern relevant sind, hochgradig entartet, wenn die zugrunde liegenden Gitterstrukturen durch Dreiecksanordnungen geprägt sind (ein Beispiel dafür ist das in dieser Arbeit untersuchte Kagomegitter).

In der modernen Festkörpertheorie erkannte man, dass hochgradig entartete Systeme auch stärkeren *Quantenfluktuationen* unterliegen und daher tendenziell keine kollektive magnetische Fernordnung aufweisen. Dies gilt insbesondere für den Grundzustand ($T = 0\text{ K}$), für den thermische Fluktuationen keine Rolle mehr spielen. Stattdessen zeigte sich, dass Antiferromagneten eine Vielzahl möglicher und teilweise sehr exotischer Zustände (z.B. *Spin-Eis*, *Valence-Bond-Zustände* und diverse Varianten von *Spinflüssigkeiten*) besitzen, deren Zustandekommen und Stabilität bis heute nicht vollständig verstanden ist.

Eines der erfolgreichsten Modelle zur Beschreibung des Quantenmagnetismus in nicht-metallischen kristallinen Festkörpern ist das sogenannte Heisenberg-Modell. Es beschreibt den Festkörper als eine periodische Anordnung von lokalisierten spintragenden Teilchen, die ausschließlich über ihre magnetischen Momente (d.h. im Spinraum) wechselwirken. Ein „Spin“ wird dabei durch eine komplexe Wellenfunktion beschrieben, die sich naheliegenderweise durch die Eigenfunktionen oder auch Eigenzustände der sogenannten Spinoperatoren darstellen lassen:

$$\begin{aligned}\hat{S}^2 |s, m_s\rangle &= \hbar^2 s(s+1) |s, m_s\rangle, & m_s \in \{-s, -s-1, \dots, s-1, s\}, 2s \in \mathbb{N}_0, \\ \hat{S}_z |s, m_s\rangle &= \hbar m_s |s, m_s\rangle,\end{aligned}\quad (1.1)$$

wobei für die Spinoperatoren die folgenden Vertauschungsrelationen gelten:

$$[\hat{S}^2, \hat{S}^a] = 0, \quad [\hat{S}^a, \hat{S}^b] = i\hbar \hat{S}^c, \quad (a, b, c) = (x, y, z) \text{ und zyklisch vertauscht.} \quad (1.2)$$

Im Hamiltonoperator des Heisenberg-Modells wird die Wechselwirkung zwischen zwei solcher „Spins“ über das Produkt der Vektorspinoperatoren vermittelt:

$$\hat{H} = \sum_{i,j} J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j; \quad \hat{S}_i \hat{S}_j = \hat{S}_i^x \hat{S}_j^x + \hat{S}_i^y \hat{S}_j^y + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z. \quad (1.3)$$

Die Stärke der Austauschwechselwirkungen wird dabei über die Vorfaktoren J_{ij} bestimmt, wobei man im Fall von $J_{ij} < 0$ eine ferro- und bei $J_{ij} > 0$ eine antiferromagnetische Kopplung zwischen den Gitterplätzen i und j vorliegen hat. Zusätzlich ist es noch möglich, externe Magnetfelder oder beliebige Anisotropien zu berücksichtigen. Auch ohne an dieser Stelle zu sehr auf die mathematischen Details einzugehen, lässt sich dennoch bereits erahnen, dass exakte analytische Untersuchungen solcher Modelle ein nicht-triviales Unterfangen darstellen. Es ist tatsächlich so, dass es bisher nur für einen Bruchteil aller möglichen

Varianten gelungen ist, exakte Lösungen zu finden und das auch nur für sehr einfache Gittertypen wie die eindimensionale lineare Kette. Das bedeutet, dass man zu ihrer Untersuchung in der Regel auf numerische Methoden angewiesen ist.

Die Auswahl geeigneter numerischer Methoden und Techniken ist groß und ihre Eignung hängt nicht zuletzt von der konkreten Problemstellung ab, aber manchmal können einzelne Aspekte bereits zum Ausschluss oder zur klaren Bevorzugung einer bestimmten Methode führen. Zu den etablierten Methoden gehören beispielsweise die *Exakte Diagonalisierung*, die *Quanten-Monte-Carlo-Methode*, die *Greenfunktionsmethode*, die *Spinwellentheorie*, die „*Density Matrix Renormalization Group*“ (DMRG) sowie die in dieser Arbeit verwendete „*Coupled Cluster Methode*“ (CCM).

Eine ausführliche Beschreibung all dieser Methoden geht deutlich über den Rahmen dieser Arbeit hinaus, für einen groben Überblick lassen sie sich aber wie folgt zusammenfassen:

- Die *Exakte Diagonalisierung* basiert auf der exakten Lösung des Eigenwertproblems eines endlichen Ausschnittes des zu beschreibenden Gitters, von dem dann auf die Eigenschaften des unendlichen Systems geschlossen wird. Da die Diagonalisierung von Matrizen mit zunehmender Größe schnell an technische Grenzen stößt, ist diese Methode in erster Linie für ein- und zweidimensionale Modelle prädestiniert, wobei sie dort aber in der Regel weniger genau als andere Methoden ist.
- Die *Quanten-Monte-Carlo-Methode* gilt als sehr genaue Methode für beliebigdimensionale Modelle, ist aber nicht auf frustrierte Modelle anwendbar (Stichwort: „Vorzeichenproblem“).
- Die *Greenfunktionsmethode* ist eine universelle Methode, die sich zur Anwendung auf beliebigdimensionale Modelle und dabei sowohl zur Untersuchung von Grundzustandseigenschaften als auch für angeregte Zustände eignet. Im Allgemeinen sind ihre Resultate aber nicht ganz so gut wie die von spezialisierteren Methoden.
- Die *Spinwellentheorie* basiert auf einer Entwicklung der Spinoperatoren nach Ordnungen des Kehrwertes der Spinquantenzahl s , in der Konsequenz ist sie für Systeme mit kleinem s (insbesondere $s = 1/2$) weniger gut geeignet.
- Die *DMRG* gilt als eine der besten und genauesten Methoden zur Untersuchung eindimensionaler Systeme. Bei höherdimensionalen Systemen ist sie weniger gut geeignet, insbesondere die Untersuchung dreidimensionaler Systeme ist mit ihr praktisch nicht möglich.
- Die „*Coupled Cluster Methode*“ zählt, zumindest auf dem Feld der Quantenspinsysteme, zu den neueren Methoden und ist daher noch weniger stark verbreitet. In den letzten Jahren konnte allerdings gezeigt werden, dass sie eine sehr universelle Methode ist, die praktisch kaum Einschränkungen ihres Anwendungsbereiches aufweist.

1. Einleitung

Ihre Stärken liegen zwar in erster Linie bei der Berechnung von Grundzustandseigenschaften, dort ist sie aber auf praktisch beliebigdimensionale Modelle mit komplexen Mehrteilchen-Basen (bestehend aus Spinträgern mit unterschiedlichem Spin), auf kollineare und nicht kollineare sowie frustrierte Systeme anwendbar und kann ihre dabei ermittelten Resultate mit den besten spezialisierten Methoden messen bzw. ist ihnen teilweise sogar überlegen.

Wie bereits angedeutet, wird im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich mit der CCM gearbeitet, die dabei ermittelten Resultate werden aber, sofern vorhanden, den Literaturdaten anderer Methoden gegenübergestellt.

Aufbau der Arbeit

Im ersten auf diese Einleitung folgenden Kapitel (Kapitel 2) werden die wichtigsten Grundlagen der *Coupled Cluster Methode* erläutert. Ein besonderer Schwerpunkt liegt hierbei auf den Unterschieden zwischen der seit über 20 Jahren äußerst erfolgreich angewendeten Standardvariante der CCM und einer im Rahmen dieser Arbeit neu entwickelten Implementierung, welche die Untersuchungen bestimmter Eigenschaften von Systemen mit dimerisierten Grundzustandsphasen möglich machen soll.

Das dritte Kapitel dieser Arbeit stellt die Ergebnisse eines Teiles der im Zuge dieser Dissertation durchgeführten und bereits veröffentlichten Forschungsarbeiten dar. Der thematische Schwerpunkt liegt dabei auf der Anwendung der CCM auf das Modell des *Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Kagomegitter* (KHAFM). Beim isotropen KHAFM handelt es sich um ein Modell, für das inzwischen als gesichert gilt, dass es nur für höhere Werte der Spinquantenzahl ($s > 1$) einen *magnetisch ferngeordneten Grundzustand* besitzt. Die Natur des Grundzustandes für niedrigere Werte, insbesondere für $s = 1/2$, ist bis heute nicht eindeutig geklärt und daher immer noch Gegenstand zahlreicher Forschungsarbeiten. Das Ziel der hier vorgestellten Untersuchungen war daher auch die Erlangung neuer Erkenntnisse bezüglich der Mechanismen, die zur Entstehung oder der Unterdrückung von Fernordnung führen.

Dabei wurde zunächst der Einfluss des Spins bzw. der Spinquantenzahl untersucht, wobei sich in erster Linie die Frage stellte, ob es mit der CCM möglich ist, den bereits erwähnten, bei höheren Spinquantenzahlen als gesichert geltenden, Übergang in einen magnetisch ferngeordneten Grundzustand zu beschreiben. Hierbei gelang es außerdem, neue Erkenntnisse über die Struktur möglicher kurzreichweitig geordneter Grundzustandsphasen im Fall $s = 1/2$ zu gewinnen.

Die letztgenannten Ergebnisse führten schließlich direkt auf die Fragestellung, ob andere Faktoren, wie beispielsweise die in dieser Arbeit vorgestellten Untersuchungen zum Einfluss von Anisotropien im Spinraum und dem Übergang zu einem dreidimensionalen

(geschichteten) Modell, zur Stabilisierung der kurzreichweitigen Grundzustandsordnungen beitragen können und damit zur Entstehung echter magnetischer Fernordnung im Spin-1/2 KHAFM führen.

Das vierte und abschließende Kapitel befasst sich mit einer neuen, d.h. mit der CCM bisher nur indirekt untersuchten Klasse von Systemen, bei denen dimerisierte bzw. „*Valence-Bond*“-artige Grundzustandsphasen auftreten. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dafür ein eigenes Programmpaket entwickelt, das, angelehnt an das bereits bewährte Standardprogramm: *Crystallographic Coupled Cluster Method* (CCCM) von Damian Farnell und Jörg Schulenburg [1], die Verwendung eines alternativen, für dimerisierte Grundzustände besser geeigneten Ansatzes erlaubt. Im ersten Teil dieses Kapitels wird die Methode daher exemplarisch auf eines der bestverstandenen Modelle überhaupt (die lineare Kette) angewendet, um aus dem Vergleich der dabei ermittelten Daten mit den bereits bekannten, teilweise exakten Resultaten eine erste Abschätzung der Möglichkeiten dieser neuen CCM-Implementierung (ab jetzt DCCM) zu gewinnen. Im weiteren Verlauf wurde die DCCM dann noch, mit dem sogenannten zweidimensionalen J - J' - J_d -Modell und dem Heisenberg-Modell auf dem Star-Gitter, auf zwei anspruchsvollere Modelle angewendet.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Die *Coupled-Cluster-Methode* (im Folgenden abgekürzt durch „CCM“) ist in der hier betrachteten Variante eine Methode zur Untersuchung von Vielteilchensystemen, konkreter von Quantenspinsystemen. Im Wesentlichen bildet sie das Problem der näherungsweise Berechnung von Eigen- und Erwartungswerten des Hamiltonoperators und anderer Systemobservablen auf (nichtlineare) Gleichungssysteme ab, welche dann mittels numerischer Verfahren gelöst werden.

Die CCM wurde ab dem Ende der 1950er Jahre hauptsächlich von F. Coester und H. Kümmel entwickelt, allerdings ursprünglich zur Untersuchung von kernphysikalischen Modellen [2–6]. Ab 1966 hielt die CCM durch eine erste Arbeit von J. Čížek [7] Einzug in die Quantenchemie und setzte sich in diesem Feld in den folgenden Jahren als Methode erster Wahl durch. In den 1990er Jahren wurde sie erstmals auch als Methode zur Untersuchung von Quantenspinsystemen formuliert [8, 9] und konnte sich danach, insbesondere in den letzten 10 Jahren, aufgrund ihrer universellen Anwendbarkeit¹ und der sehr guten Qualität ihrer Resultate neben den *Monte-Carlo-Methoden*, der DMRG, der *Exakten Diagonalisierung* und anderen Vielteilchenmethoden und Techniken etablieren.

Wie bereits in der Einleitung zu dieser Arbeit beschrieben, gibt es verschiedenste Modelle zur Beschreibung von Quantenspinsystemen, da sich die vorliegende Arbeit allerdings ausschließlich mit dem Heisenberg-Modell befasst, ist der hier vorgestellte Formalismus auch nur auf dieses Modell anwendbar. Die CCM an sich ist aber viel allgemeingültiger und durchaus auch auf andere Modelle für stark korrelierte Systeme anwendbar. Ein Beispiel dafür ist die erfolgreiche Anwendung auf das *Hubbard-Modell* [10].

2.1. Theoretische Grundlagen

Der in diesem Abschnitt beschriebene Formalismus der CCM basiert ursprünglich auf einer umfangreichen Ausarbeitung von Raymond F. Bishop [9, 11], auf die der interessierte Leser hiermit verwiesen wird.

In der Einleitung wurde zwar bereits auf die verschiedenen Varianten des Heisenberg-Modells hingewiesen, für den nun folgenden Formalismus spielt es im Grunde aber keine

¹Besonders hervorzuheben sind dabei ihre Anwendbarkeit auf beliebigdimensionale und frustrierte Systeme.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Rolle, ob der Hamiltonoperator Anisotropien, äußere Magnetfelder oder Wechselwirkungen zwischen beliebig weit entfernten lokalisierten Spins berücksichtigt. Für die in dieser Arbeit behandelten Systeme läuft es aber prinzipiell immer auf eine Austauschwechselwirkung der folgenden Form hinaus:

$$\hat{H} = \sum_{i,j} J_{ij} \hat{S}_i \hat{S}_j; \quad \hat{S}_i \hat{S}_j = \hat{S}_i^x \hat{S}_j^x + \hat{S}_i^y \hat{S}_j^y + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z. \quad (2.1)$$

Dieser Hamiltonoperator beschreibt eine paarweise Wechselwirkung spinbehafteter Objekte, die an festen Orten auf einem regelmäßigen aber unendlich ausgedehntem Kristallgitter lokalisiert sind. Die „Stärke“ dieser Austauschwechselwirkung zwischen den einzelnen Spins wird durch den skalaren Vorfaktor J_{ij} vermittelt, kann bei der Berücksichtigung von Anisotropien aber auch noch von der Raumrichtung abhängig sein:

$$\hat{H} = \sum_{i,j} \left(J_{ij}^x \hat{S}_i^x \hat{S}_j^x + J_{ij}^y \hat{S}_i^y \hat{S}_j^y + J_{ij}^z \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z \right). \quad (2.2)$$

In den in dieser Arbeit untersuchten Modellen kann sich außerdem auf uniforme Wechselwirkungen beschränkt werden, d.h. dass ihre Stärke nicht direkt von den Gitterplätzen i und j abhängt, sondern nur von ihrem geometrischen Abstand, womit man es dann nur noch mit Wechselwirkungen zwischen direkten Nachbarn J_1 , zwischen übernächsten Nachbarn J_2 , usw. zu tun hat.

2.1.1. Der Grundzustand

Der gesamte Formalismus der CCM baut im Wesentlichen auf folgendem exponentiellen Ansatz für den Grundzustand des Spinsystems auf:

$$|\Psi_0\rangle = e^{\hat{S}} |\Phi_0\rangle; \quad \hat{S} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger. \quad (2.3)$$

Der Vektor $|\Phi_0\rangle$ ist der so genannte *Modellzustand* (auch: *Referenzzustand*) und \hat{S} der *Korrelationsoperator*, der als Linearkombination sogenannter *Clusteroperatoren* $\{\hat{C}^\dagger\}$ gebildet wird. Der Modellzustand kann zunächst als beliebiger Zustand des Hilbertraumes des Quantensystems angesehen werden, darf in der Praxis allerdings nicht orthogonal zum Grundzustand des Modells sein. Entscheidend für die CCM ist das folgende erweiterte Normierungsschema:

$$\langle \Phi_0 | \Psi_0 \rangle = \langle \Phi_0 | \Phi_0 \rangle = 1. \quad (2.4)$$

Die Voraussetzung für einen Grundzustandsansatz der Form (2.3) ist, dass die mit Hilfe der Clusteroperatoren aus dem Modellzustand erzeugten Vektoren

$$\{\hat{C}_I^\dagger |\Phi_0\rangle\} \quad (2.5)$$

eine *Basis* des (abzählbar unendlich dimensionalen) Hilbertraumes bilden. Die Clusteroperatoren müssen deshalb eine Vollständigkeitsrelation erfüllen:

$$\sum_I \hat{C}_I^\dagger |\Phi_0\rangle \langle \Phi_0| \hat{C}_I = 1; \quad \hat{C}_0^\dagger = 1 = \hat{C}_0. \quad (2.6)$$

Für den hier beschriebenen Formalismus ist es außerdem nötig, dass die Clusteroperatoren untereinander vertauschen:

$$[\hat{C}_I^\dagger, \hat{C}_J^\dagger] = 0 = [\hat{C}_I, \hat{C}_J] \quad (2.7)$$

und die folgende Eigenschaft besitzen:

$$\hat{C}_I |\Phi_0\rangle = 0 = \langle \Phi_0| \hat{C}_I^\dagger; \quad \forall I \neq 0. \quad (2.8)$$

Nicht notwendig aber hilfreich ist die Forderung nach der Orthonormalität der aus $|\Phi_0\rangle$ konstruierten Basiszustände:

$$\langle \Phi_0| \hat{C}_I \hat{C}_J^\dagger |\Phi_0\rangle = \delta_{IJ}. \quad (2.9)$$

Eine konkretere Konstruktion der Clusteroperatoren und des Modellzustands ist in der CCM zunächst nicht nötig. Prinzipiell reicht es an dieser Stelle aus, den Modellzustand als eine Art Vakuumzustand und die Clusteroperatoren als Erzeugungsoperatoren anzusehen (ähnlich der Fockdarstellung in der zweiten Quantisierung).

Es ist offensichtlich, dass eine Zustandskonstruktion der Form (2.3) mit zum Modellzustand passend gewählten Clusteroperatoren im Wesentlichen eine Linearkombination von Basiszuständen des Hilbertraumes ist und als solche jeden Zustand, insbesondere den Grundzustand, beschreiben kann. Aufgrund der Exponentialkonstruktion treten allerdings zusätzliche, scheinbar redundante Terme auf:

$$\hat{\mathcal{S}} = s_1 \hat{C}_1^\dagger + s_2 \hat{C}_2^\dagger + \dots; \quad e^{\hat{\mathcal{S}}} |\Phi_0\rangle = \left(1 + s_1 \hat{C}_1^\dagger + s_2 \hat{C}_2^\dagger + s_1 s_2 \hat{C}_1^\dagger \hat{C}_2^\dagger + \dots \right) |\Phi_0\rangle$$

und da die Clusteroperatoren vollständig sind, muss es weitere Operatoren (nebst zugehörigem Korrelationskoeffizienten) geben, die mit diesen Termen identisch sind (sofern die Operatorprodukte einen gültigen Ausdruck bilden, näheres dazu in den folgenden Abschnitten):

$$\hat{C}_{I(1,2)}^\dagger = \hat{C}_1^\dagger \hat{C}_2^\dagger.$$

Hierbei handelt es sich um eine Besonderheit der CCM, die es ermöglicht den Korrelations-

2. Die Coupled-Cluster-Methode

operator einfach an irgendeiner Stelle abzurechnen ohne die so genannte „Size-extensivity“² zu verlieren, dies ist eine wichtige Voraussetzung um eine Approximationshierarchie in den Formalismus der CCM einzuführen und wird noch genauer beschrieben.

In den folgenden Abschnitten dieses Kapitels wird genauer auf die Bedeutung der Wahl eines geeigneten Modellzustands und damit einhergehend auch der Wahl einer dazu passenden Menge an Clusteroperatoren eingegangen, insbesondere auch darauf, was einen geeigneten Modellzustand ausmacht.

2.1.2. Berechnung der Grundzustandsenergie

Für die Grundzustandsenergie E_0 eines durch den Hamiltonoperator \hat{H} beschriebenen Quantensystems gilt ganz allgemein:

$$\hat{H} |\Psi_0\rangle = E_0 |\Psi_0\rangle. \quad (2.10)$$

Wird der Grundzustandsansatz der CCM (2.3) in diese Gleichung eingesetzt, ergibt sich

$$\left(e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} - E_0 \right) |\Phi_0\rangle = 0. \quad (2.11)$$

Den Ausdruck $e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}}$ nennt man die *Ähnlichkeitstransformation* des Hamiltonoperators. Diese Transformation spielt eine zentrale Rolle in der CCM (siehe Abschnitt 2.1.5). Nun wird Gleichung (2.11) linksseitig mit $\langle \Phi_0 |$ multipliziert und es ergibt sich folgender Ausdruck für die Grundzustandsenergie:

$$E_0 = E_0(\{s_I\}) = \langle \Phi_0 | e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle. \quad (2.12)$$

Die eigentliche Schwierigkeit bei der Berechnung der Grundzustandsenergie liegt in der Bestimmung der *Korrelationskoeffizienten* $\{s_I\}$, da es bei einer exakten Beschreibung von Modellen auf unendlich ausgedehnten Gittern unendlich viele davon gibt (einen für jeden *Cluster* \hat{C}_I^\dagger). Dieses Problem wird später durch die Einführung einer Approximation gelöst, die nötigen Bestimmungsgleichungen kann man aber bereits an dieser Stelle ganz allgemein aus (2.11) durch sukzessive Projektion auf bzw. Multiplikation mit $\langle \Phi_0 | \hat{C}_I$ erhalten. Durch Ausnutzung von (2.8) ergibt sich das folgende Gleichungssystem:

$$\langle \Phi_0 | \hat{C}_I e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0. \quad (2.13)$$

²Im Prinzip handelt es sich um die Eigenschaft, dass bei Aufteilung des Systems in zwei nicht mehr miteinander wechselwirkende Teilsysteme sowohl der Hamiltonoperator separiert, die Grundzustandsenergie sich in der Folge als Addition der Teilenergien zusammensetzt und die Wellenfunktion faktorisiert. Siehe dazu Abschnitt 3.3 in [9].

Dieses Gleichungssystem wird auch *Ket-Gleichungssystem* genannt und ist offensichtlich nichtlinear in den *Korrelationskoeffizienten* s_I . Im nächsten Abschnitt wird sich zeigen, dass es äquivalent zu einer notwendigen Extremalforderung an den Grundzustand des Hamiltonoperators ist.

Die eigentliche Lösung dieses Gleichungssystems kann unter den gegebenen Umständen, d.h. bei Betrachtung unendlich großer Systeme, nur näherungsweise mit Methoden der Numerik geschehen. Eine Beschreibung des genauen Vorgehens bzw. der verwendeten Methoden erfolgt im Anhang dieser Arbeit (siehe Abschnitt A.1).

2.1.3. Berechnung von Erwartungswerten anderer Systemobservablen

Bei der Untersuchung von Quantenspinsystemen sind neben der Grundzustandsenergie auch andere Observablen von Interesse. Typischerweise möchte man Korrelationsfunktionen, Magnetisierungen oder andere Ordnungsparameter bestimmen. Das heißt, man hat einen Operator \hat{A} und möchte dessen Erwartungswert im Grundzustand berechnen:

$$\langle \hat{A} \rangle = \langle \Psi_0 | \hat{A} | \Psi_0 \rangle.$$

Eine Besonderheit der CCM ist aber, dass der für die Berechnung von Erwartungswerten nötige *Bra-Grundzustand* eigenständig parametrisiert wird (d.h. nicht bereits durch die Parametrisierung des Ket-Zustands festgelegt ist):

$$\langle \tilde{\Psi}_0 | = \langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} e^{-\tilde{\delta}}; \quad \tilde{\mathcal{S}} = 1 + \sum_{I \neq 0} \tilde{s}_I \hat{C}_I. \quad (2.14)$$

Zunächst bedeutet dies, dass die, ohnehin nur für endlichdimensionale Vektorräume gültige³, Hermitizitätsbeziehung zwischen Bra und Ket-Zustand:

$$\langle \tilde{\Psi}_0 | = (|\Psi_0\rangle)^\dagger \quad (2.15)$$

nicht explizit gefordert wird, sie gilt nur im exakten Fall und geht im Allgemeinen unter einer Näherung des *Korrelationsoperators* verloren. Außerdem ist die Parametrisierung des *Bra-Zustandes* nur linear in den so genannten *Bra-Korrelationskoeffizienten* \tilde{s}_I , was ihre Berechnung auf die Lösung eines nur linearen Gleichungssystems abbildet. Der eigentliche Grund für die Parametrisierung des *Bra-Grundzustandes* in der Form (2.14) ist aber die

³Der Rieszsche Darstellungssatz garantiert auch in unendlich dimensionalen Hilberträumen für jedes stetige lineare Funktional bzw. jeden linearen Operator des Dualraumes, die Existenz genau eines Zustandes $|y\rangle$ der die Definition $\langle y | := \langle y | \cdot \rangle$ über das Skalarprodukt rechtfertigt. Aber auch diese Beziehung wird an dieser Stelle nicht explizit gefordert.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Forderung der Gültigkeit des *Hellmann-Feynman Theorems*⁴ unter beliebigen Approximationen der *Korrelationsoperatoren*, d.h. nicht nur im exakten Fall. Eine explizit geforderte Beziehung der Art (2.15) wäre damit nicht verträglich (siehe dazu Abschnitt 3.5 in [9], insbesondere Seite 37 und folgende).

Wie man leicht sieht, lässt sich das Normierungsschema (2.4) nun um die ebenfalls von der Approximation unabhängige Beziehung:

$$\langle \tilde{\Psi}_0 | \Psi_0 \rangle = 1 \quad (2.16)$$

erweitern. Man kann an dieser Stelle außerdem festhalten, dass für die vollständige Beschreibung des Grundzustandes in der CCM, die Kenntnis aller Korrelationskoeffizienten $\{s_I, \tilde{s}_I\}$ nötig ist. Die Berechnung beliebiger Erwartungswerte erfolgt nun einfach über den Ausdruck:

$$\langle \hat{A} \rangle = \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{A} | \Psi_0 \rangle = \langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} e^{-\hat{S}} \hat{A} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = \bar{A}(\{s_I, \tilde{s}_I\}). \quad (2.17)$$

Die *Bra-Korrelationskoeffizienten* \tilde{s}_I werden durch das Lösen eines weiteren Gleichungssystems berechnet, welches sich wieder durch Einsetzen des Grundzustandsansatzes in die Schrödingergleichung (2.10) ergibt, dieses Mal allerdings in der „Bra“-Form:

$$\langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{H} = E_0 \langle \tilde{\Psi}_0 | \implies \langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} \left(e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} - E_0 \right) = 0. \quad (2.18)$$

Im letzten Schritt wird diese Gleichung nun noch sukzessive rechtsseitig mit den $\hat{C}_I^\dagger | \Phi_0 \rangle$ „multipliziert“ um das endgültige Gleichungssystem zu erhalten:

$$\langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} \left(e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} - E_0 \right) \hat{C}_I^\dagger | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0. \quad (2.19)$$

Dieses Gleichungssystem ist, wie bereits erwähnt, nur noch linear in den *Bra-Korrelationskoeffizienten* (an diesem Punkt des Formalismus können die Ket-Koeffizienten bereits als bekannt vorausgesetzt werden) und daher viel einfacher zu lösen. In einem weiteren Schritt kann man noch den Ausdruck für die Grundzustandsenergie E_0 aus den Bra-Gleichungen entfernen, indem man die Gleichung (2.11) mit $\langle \Phi_0 | \hat{C}_I^\dagger$ multipliziert und dann in die Bra-Gleichungen (2.19) einsetzt:

$$\langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} e^{-\hat{S}} [\hat{H}, \hat{C}_I^\dagger] e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0. \quad (2.20)$$

⁴Das Hellmann-Feynman Theorem besagt, dass für einen Hamiltonoperator unter einer (infinitesimal) kleinen Störung: $H \rightarrow H' = H + \lambda A \implies E_0 \rightarrow E'_0 = E_0 + \lambda dE_0/d\lambda + O(\lambda^2)$, die Beziehung $dE_0/d\lambda = \langle \hat{A} \rangle \langle \Psi_0 | d\hat{H}/d\lambda | \Psi_0 \rangle$ gilt.

2.1.4. Die Näherung des CCM-Formalismus

Die Grundlage für den Ansatz des exakten Grundzustandes in der CCM nach Gleichung (2.3), ist die Existenz eines vollständigen Satzes von Clusteroperatoren $\{\hat{C}_I^\dagger\}$, der die Konstruktion einer Basis für den Hilbertraum aus dem Modellzustand $|\Phi_0\rangle$ ermöglicht. In diesem Sinne ist also die Größe der Gleichungssysteme (2.13) und (2.19), die zur Bestimmung der diesen Clusteroperatoren zugeordneten Korrelationskoeffizienten s_I gelöst werden müssen, mit der Dimension des Hilbertraumes identisch. Kurz gesagt, es gibt für jeden Basisvektor des Hilbertraumes einen eigenständigen Clusteroperator und für jeden Clusteroperator bzw. für jeden Korrelationskoeffizienten gibt es eine eigene Gleichung in beiden Gleichungssystemen. Bei den in dieser Arbeit untersuchten Spinsystemen ist der Modellzustand $|\Phi_0\rangle$ typischerweise ein Produktzustand von Zuständen endlicher Spinsysteme (eine genaue Differenzierung erfolgt in den Kapiteln 2.3 und 2.4), beispielsweise ein Produkt von Einteilchenzuständen:

$$|\Phi_0\rangle = |\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \dots \quad (2.21)$$

Es ist nun klar, dass die Clusteroperatoren \hat{C}_I^\dagger , die auf so einen Modellzustand angewendet werden können, die Form von Produkten von Einteilchen spinflipoperatoren haben:

$$\hat{C}_I^\dagger = \hat{S}_1^+ \hat{S}_1^+ \hat{S}_2^+ = \hat{S}^+ \hat{S}^+ \otimes \hat{S}^+ \otimes 1 \otimes 1 \otimes \dots \quad (2.22)$$

Bereits die Tatsache, dass jeder beliebige endliche Clusteroperator⁵ durch eine einfache Verschiebung um einen Gittervektor in einen neuen gültigen Clusteroperator transformiert werden kann, macht deutlich, dass die exakte Behandlung von Systemen auf unendlich ausgedehnten Kristallgittern (auf denen unendlich viele Translationen möglich sind) auch mit der CCM so nicht möglich ist. An diesem Punkt ist es also bereits offensichtlich, dass solche Systeme nur dann mit der CCM untersucht werden können, wenn es möglich ist, die Korrelationskoeffizienten zu Clusteroperatoren, die durch Translationen miteinander verknüpft sind, ebenfalls miteinander in eine Beziehung zu setzen (z.B. gleich zu setzen). Hierbei handelt es sich tatsächlich um eine notwendige Bedingung, die zusammen mit der Bedeutung und der Ausnutzbarkeit von Symmetrien in der CCM im nachfolgenden Abschnitt 2.2 diskutiert wird.

In der Praxis spielt aber die Tatsache, dass die Clusteroperatoren auf unendlich ausgedehnten Gittern nicht nur beliebig verschoben werden können, sondern auch beliebig groß sein können, eine noch entscheidendere Rolle. Anders formuliert, eine vollständige Basis des Hilbertraumes besteht beispielsweise aus allen möglichen Produktzuständen, insbesondere auch solchen, die sich um beliebig viele Spinflips auf beliebig vielen Einteil-

⁵Damit ist gemeint, dass er aus einer endlichen Anzahl von Spinflipoperatoren besteht.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

chenzuständen (bzw. Gitterplätzen) vom Modellzustand unterscheiden. Eine Beschränkung der Gleichungssysteme auf endlich viele Gleichungen, in der Praxis gibt es hier sogar ganz konkrete Höchstgrenzen, erfordert daher außerdem die Möglichkeit die Größe der Clusteroperatoren einzuschränken. Hierfür wird in der CCM ein heuristisches, aber inzwischen vielfach bewährtes, Verfahren angewendet. Gemeint ist die Einführung sogenannter *hierarchischer Approximationsschemata*.

Hierbei werden sämtliche Cluster nach prinzipiell austauschbaren Kriterien geordnet, typischerweise nach ihrer Größe, d.h. der Anzahl der Spinflipoperatoren, aus denen sie sich zusammensetzen oder nach der Größe der Gitterregion, auf der diese Spinflips lokalisiert sind (in der Regel nach beidem). Die eigentliche Berechnung erfolgt dann nur unter der Berücksichtigung der Cluster unterhalb einer vorher festgelegten Höchststufe innerhalb dieser Hierarchie. Dadurch ist garantiert, dass die Größe der CCM-Gleichungssysteme in jedem Fall endlich ist und sogar an die zur Verfügung stehenden Rechnerressourcen angepasst werden kann. Selbstverständlich geht diese Einschränkung mit dem Verlust der Exaktheit einher. Es zeigt sich aber, dass auch auf der Basis solcher Approximationen ausreichend genaue Resultate erzielt werden können. Eine konkrete Darstellung der in der CCM angewendeten Approximationsschemata ist abhängig vom verwendeten Modellzustand und den dazugehörigen Clusteroperatoren, sie erfolgt deshalb ebenfalls erst in den Abschnitten 2.3 und 2.4.

2.1.5. Ergänzungen

Herleitung des CCM-Gleichungssystems aus einem statischen Variationsprinzip

An dieser Stelle soll nur erwähnt werden, dass sich das Ket- (2.13) und das Bra-Gleichungssystem (2.20) auch aus einem Variationsprinzip ableiten lassen. Das bedeutet konkret, dass der Erwartungswert des Hamiltonoperators im Grundzustand

$$\langle \hat{H} \rangle = \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{H} | \Psi_0 \rangle = \langle \Phi_0 | e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle \quad (2.23)$$

stationär ist (d.h. $\delta \bar{H} = 0$) bezüglich Variationen der unabhängigen Variablen $\{s_I, \tilde{s}_I\}$.

$$\frac{\partial \langle \hat{H} \rangle}{\partial \tilde{s}_I} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \langle \Phi_0 | \hat{C}_I e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0, \quad (2.24)$$

$$\frac{\partial \langle \hat{H} \rangle}{\partial s_I} = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \langle \Phi_0 | \tilde{\mathcal{S}} e^{-\hat{S}} [\hat{H}, \hat{C}_I^\dagger] e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0. \quad (2.25)$$

Diese Herleitung geht zurück auf eine Arbeit von J. Arponen aus dem Jahr 1983 [12] und liefert eine anschauliche Erklärung dafür, dass die Korrelationskoeffizienten tatsächlich den Grundzustand des Systems beschreiben.

Ähnlichkeitstransformation

Unter Ausnutzung der Reihendarstellung der Exponentialfunktion

$$\exp(x) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{1}{n!} x^n, \quad (2.26)$$

lässt sich die Ähnlichkeitstransformation des Hamiltonoperators als unendliche Reihe verschachtelter Kommutatoren darstellen:

$$\bar{H} = e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} = \hat{H} + [\hat{H}, \hat{S}] + \frac{1}{2} [[\hat{H}, \hat{S}], \hat{S}] + \dots \quad (2.27)$$

Typische Hamiltonoperatoren bestehen aus Produkttermen, die nur eine endliche Anzahl von Operatoren enthalten. Beim Heisenberg-Modell sind es nur jeweils zwei Stück:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left[\frac{1}{2} (\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^+) + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z \right], \quad (2.28)$$

in anderen Varianten oder Verallgemeinerungen des Modells können zusätzlich noch Terme der Art:

$$\hat{S}_i^z \hat{S}_j^+, \quad \hat{S}_i^z \hat{S}_j^-, \quad \hat{S}_i^+ \hat{S}_j^z, \quad \hat{S}_i^- \hat{S}_j^z, \quad \hat{S}_i^+ \hat{S}_j^+, \quad \hat{S}_i^- \hat{S}_j^- \quad (2.29)$$

aufzutreten. In jedem Fall führt dies dazu, dass die Ähnlichkeitstransformation (2.27) nach einer endlichen Anzahl verschachtelter Kommutatoren abbricht, in der Regel nach der vierten Ordnung (siehe die ausführlichere Darstellung in Abschnitt 2.3.4). Dies bedeutet, dass selbst bei einer exakten Behandlung des Modells (d.h. bei nicht-genähertem Korrelationsoperator \hat{S}) jeder Term in den CCM-Gleichungen (2.3) und (2.19) nur eine bestimmte Anzahl an Korrelationskoeffizienten ($\{s_I\}, \{\tilde{s}_I\}$) enthalten kann, bei den in dieser Arbeit vorgestellten Varianten der CCM sind es maximal **vier** Koeffizienten pro Term bzw. Summand.

Eine weitere für die Praxis nützliche Eigenschaft der Ähnlichkeitstransformation ist, dass sie bezüglich Produktoperatoren faktorisiert:

$$\overline{AB} = e^{-\hat{S}} \hat{A} \hat{B} e^{\hat{S}} = e^{-\hat{S}} \hat{A} e^{\hat{S}} e^{-\hat{S}} \hat{B} e^{\hat{S}} = \bar{A} \bar{B}. \quad (2.30)$$

Dies ermöglicht es, die Ähnlichkeitstransformation für jeden Faktor einzeln durchzuführen und die Transformation komplizierter Operatoren auf die drei Einteilchenoperatoren S^+, S^-, S^z bzw. S^x, S^y, S^z zurückzuführen.

2.2. Die Bedeutung von Symmetrien in der CCM

Wie bereits im Abschnitt 2.1.4 zu den Approximationsschemata dargelegt, berechnet man mit der CCM in der Praxis Näherungen von Systemobservablen (typischerweise die Grundzustandsenergie sowie einen Ordnungsparameter), die entscheidend von dem verwendeten Modellzustand abhängig sind. Gleichzeitig lässt sich die Auswahl eines Modellzustands in der Regel nur sehr schwer formal begründen und mitunter lassen die Rückgriffe auf den klassischen Fall oder andere Argumente gleich mehrere Optionen zu. Unabhängig von der Auswahl gilt aber, dass die Konstruktion des eigentlichen Grundzustandes $|\Psi_0\rangle$ in der CCM auf der Basis beliebiger Modellzustände $|\Phi_0\rangle$ möglich ist (2.3):

$$|\Psi_0\rangle = e^{\hat{S}} |\Phi_0\rangle; \quad \hat{S} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger.$$

Es wurde bereits erwähnt, dass diese Universalität durch die Verwendung der Approximationsschemata deutlich eingeschränkt wird, wodurch auch die Notwendigkeit entsteht, dass der Modellzustand einen sogenannten endlichen „Überlapp“ zum Grundzustand besitzen muss bzw. nicht orthogonal zu diesem sein darf. An dem Grundproblem, dass man den eigentlichen Grundzustand im Vorfeld nicht kennt, ändert dies aber auch nichts. In der Praxis ist es daher mitunter notwendig mehrere Ansätze zu machen und diese im Nachhinein zu vergleichen.

Das eigentliche „Lösen“ der sich aus den verschiedenen Ansätzen ergebenden nichtlinearen Gleichungssysteme ist aufgrund ihrer Komplexität nur mit numerischen Methoden möglich. Problematisch dabei ist aber, dass es für die Lösungen von nichtlinearen Gleichungssystemen im Allgemeinen keine Eindeutigkeits- und Existenzaussagen gibt. Das bedeutet, dass die numerischen Lösungen eine in der Regel nicht abschätzbare Abhängigkeit von der Methode selbst und den verwendeten Startwerten aufweisen.⁶

Im Folgenden wird nun demonstriert, dass es möglich ist, einen Zusammenhang zwischen den Symmetrieeigenschaften des Modellzustands und dem eigentlichen Grundzustand herzustellen. Damit ist ganz konkret gemeint, dass es immer eine Lösung für den Grundzustand gibt, nach der dieser die gleichen Symmetrien wie der verwendete Modellzustand besitzt. Es ist außerdem möglich, diese Lösung bereits im Vorfeld zu forcieren, d.h. den Lösungsraum entsprechend einzuschränken, was zum einen zu einer deutlichen Reduzierung des Rechenaufwands führt und zum anderen eine nachträgliche Selektion unnötig macht. Die entscheidende Folgerung daraus ist aber, dass es damit möglich ist, die mit der CCM berechneten Resultate nicht mehr nur einem abstrakten Grundzustand zuzuordnen. Die

⁶Für die nichtlinearen Gleichungssysteme der CCM ist es daher nur in Ausnahmefällen und durch das geschickte Weiterverwenden von vorherigen Lösungen in parametrisierten Modellen möglich, im Vorfeld irgendwelche Aussagen über geeignete und ungeeignete Startwerte zu treffen, geschweige denn darüber welchen Effekt ihre Variation auf die Lösung hat.

Kenntnis seiner Symmetrien erlaubt es insbesondere belastbare Aussagen über die konkrete Natur der Grundzustandsphase zu treffen.

2.2.1. Grundlagen

Im Allgemeinen spricht man von einer Symmetrie wenn der Hamiltonoperator des betrachteten Modells mit einem Transformationsoperator Λ vertauscht:

$$[\hat{H}, \Lambda]_- = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \Lambda \hat{H} \Lambda^{-1} = \hat{H}. \quad (2.31)$$

Ein typisches Beispiel ist die Rotationsinvarianz des isotropen Heisenberg-Modells, dessen Hamiltonoperator wie folgt aussieht:

$$\begin{aligned} \hat{H} &= J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{S}_i \hat{S}_j = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left(\hat{S}_i^x \hat{S}_j^x + \hat{S}_i^y \hat{S}_j^y + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z \right) \\ &= J \sum_{\langle i,j \rangle} \left(\hat{S}_i^{x'} \hat{S}_j^{x'} + \hat{S}_i^{y'} \hat{S}_j^{y'} + \hat{S}_i^{z'} \hat{S}_j^{z'} \right), \end{aligned} \quad (2.32)$$

wobei die Striche auf die Verwendung eines anderen Koordinatensystems hinweisen. Globale Drehungen aller Spins bzw. ihrer lokalen Quantisierungsachsen, sind offensichtlich gleichbedeutend mit einem Koordinatenwechsel, also einem Übergang zu einer „gestrichenen“ Darstellung. Es ist daher anschaulich klar, dass \hat{H} unveränderlich unter beliebigen globalen Drehungen $\mathcal{U}(\vec{\alpha})$ ist:

$$[\hat{H}, \mathcal{U}(\vec{\alpha})]_- = 0 \quad \Leftrightarrow \quad \mathcal{U}(\vec{\alpha}) \hat{H} \mathcal{U}^{-1}(\vec{\alpha}) = \hat{H}, \quad \vec{\alpha} \text{ ist beliebig.} \quad (2.33)$$

Eine solche globale Drehung lässt sich als Tensor- bzw. Kroneckerprodukt lokaler Drehungen einzelner Spins schreiben:

$$\mathcal{U}(\vec{\alpha}) = \bigotimes_{i=1}^N U(\vec{\alpha}). \quad (2.34)$$

Lokale Drehungen sind unitär $U^{-1}(\alpha) = U^\dagger(\alpha)$ und lassen sich auch als Drehungen der Koordinatensysteme oder Basiswechsel im Spinraum auffassen. Für die Spinzustände⁷ bedeutet dies im Allgemeinen (Hinweis: Spinrotationen werden von den Komponenten des Spinoperators \hat{S} erzeugt und vertauschen daher mit \hat{S}^2):

$$U(\vec{\alpha}) |s, m_s\rangle = \sum_{i=-s}^s a_i(\vec{\alpha}) |s, i\rangle. \quad (2.35)$$

⁷Gemeint sind die Eigenzustände des \hat{S}^2 und des \hat{S}^z Operators: $\hat{S}^2 |s, m_s\rangle = \hbar^2 s(s+1) |s, m_s\rangle$, $\hat{S}^z |s, m_s\rangle = \hbar m_s |s, m_s\rangle$.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Produktzustände solcher Zustände sind daher im Allgemeinen (d.h. für beliebige Winkel) nicht rotationsinvariant. Dies gilt insbesondere für entsprechende Modellzustände, da diese üblicherweise aus einer, durch die Anzahl der abzubildenden Untergitter begrenzten, Auswahl klar orientierter Spins bestehen (bezogen auf die Quantisierungsachse des $|\downarrow\rangle$ -Zustands). Häufig gibt es aber Zusammenhänge zwischen den Spinorientierungen zweier Untergitter A und B folgender Art:

$$U(\vec{\alpha}) |A\rangle = |B\rangle, \quad (2.36)$$

man spricht daher in diesen Fällen auch davon, dass $|\vec{\alpha}|$ der Winkeldifferenz zwischen diesen Zuständen entspricht.

„Symmetry Theorem of the Coupled-Cluster Method“

Es gibt aber auch Fälle, in denen Λ nicht nur eine Symmetrie des Hamiltonoperators, sondern zusätzlich noch des Modellzustands ist:

$$\Lambda |\Phi_0\rangle = \lambda |\Phi_0\rangle. \quad (2.37)$$

Man kann nun zeigen, dass es dann immer möglich ist, eine Lösung des CCM-Gleichungssystems zu finden, welche diese Symmetrie auch für den eigentlichen Grundzustand (2.3) des Systems in allen Approximationsstufen garantiert:

$$\Lambda |\Psi_0\rangle = \lambda |\Psi_0\rangle \quad \Leftrightarrow \quad [\hat{\mathcal{S}}, \Lambda]_- = 0, \quad (2.38)$$

d.h. also, dass der approximierte Korrelationsoperator $\hat{\mathcal{S}}$ mit Λ vertauscht. In einem Artikel aus dem Jahr 1994 nennt Y. Xian dies das „Symmetry Theorem of the Coupled-Cluster Method“ [13], außerdem führt er auch einen Beweis dafür an.

Mit der Garantie für die Existenz einer symmetrischen Lösung für den approximierten Grundzustand wird es erst möglich, konsequent von den Symmetrieeigenschaften des Modellzustands auf jene des Grundzustands zu schließen. Von entscheidender Bedeutung ist es aber, dass es möglich ist, eine symmetrische Lösung von vornherein zu erzwingen und damit darauf verzichten zu können, die gefundene Lösung umständlich auf ihre Symmetrieeigenschaften hin untersuchen zu müssen. Im Vorfeld wäre eine Kontrolle der zu findenden Lösung mit numerischen Methoden ohnehin praktisch unmöglich. Wie genau sich so eine symmetrische Lösung forcieren lässt, hängt nun von der betrachteten Symmetrie selbst ab, man kann hier zwei Arten von Symmetrien unterscheiden.

2.2.2. Symmetrien im Spinraum

Die erste Gruppe von Symmetrien sind mit Transformationen verbunden, die nur im Spinraum selbst wirken. Solche Operationen verändern die Spinzustände und die Wirkung der Spinoperatoren auf diese, haben aber keinen Einfluss auf die Position der Spinträger auf dem Gitter d.h. auf die Gitterplatzindizes. Für die CCM von Bedeutung ist hierbei eigentlich nur die sogenannte S^z -Erhaltung, gemeint ist damit die Vertauschung des Hamiltonoperators mit einer globalen Spin-Quantisierungsachse. Im isotropen Heisenberg-Modell gilt beispielsweise immer die folgende Vertauschungsrelation:

$$[\hat{H}, \hat{S}^z] = 0, \quad \text{mit} \quad \hat{S}^z = \sum_i^N \hat{S}_i^z. \quad (2.39)$$

Die Modellzustände, für die diese Symmetrien in Frage kämen, sind offensichtlich die Produktzustände aus den Einteilcheneigenzuständen der lokalen \hat{S}_i^z -Operatoren, oder kurz die Eigenzustände des \hat{S}^z -Operators. Wenn die lokalen s^z -Quantisierungsachsen auf allen Gitterplätzen identisch sind, spricht man auch von „kollinearen Zuständen“ (siehe Abschnitt 2.3.1).

Y. Xian zeigt, dass eine entsprechende symmetrische Lösung dadurch forciert werden kann, in dem die Korrelationskoeffizienten sämtlicher Clusteroperatoren \hat{C}_J^\dagger innerhalb des Korrelationsoperators $\hat{\mathcal{S}}$:

$$\hat{\mathcal{S}} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger + \sum_{J \neq 0} s_J \hat{C}_J^\dagger \quad \text{wobei gilt:} \quad [\hat{C}_I^\dagger, \Lambda]_- = 0, \quad [\hat{C}_J^\dagger, \Lambda]_- \neq 0 \quad (2.40)$$

nullgesetzt werden ($s_J = 0$), die nicht mit Λ (also beispielsweise mit \hat{S}^z) vertauschen [13]. Der resultierende Korrelationsoperator vertauscht dann offensichtlich immer (d.h. unabhängig von der Lösung für die verbliebenen s_I) mit Λ .

2.2.3. Gittersymmetrien und fundamentale Konfigurationen

Eine zweite Gruppe von Symmetrien sind die sogenannten Gittersymmetrien $\{\mathcal{K}\}$, womit all jene Translationen, Rotationen und Spiegelungen des Gitters gemeint sind, mit denen das (unendlich ausgedehnte) Gitter auf sich selbst abgebildet werden kann. Das in dieser Arbeit untersuchte Heisenberg-Modell (1.3) enthält für jedes Paar benachbarter Gitterplätze einen Term der sich nur durch die Gitterplatzindizes von den anderen Termen unterscheidet, damit ist leicht nachzuvollziehen, dass er unter beliebigen Umindizierungen invariant bleibt, welche diese Nachbarschaftsverhältnisse unverändert lassen. Da die erwähnten Gittersymmetrien auf unendlich ausgedehnten Gittern sich immer durch solche (nichttrivialen) Umindizierungen darstellen lassen, ist klar, dass es sich dabei um

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Symmetrien des isotropen Heisenberg-Modells handelt:

$$[\hat{H}, \mathcal{K}]_- = 0. \quad (2.41)$$

Die Modellzustände sind wiederum im Allgemeinen nur unter einer Teilmenge der Gittersymmetrien invariant, man kann die Menge der Symmetrien des Hamiltonoperators daher in die Gruppe der Symmetrien die auch für den Modellzustand gelten $\{\mathcal{K}_i\}$ und solche für die das nicht gilt $\{\mathcal{K}_i^*\}$ aufteilen. Dabei reicht es aus, wenn der Modellzustand bis auf eine globale Rotation invariant unter den Gittersymmetrien $\{\mathcal{K}_i\}$ ist:

$$\mathcal{U}(\vec{\alpha})\mathcal{K}_i|\Phi_0\rangle = |\Phi_0\rangle \quad (2.42)$$

Dies ist beispielsweise für den im nachfolgenden Kapitel vorgestellten „ $q = 0$ “-Modellzustand des Kagome-Antiferromagneten der Fall (Abb. 3.3). Hier gibt es einen Zusammenhang der Art (2.36) zwischen den drei Untergittern:

$$U(\vec{\alpha})|A\rangle = |B\rangle, \quad U(\vec{\alpha})|B\rangle = |C\rangle \quad \text{und} \quad U(\vec{\alpha})|C\rangle = |A\rangle.$$

Rotiert man das zugrunde liegende Kagomegitter um 120° im Uhrzeigersinn, ist anschaulich klar, dass erst eine zusätzliche Drehung aller Spins den ursprünglichen Zustand wiederherstellt:

$$\begin{aligned} \mathcal{U}(\vec{\alpha})\mathcal{K}_i|A\rangle \otimes |B\rangle \otimes |C\rangle \otimes \dots &= \mathcal{U}(\vec{\alpha})|C\rangle \otimes |A\rangle \otimes |B\rangle \otimes \dots \\ &= |A\rangle \otimes |B\rangle \otimes |C\rangle \otimes \dots \end{aligned} \quad (2.43)$$

Da der Hamiltonoperator des Heisenberg-Modells rotationsinvariant ist (2.33), haben die globalen Rotationen aber keinen Effekt auf seinen Erwartungswert:

$$\begin{aligned} \langle \Phi_0 | \mathcal{K}_i^{-1} \mathcal{U}^{-1}(\vec{\alpha}) \hat{H} \mathcal{U}(\vec{\alpha}) \mathcal{K}_i | \Phi_0 \rangle &= \langle \Phi_0 | \mathcal{K}_i^{-1} \mathcal{U}^{-1}(\vec{\alpha}) \mathcal{U}(\vec{\alpha}) \hat{H} \mathcal{U}^{-1}(\vec{\alpha}) \mathcal{U}(\vec{\alpha}) \mathcal{K}_i | \Phi_0 \rangle \\ &= \langle \Phi_0 | \mathcal{K}_i^{-1} \hat{H} \mathcal{K}_i | \Phi_0 \rangle. \end{aligned} \quad (2.44)$$

Für nicht rotationsinvariante Observablen kann dies aber dennoch eine Rolle spielen, daher wird nun noch die kombinierte Transformation eingeführt:

$$\mathcal{K}_i(\alpha) := \mathcal{U}(\vec{\alpha})\mathcal{K}_i \quad (2.45)$$

Es ist abschließend noch wichtig sich klarzumachen, dass die hier angesetzten globalen Symmetrien für den Zustand bzw. das Modell als Ganzes gültig sind, d.h. im Allgemeinen gelten sie, im Gegensatz zu den Symmetrien im Spinraum (Abschnitt 2.2.2), nicht für die Einteilchenzustände und die lokalen Operatoren. So gilt die Symmetrie in Gleichung (2.43) für den gesamten Produktzustand, während für einen herausgegriffenen Einteilchenzustand

folgende Beziehung gilt:

$$\begin{aligned} \mathcal{U}(\vec{\alpha})\mathcal{K}_i|A\rangle \otimes |1\rangle \otimes |1\rangle \otimes \cdots &= \mathcal{U}(\vec{\alpha})|1\rangle \otimes |A\rangle \otimes |1\rangle \otimes \cdots \\ &= |1\rangle \otimes |B\rangle \otimes |1\rangle \otimes \cdots . \end{aligned} \quad (2.46)$$

Analoges gilt auch für die Operatoren, wie hier am Beispiel eines Clusteroperators:

$$\hat{C}_I^\dagger = 1 \otimes \hat{S}^{+'} \hat{S}^{+'} \otimes 1 \otimes \hat{S}^{+''} \otimes \cdots . \quad (2.47)$$

Die Striche stehen hier für die lokalen Basen. Eine Gittertransformation bewirkt auch hier zunächst eine Umordnung des Tensorproduktes:

$$\mathcal{K}_i \hat{C}_I^\dagger \mathcal{K}_i^{-1} = \hat{S}^{+''} \otimes 1 \otimes 1 \otimes \hat{S}^{+'} \hat{S}^{+'} \otimes \cdots , \quad (2.48)$$

während die Rotationen im Spinraum eine Transformation der lokalen Operatoren bewirkt:

$$\mathcal{U}(\vec{\alpha})\mathcal{K}_i \hat{C}_I^\dagger \mathcal{K}_i^{-1} \mathcal{U}^{-1}(\vec{\alpha}) = \hat{S}^{+'} \otimes 1 \otimes 1 \otimes \hat{S}^{+''} \hat{S}^{+''} \otimes \cdots = \hat{C}_J^\dagger . \quad (2.49)$$

Da die Gittertransformationen $\mathcal{K}_i(\alpha)$ also immer eine Transformation der Clusterindizes von I auf J bewirken, gibt es im Gegensatz zu den Spinraumsymmetrien (2.40) keine gittersymmetrischen Clusteroperatoren. Man kann stattdessen zeigen, dass der Grundzustand genau dann symmetrisch ist:

$$|\Psi_0\rangle \stackrel{!}{=} \mathcal{K}_i(\alpha)|\Psi_0\rangle = \mathcal{K}_i(\alpha)e^{\hat{\mathcal{S}}}|\Phi_0\rangle \Leftrightarrow [\hat{\mathcal{S}}, \mathcal{K}_i(\alpha)]_- = 0, \quad (2.50)$$

wenn die Korrelationskoeffizienten der Clusteroperatoren, die durch Symmetrietransformationen (gemeint sind hier die Gittersymmetrien des Hamiltonoperators und des Modellzustands) aufeinander abgebildet werden, identisch sind. Nach (2.49) bewirkt eine Transformation des Korrelationsoperators eine Umindizierung der Clusteroperatoren:

$$\mathcal{K}_i^{-1}(\alpha)\hat{\mathcal{S}}\mathcal{K}_i(\alpha) = \sum_{I \neq 0} s_I \mathcal{K}_i^{-1}(\alpha)\hat{C}_I^\dagger \mathcal{K}_i(\alpha) = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_{J(I)}^\dagger, \quad (2.51)$$

da der Korrelationsoperator aber zu jeder möglichen Konfiguration einen eigenen Clusteroperator enthält und die Transformation $\mathcal{K}_i(\alpha)$ offensichtlich bijektiv ist, d.h. jeden Clusterindex auf einen anderen Clusterindex abbildet ohne dass es dabei zu Mehrfachabbildungen auf einen bestimmten Index kommt, muss für die Korrelationskoeffizienten gelten:

$$s_I = s_{J(I)}. \quad (2.52)$$

Der resultierende Korrelationsoperator führt dann wieder auf einen Grundzustand, der die entsprechende Symmetrie besitzt. Außerdem führt das Gleichsetzen dieser Koeffizienten

2. Die Coupled-Cluster-Methode

schon von vornherein auf ein vereinfachtes Gleichungssystem und hat damit in der Regel einen deutlich reduzierten Rechenaufwand zur Folge.

Die Ausnutzung der Gittersymmetrien stellt in der CCM einen der wichtigsten Schritte überhaupt dar. Wie im Abschnitt 2.1.4 bereits angedeutet wurde, hätte man es ohne die Ausnutzung der elementaren Translationssymmetrien in jedem Fall mit unendlich vielen Korrelationskoeffizienten zu tun, was den Anwendungsbereich der CCM auf endliche Kristallgitter beschränken würde.

Fundamentale Konfigurationen

Die konsequente Ausnutzung sämtlicher Symmetrien des Modellzustands führt schlussendlich auf die Gleichsetzung einer ganzen Gruppe von Korrelationskoeffizienten. Die mit diesen Koeffizienten verknüpften Konfigurationen zeichnen sich ebenfalls dadurch aus, dass sie offensichtlich mittels der Symmetrietransformationen aufeinander abgebildet werden können. Dadurch ist es möglich, die ganze Gruppe durch eine beliebige Konfiguration zu repräsentieren. Die Menge sämtlicher Repräsentanten von durch Symmetrietransformationen aufeinander abbildbarer Konfigurationen nennt man im Kontext der CCM die *fundamentalen Konfigurationen* des Modells.

2.3. Formulierung der CCM mit Einteilchen-Spinoperatoren

In diesem Abschnitt wird die naheliegendste und auch verbreitetste Formulierung der CCM vorgestellt. Es handelt sich außerdem um die bisher einzige Formulierung der CCM, für die praxisrelevante Computerprogramme existieren, die es erlauben hohe Näherungsstufen der CCM-Gleichungen mittels Großrechnern zu lösen. Ganz besonders muss hier auf das Programm: „Crystallographic Coupled Cluster Method“ (CCCM) von Damian J.J. Farnell und Jörg Schulenburg hingewiesen werden, mit dessen Hilfe ein Großteil der Forschungsergebnisse der letzten Jahre erzielt wurden [1].

Die Grundidee der im Folgenden beschriebenen Variante der CCM basiert auf der Darstellung des Hilbertraumes \mathcal{H} der auf dem Heisenberg-Modell (1.3) basierenden Quantenspinsysteme als Produktraum von Einteilchen-Hilberträumen \mathcal{H}^1 :

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_1^1 \otimes \mathcal{H}_2^1 \otimes \mathcal{H}_3^1 \otimes \cdots \otimes \mathcal{H}_N^1 \quad (2.53)$$

Die kanonische Basis des Produktraums für Spin-1/2-Teilchen (gemeint sind Objekte mit Spinquantenzahl $s = 1/2$) besteht aus allen Produktvektoren von Einteilchen-Basisvektoren

ren:

$$\begin{aligned}
 |1\rangle &:= |\downarrow\downarrow\downarrow\rangle := |\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \cdots, & |2\rangle &:= |\uparrow\downarrow\rangle := |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \cdots, \\
 |3\rangle &:= |\downarrow\uparrow\downarrow\rangle := |\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \cdots, & |4\rangle &:= |\uparrow\uparrow\downarrow\rangle := |\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \cdots, \\
 &\vdots & &
 \end{aligned} \tag{2.54}$$

Als Einteilchenbasis werden üblicherweise die \hat{S}^z -Eigenzustände verwendet:

$$\hat{S}^z |\uparrow\rangle = \frac{\hbar}{2} |\uparrow\rangle, \quad \hat{S}^z |\downarrow\rangle = -\frac{\hbar}{2} |\downarrow\rangle, \tag{2.55}$$

bzw. für Teilchen mit beliebigem Spin ($s \geq \frac{1}{2}$):

$$\begin{aligned}
 \hat{S}^2 |s, m_s\rangle &= \hbar^2 s(s+1) |s, m_s\rangle, & m_s &\in \{-s, -s-1, \dots, s-1, s\}. \\
 \hat{S}^z |s, m_s\rangle &= \hbar m_s |s, m_s\rangle, & &
 \end{aligned} \tag{2.56}$$

In der CCM bilden der Modellzustand und die Clusteroperatoren eine von einander abhängige Einheit ($|\Phi_0\rangle, \{\hat{C}_I^\dagger\}$), d.h. sie können nicht unabhängig voneinander gewählt werden. Es wurde bereits diskutiert, dass die Wahl eines passenden Modellzustands der wichtigste Schritt bei der Anwendung der CCM auf konkrete Problemstellungen ist. In diesem Sinne stellen die Clusteroperatoren den Teil des Tupels dar, den man nachrangig an die Wahl des Modellzustands anpassen möchte. In der Praxis ist dies aber häufig nicht möglich, denn ein Großteil des Aufwandes bei der Entwicklung eines CCM-Computerprogramms steckt in den Algorithmen, mit denen die Cluster oder Konfigurationen ermittelt werden, oder bei der Aufstellung der Bra- und Ket-Gleichungen. Die Komplexität dieser Kernkomponenten wird entscheidend von der Konstruktion der Clusteroperatoren bestimmt. Es ist natürlich klar, dass auch die Entwicklung eines für die Forschung relevanten CCM-Computerprogramms an den Anforderungen eben dieser ausgerichtet sein muss. Dennoch geht mit einer konkreten für Großrechner geeigneten Implementierung des CCM-Formalismus ein Teil der Flexibilität verloren und das allein, von den Optimierungsmaßnahmen einmal abgesehen, durch die notwendige Festlegung auf einen konkreten Typ von Clusteroperatoren.

Das eingangs erwähnte CCM-Programm CCCM ist spezialisiert auf einen in diesem Abschnitt näher beschriebenen „Einteilchen-Formalismus“. Damit ist im Wesentlichen gemeint, dass die CCCM Modellzustände voraussetzt, die sich als Produktzustände von Einteilchenzuständen schreiben lassen (aber nicht notwendigerweise nur Basisvektoren vom Typ (2.54)). Dies ermöglicht es, die Clusteroperatoren als einfache Produkte von untereinander vertauschenden Einteilchenoperatoren zu konstruieren. In den folgenden Abschnitten wird gezeigt, dass man sich bei der Beschreibung der Clusteroperatoren sogar

2. Die Coupled-Cluster-Methode

ausschließlich auf Produkte von \hat{S}_i^+ -Operatoren beschränken kann:

$$\hat{C}_I^\dagger = \hat{S}_{i_1}^+ \hat{S}_{i_2}^+ \hat{S}_{i_3}^+ \cdots, \quad I := (i_1, i_2, i_3, \dots). \quad (2.57)$$

Am Beispiel eines Modellzustands bestehend ausschließlich aus $|s, -s\rangle$ -Einteilchenzuständen lässt sich bereits erkennen, dass die Anwendung solcher Clusteroperatoren (z.B. zur Erzeugung aller anderen Basisvektoren) vollständig durch die Angabe der Anzahl der Spinflips pro Gitterplatz beschrieben werden kann. Aufgrund der Vertauschbarkeit und der Normerhaltung durch die Spinoperatoren werden keine weiteren Informationen benötigt:

$$\begin{aligned} & \left(\hat{S}_{i_1}^+\right)^{n_1} \left(\hat{S}_{i_2}^+\right)^{n_2} \cdots \left(\hat{S}_{i_k}^+\right)^{n_k} |s, -s\rangle_{i_1} \otimes |s, -s\rangle_{i_2} \otimes \cdots \otimes |s, -s\rangle_{i_k} \otimes \cdots = \\ & |s, -s + n_1\rangle_{i_1} \otimes |s, -s + n_2\rangle_{i_2} \otimes \cdots \otimes |s, -s + n_k\rangle_{i_k} \otimes \cdots \\ & \iff \\ & \{i_1, n_1; i_2, n_2; \cdots; i_k, n_k\}. \end{aligned}$$

2.3.1. Kollineare Modellzustände

Am einfachsten sind die sogenannten *kollinearen* Modellzustände. Dabei handelt es sich um Produktzustände, die sich nur aus den Eigenzuständen desselben S^z -Operators zusammensetzen, also im Prinzip um die Basiszustände (2.54). In diesem Fall kann man die *Cluster-Erzeugungsoperatoren* zunächst einfach als Produkte der *Einzelspin-Stufenoperatoren*

$$\begin{aligned} \hat{S}^+ |s, m_s\rangle &= \hbar |s, m_s + 1\rangle, & \hat{S}^+ |s, s\rangle &= 0, \\ \hat{S}^- |s, m_s\rangle &= \hbar |s, m_s - 1\rangle, & \hat{S}^- |s, -s\rangle &= 0, \end{aligned} \quad (2.58)$$

bzw. im Spezialfall $s = 1/2$

$$\hat{S}^+ |\downarrow\rangle = \hbar |\uparrow\rangle, \quad \hat{S}^- |\uparrow\rangle = \hbar |\downarrow\rangle, \quad \hat{S}^+ |\uparrow\rangle = 0, \quad \hat{S}^- |\downarrow\rangle = 0, \quad (2.59)$$

konstruieren:

$$\hat{C}_I^\dagger \rightarrow \hat{S}_{i_1}^\pm \hat{S}_{i_2}^\pm \cdots \hat{S}_{i_{|I|}}^\pm. \quad (2.60)$$

Da die Dimension des Einteilchen-Hilbertraumes $d = 2s + 1$ beträgt, können die Clusteroperatoren also maximal $2s$ Spin-Stufenoperatoren des gleichen Typs mit identischem Gitterplatzindex enthalten.

Der einfachste Fall liegt vor, wenn $s = 1/2$ beträgt und der gewählte Modellzustand vollständig polarisiert ist, d.h. nur aus identischen Einteilchen-Zuständen besteht:

$$|\Phi_0\rangle = |\downarrow\downarrow\downarrow \cdots\rangle \quad (\text{oder} \quad |\Phi_0\rangle = |\uparrow\uparrow\uparrow \cdots\rangle). \quad (2.61)$$

In diesem Fall kann man die *Cluster-Erzeugungsoperatoren* als Produktoperatoren von nur einem Typ von Stufenoperatoren (beispielsweise nur aus \hat{S}^+ -Operatoren) konstruieren

$$\hat{C}_I^\dagger = \hat{S}_{i_1}^+ \hat{S}_{i_2}^+ \cdots \hat{S}_{i_{|I|}}^+, \quad (2.62)$$

die außerdem alle auf verschiedene Gitterplätze wirken. Mittels einer **Koordinatentransformation** kann man das untersuchte Modell immer auf eine Form bringen, die es erlaubt mit Clusteroperatoren vom Typ (2.62) zu arbeiten. Es handelt sich dabei um eine unitäre Transformation des Modellzustands und des Hamiltonoperators (siehe nächster Abschnitt). Für eine Programmimplementierung ist diese Form viel besser geeignet, da es zur Beschreibung eines solchen Clusters ausreicht, nur eine Liste von Gitterplatzindizes zu speichern und nicht noch zusätzlich den Typ des an dieser Stelle wirkenden Spin-Stufenoperators (siehe vorheriger Abschnitt).

2.3.2. Nicht-Kollineare Modellzustände

Man kann mit der CCCM auch Modellzustände verwenden, die sich als Linearkombination der oben definierten Basiszustände darstellen lassen, es darf sich dabei allerdings nur um „unverschränkte“ Zustände handeln:

$$\begin{aligned} |\Phi_0\rangle &= \left(\sum_{i=-s}^s a(i) |s, i\rangle \right) \otimes \left(\sum_{i=-s'}^{s'} b(i) |s', i\rangle \right) \otimes \left(\sum_{i=-s''}^{s''} c(i) |s'', i\rangle \right) \otimes \cdots ; \\ \sum_{n=-s}^s a^2(n) &= \sum_{n=-s'}^{s'} b^2(n) = \sum_{n=-s''}^{s''} c^2(n) = \cdots = 1. \end{aligned} \quad (2.63)$$

Für Spin-1/2-Teilchen kann man zur Verdeutlichung der unabhängig wählbaren lokalen Quantisierungsachsen daher auch folgende symbolisch anschauliche Schreibweise einführen:

$$|\Phi_0\rangle = |\swarrow\rangle \otimes |\uparrow\rangle \otimes |\rightarrow\rangle \otimes \cdots . \quad (2.64)$$

Lokale Koordinatentransformation

Zustände dieser Art kann man immer mittels *lokaler Koordinatentransformationen*, d.h. für jeden Gitterplatz unabhängig von allen anderen, auf einen voll polarisierten Produktzustand von Typ (2.61) abbilden:

$$|\downarrow\downarrow\downarrow \cdots\rangle = \hat{U} |\swarrow\uparrow\rightarrow \cdots\rangle, \quad \hat{A}' = \hat{U} \hat{A} \hat{U}^{-1}, \quad (A \text{ ist eine beliebige Observable}). \quad (2.65)$$

Diese Transformationen sind unitär, da es sich dabei um Darstellungen der Drehgruppe handelt. Für die im Hamiltonoperator des Heisenberg-Modells auftretenden Vektor-Spin-

2. Die Coupled-Cluster-Methode

operatoren handelt es sich um die bekannten Drehungen im \mathbb{R}^3 (Elemente der Drehgruppe $SO(3)$), z.B. um Drehungen um die y -Achse:

$$\hat{S}' = \bar{R}_y(\gamma)\hat{S} \quad \Rightarrow \quad \begin{pmatrix} \hat{S}^{x'} \\ \hat{S}^{y'} \\ \hat{S}^{z'} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos \gamma & 0 & \sin \gamma \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \gamma & 0 & \cos \gamma \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \hat{S}^x \\ \hat{S}^y \\ \hat{S}^z \end{pmatrix}. \quad (2.66)$$

Nach einer solchen Transformation sehen die ebenfalls transformierten Systemobservablen, insbesondere der Hamiltonoperator, natürlich deutlich komplizierter aus (in den nachfolgenden Kapiteln folgen konkrete Beispiele), dafür muss man im CCM-Formalismus nun nicht mehr zwischen den verschiedenen initialen Einteilchenzuständen unterscheiden. Das bedeutet, man kann in den Clusteroperatoren jeden Gitterplatz gleich behandeln und diese nur aus Produkten von S^+ -Operatoren konstruieren (2.62), was ein großer Vorteil bei der Implementierung des Algorithmus in einem Computerprogramm ist.

2.3.3. Magnetischer Ordnungsparameter

Die Wahl eines passenden Modellzustands ist nicht immer eindeutig, und in der Regel ist sie abhängig von den Parametern des Modells. Um die Wahl eines Modellzustands zu rechtfertigen, kann die damit berechnete Grundzustandsenergie mit den alternativen Modellzuständen verglichen werden. Eine unter Umständen bessere Möglichkeit ergibt sich durch die Definition eines normierten Ordnungsparameters, mit dessen Hilfe ein weiteres Entscheidungskriterium zur Verfügung steht. Die Grundlage für eine solche Definition ist die bereits diskutierte Eigenschaft, dass mit der Wahl des Modellzustands bereits die Symmetrien des Grundzustandsansatzes festgelegt werden (siehe Abschnitt 2.2). Der folgende *magnetische Ordnungsparameter*:

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal}, \quad (2.67)$$

ist maximal ($M_{\max} = \hbar s$), wenn der Grundzustand bzw. seine Näherung identisch mit dem Modellzustand ist. Die Bezeichnung „magnetisch“ bezieht sich auf die Ähnlichkeit zur eigentlichen „Magnetisierung“, bei der allerdings die globalen und nicht die lokalen (im Sinne der lokalen Koordinatentransformation), also transformierten, \hat{S}_i^z Erwartungswerte aufsummiert werden.

Der magnetische Ordnungsparameter lässt sich daher auch als Maß für die Abweichung von der durch den Modellzustand vorgegebenen Ordnung (Analog zur klassischen Spinorientierung) interpretieren und erlaubt damit eine Bestimmung der Grenzen, der mit dem Modellzustand assoziierten Grundzustandsphasen. Wenn der Ordnungsparameter positiv ist, ist von einem langreichweitig geordnetem Grundzustand auszugehen, ist er Null oder

negativ ist der Grundzustand ungeordnet bzw. zumindest nicht geordnet im Sinne des gewählten Modellzustands.

2.3.4. Ähnlichkeitstransformation des Hamiltonoperators

Im nächsten Schritt kann nun die Ähnlichkeitstransformation des Hamiltonoperators:

$$\bar{H} = e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} = \sum_{i,j} J_{ij} e^{-\hat{S}} \hat{S}_i^a \hat{S}_j^b e^{\hat{S}} \quad (2.68)$$

durchgeführt werden. Es wurde bereits darauf hingewiesen, dass der Hamiltonoperator des Heisenberg-Modells im Allgemeinen (d.h. nach Durchführung der lokalen Koordinatentransformation) aus bis zu neun verschiedenen Produkttermen der drei Operatoren S_i^+, S_i^-, S_i^z bestehen kann, für welche die Ähnlichkeitstransformation wegen (2.30) getrennt durchgeführt werden kann:

$$e^{-\hat{S}} \hat{S}_i^a \hat{S}_j^b e^{\hat{S}} = e^{-\hat{S}} \hat{S}_i^a e^{\hat{S}} e^{-\hat{S}} \hat{S}_j^b e^{\hat{S}}; \quad a, b \in \{+, -, z\}. \quad (2.69)$$

Da außerdem davon ausgegangen werden kann, dass die Clusteroperatoren, aus denen der Korrelationsoperator \hat{S} konstruiert wurde, von der Form (2.62) sind (also nur aus S^+ -Operatoren bestehen), spielen bei der Ähnlichkeitstransformation nur folgende Kommutatoren eine Rolle:

$$[\hat{S}_i^-, \hat{S}_j^+] = -2\hbar \hat{S}_i^z \delta_{ij}, \quad [\hat{S}_i^z, \hat{S}_j^+] = \hbar \hat{S}_i^+ \delta_{ij}, \quad [\hat{S}_i^+, \hat{S}_j^+] = 0. \quad (2.70)$$

Eine Vertauschung der auftretenden Spin-Operatoren wandelt diese somit sukzessive, nach maximal 2 Vertauschungen, in S^+ -Operatoren um:

$$\hat{S}^- \Rightarrow \hat{S}^z \Rightarrow \hat{S}^+,$$

die dann schlussendlich mit allen Clusteroperatoren vertauschen. Für Produkte zweier solcher Operatoren kann die Ähnlichkeitstransformation also maximal 4 Korrelationskoeffizienten pro Term enthalten. Mit Ausnahme des letzten Terms können die niedrigeren Ordnungen der Ähnlichkeitstransformation allerdings noch störende S^z - und S^- -Operatoren enthalten, diese können aber einfach unter Ausnutzung der Vertauschungsrelationen (2.70) an die rechte Seite der Produktterme verschoben werden. Da für das Gewinnen der modell-spezifischen Ket- und Bra-Gleichungen aus den Gleichungen (2.3) und (2.19) eigentlich nur die „Wirkungen“ der transformierten Operatorterme auf den Modellzustand relevant sind:

$$\bar{S}_i^a \bar{S}_j^b |\Phi_0\rangle, \quad a, b \in \{+, -, z\}, \quad (2.71)$$

2. Die Coupled-Cluster-Methode

kann man die entsprechend geordneten Produkte wegen

$$\hat{S}_i^z |\Phi_0\rangle = -\hbar s |\Phi_0\rangle, \quad \hat{S}_i^- |\Phi_0\rangle = 0; \quad \text{für alle Gitterplätze } i, \quad (2.72)$$

auf eine Form bringen, die in allen Ordnungen nur noch S^+ -Operatoren enthält. Eine allgemeine Darstellung der Transformation für beliebige Spinquantenzahlen sind beispielsweise in [14, 15] zu finden. Für den Spezialfall $s = 1/2$ ergibt sich die folgende endgültige Form aller möglichen auftretenden Terme (für ausführlichere Herleitung siehe [15–17]).

$$\bar{S}_i^+ \bar{S}_j^+ |\Phi_0\rangle = S_i^+ S_j^+ |\Phi_0\rangle, \quad (2.73)$$

$$\begin{aligned} \bar{S}_i^- \bar{S}_j^- |\Phi_0\rangle = & \left[(2G_{ij}^2 + 4F_i F_j G_{ij} + F_i^2 F_j^2) S_i^+ S_j^+ - (2G_{ij} F_j + F_i F_j^2) S_j^+ \right. \\ & \left. - (2G_{ij} F_i + F_i^2 F_j) S_i^+ + G_{ij} + F_i F_j \right] |\Phi_0\rangle, \end{aligned} \quad (2.74)$$

$$\bar{S}_i^+ \bar{S}_j^- |\Phi_0\rangle = (-F_j^2 S_i^+ S_j^+ + F_j S_i^+) |\Phi_0\rangle, \quad (2.75)$$

$$\bar{S}_i^- \bar{S}_j^+ |\Phi_0\rangle = (-F_i^2 S_i^+ S_j^+ + F_i S_j^+) |\Phi_0\rangle, \quad (2.76)$$

$$\bar{S}_i^z \bar{S}_j^z |\Phi_0\rangle = \left[(G_{ij} + F_i F_j) S_i^+ S_j^+ - \frac{1}{2} F_i S_i^+ - \frac{1}{2} F_j S_j^+ + \frac{1}{4} \right] |\Phi_0\rangle, \quad (2.77)$$

$$\bar{S}_i^+ \bar{S}_j^z |\Phi_0\rangle = \left(F_j S_i^+ S_j^+ - \frac{1}{2} S_i^+ \right) |\Phi_0\rangle, \quad (2.78)$$

$$\bar{S}_i^z \bar{S}_j^+ |\Phi_0\rangle = \left(F_i S_i^+ S_j^+ - \frac{1}{2} S_j^+ \right) |\Phi_0\rangle, \quad (2.79)$$

$$\begin{aligned} \bar{S}_i^z \bar{S}_j^- |\Phi_0\rangle = & \left[(-F_i F_j^2 - 2F_j G_{ij}) S_i^+ S_j^+ + (G_{ij} + F_i F_j) S_i^+ + \frac{1}{2} F_j^2 S_j^+ - \frac{1}{2} F_j \right] |\Phi_0\rangle, \\ & (2.80) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \bar{S}_i^- \bar{S}_j^z |\Phi_0\rangle = & \left[(-F_i^2 F_j - 2F_i G_{ij}) S_i^+ S_j^+ + (G_{ij} + F_i F_j) S_j^+ + \frac{1}{2} F_i^2 S_i^+ - \frac{1}{2} F_i \right] |\Phi_0\rangle. \\ & (2.81) \end{aligned}$$

Dabei wurden folgende Abkürzungen verwendet:

$$F_k = \sum_{l=0}^N (l+1) \sum_{i_1 \dots i_l} [k i_1 \dots i_l] \hat{S}_{i_1}^+ \dots \hat{S}_{i_l}^+ = [k] + 2 \sum_i [k i] \hat{S}_i^+ + \dots, \quad (2.82)$$

$$G_{km} = \sum_{l=0}^N (l+2)(l+1) \sum_{i_1 \dots i_l} [k m i_1 \dots i_l] \hat{S}_{i_1}^+ \dots \hat{S}_{i_l}^+ = 2[km] + 6 \sum_i [k m i] \hat{S}_i^+ + \dots. \quad (2.83)$$

Ebenfalls neu eingeführt wurde eine kompakte, auf die wesentliche Information reduzierte Schreibweise für die Korrelationskoeffizienten:

$$[i_1, \dots, i_n] = [I] := s_I. \quad (2.84)$$

Dieser Ausdruck steht also für den Korrelationskoeffizienten s_I , der zugehörig zum Clusteroperator \hat{C}_I^\dagger vollständig durch die Angabe der Orte oder Gitterplätze bestimmt ist, an denen die \hat{S}^+ -Operatoren, die diesen Cluster bestimmen, wirken. Im Fall $s = 1/2$ müssen die einzelnen Gitterplatzindizes verschieden sein, da auf jeden Gitterplatz nur ein einziger \hat{S}^+ -Operator wirken kann. Im Allgemeinen ($s \geq 1/2$) können die Indizes aber durchaus identisch sein.

2.3.5. Approximationsschemata

Im Abschnitt 2.1.4 wurde bereits auf die Notwendigkeit der Einführung bestimmter Approximationsschemata zur Näherung des Korrelationsoperators (2.3):

$$\hat{S} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger; \quad \hat{C}_I^\dagger = \hat{S}_{I_1}^+ \dots \hat{S}_{I_{|I|}}^+$$

eingegangen, welche die Erzeugung eines endlichen und damit numerisch lösbaren CCM-Gleichungssystem erst möglich machen. In diesem Abschnitt werden nun die am häufigsten verwendeten Schemata vorgestellt.

Das SUB n - m -Schema

Das SUB n - m -Schema berücksichtigt nur solche Clusteroperatoren \hat{C}_I^\dagger , die aus maximal n Spinflip-Operatoren (aufgrund der durchgeführten lokalen Koordinatentransformation entspricht dies der Anzahl der S^+ -Operatoren) auf einem Bereich m zusammenhängender Gitterplätze (siehe Abbildung 2.1) bestehen. Es hat sich gezeigt, dass der Spezialfall $m = n$, bei dem man also nur genauso viele Spinflips erlaubt wie es Gitterplätze im betrachteten Bereich gibt, auch für Systeme mit höherem Spin ab $s = 1$ noch hinreichend gut geeignet ist [14].⁸

Das SUB n -Schema

Das SUB n -Schema ist im Prinzip ein Spezialfall des SUB n - m -Schemas, es berücksichtigt maximal n Spinflips, diese können allerdings auf dem gesamten Gitter verteilt sein:

$$\text{SUB}n = \lim_{m \rightarrow \infty} \text{SUB}n-m. \quad (2.85)$$

Dieses Approximationsschema fand vor allem durch eine Reihe analytischer Berechnungen im Spezialfall $n = 2$ Beachtung [13, 18] (für höhere Werte von n ist es analytisch nicht mehr realisierbar).

⁸Anmerkung: für Spinquantenzahlen $s > 1/2$ sind mehrere Spinflips pro Gitterplatz möglich und mit steigender Spinquantenzahl wird die Anzahl nicht berücksichtigter Spinflips natürlich immer größer, weshalb die Eignung des Spezialfalls $m=n$ mit zunehmender Spinquantenzahl immer mehr abnimmt.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

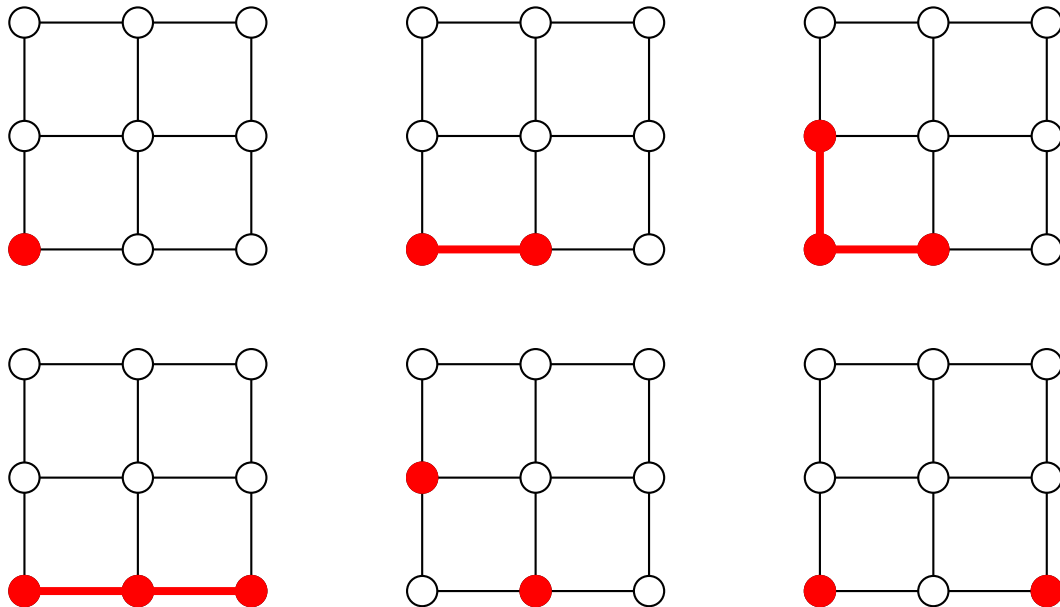


Abbildung 2.1.: Alle möglichen fundamentalen Spinflip-Konfigurationen auf Gebieten von bis zu $m = 3$ zusammenhängender Gitterplätze auf einem isotropen Quadratgitter. Es sind dabei maximal $2s$ Spinflips auf den rot markierten Gitterplätzen möglich. Für $s = 1/2$ ergeben sich damit also sechs verschiedene Konfigurationen in SUB3-3 bzw. LSUB3. Im nicht-isotropen Fall (bei Symmetriebrechung durch Hamiltonoperator und/oder Modellzustand) erhöht sich die Anzahl der Konfigurationen auf insgesamt 13 (man erhält sie durch die Anwendung von Rotationen in 90° Schritten und Spiegelungen an der x- und y-Achse auf die dargestellten Konfigurationen).

Das LSUB m -Schema

Das LSUB m -Approximationsschema zählt neben dem SUB m - m -Schema zu den am häufigsten verwendeten. Es berücksichtigt sämtliche möglichen Spinflips auf einem Bereich m zusammenhängender Gitterplätze. Es handelt sich ebenfalls um einen Spezialfall des SUB n - m -Schemas:

$$\text{LSUB}_m = \text{SUB}_{n-m} \quad \text{mit} \quad n = 2sm. \quad (2.86)$$

2.3.6. Extrapolation der Resultate

Grundsätzlich lässt sich festhalten, dass die im letzten Abschnitt beschriebenen Approximationen den exakten Fall umso besser beschreiben, je höher die betrachtete Näherungsstufe ist. Je komplizierter die Modelle werden, d.h. je mehr Spinträger pro Elementarzelle zu berücksichtigen sind und je höher die Zahl der nächsten Nachbarn und damit die Zahl der Wechselwirkungsterme ist, desto aufwendiger wird es Näherungsstufen zu berechnen, welche die exakten Werte mit der gewünschten Genauigkeit annähern. In der Praxis ist es häufig so, dass man mit den zum jetzigen Zeitpunkt zur Verfügung stehenden Rechnerkapazitäten bei den zweidimensionalen Modellen üblicherweise die Näherungsstufen SUB8-8 bis SUB12-12 erreichen kann, für Spinquantenzahlen $s > 1/2$ und dreidimensionale Modelle liegt das Maximum in der Regel darunter. Untersuchungen an eindimensionalen

Modellen (bei denen sehr viel höhere Näherungsstufen berechenbar sind) haben gezeigt, dass man selbst bei einer Näherungsstufe von SUB18-18 für die schlechter konvergierenden Observablen, wie dem magnetischen Ordnungsparameter, immer noch nicht von einer hinreichend genauen Approximation des exakten Wertes ausgehen kann.

Mit der zunehmenden Anzahl an mit der CCM durchgeführten Untersuchungen verschiedenster Modelle konnte sich aber die grundlegende Erkenntnis durchsetzen, dass die meisten (praktisch alle bisher untersuchten) Systemobservablen O eine polynomiale Abhängigkeit von der Approximationsstufe SUB m - m folgender Art aufweisen:

$$O(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m^\alpha} \right) + a_2 \left(\frac{1}{m^\alpha} \right)^2 + a_3 \left(\frac{1}{m^\alpha} \right)^3 + \dots, \quad (2.87)$$

wobei α üblicherweise die Werte 1, 1/2 oder 2 annimmt. Es zeigte sich außerdem, dass die Abhängigkeit von m im Wesentlichen von der ersten Ordnung dieses Polynoms (dem $1/m^\alpha$ -Term) dominiert wird und alle weiteren Terme mit zunehmender Ordnung deutlich weniger relevant werden. An dieser Stelle sollte aber nicht unerwähnt bleiben, dass es bisher nicht gelungen ist, diesen Zusammenhang mathematisch formal zu begründen. Er ist aber prinzipiell plausibel und erwies sich in der Praxis bisher als sehr erfolgreich bei der im Folgenden beschriebenen Extrapolation des exakten Grenzfalles $\lim_{m \rightarrow \infty} \text{LSUB}m$.

Die Grundidee bei der Extrapolation des exakten Wertes für die untersuchte Systemobservable besteht darin, dass der Ansatz (2.87) im Grenzfall beliebig hoher Approximationsstufen seinem konstanten Term entspricht:

$$\lim_{m \rightarrow \infty} O(m) = a_0.$$

Aufgrund der beschriebenen Existenz eines dominanten Terms ist es nun möglich, die Koeffizienten vor allen anderen Termen, von einem zusätzlich berücksichtigten Korrekturterm abgesehen, gleich Null zu setzen und damit ein Polynom mit nur noch drei Freiheitsgraden zu erhalten:

$$O_{\alpha,\beta}(m) = a_0 + \tilde{a}_1 \left(\frac{1}{m} \right)^\alpha + \tilde{a}_2 \left(\frac{1}{m} \right)^\beta. \quad (2.88)$$

Die noch unbestimmten Koeffizienten lassen sich nun mittels eines Standardverfahrens zur Ausgleichsrechnung, der sogenannten *Methode der kleinsten Quadrate*, mit Hilfe des frei verfügbaren Programms *GNUplot*, aus den zuvor ermittelten Approximationen der Observable berechnen bzw. optimieren. Hierbei ist sowohl die Wahl des Korrekturterms als auch die willkürlich erscheinende Begrenzung auf drei zu bestimmende Koeffizienten das Resultat der langjährigen Erfahrung mit der Methode. Wie schon eingangs erwähnt, liegt die höchste zu erreichende Approximationsstufe für bestimmte Modelle nur bei SUB8-8 (manchmal auch darunter) und da es unter Umständen sinnvoll sein kann, bestimmte Ap-

2. Die Coupled-Cluster-Methode

proximationsstufen bei der Berechnung der Fitfunktion auszulassen⁹, kann es vorkommen, dass bei der Berücksichtigung von mehr als drei Koeffizienten nicht genügend Datenpunkte zur Verfügung stehen. In der Regel ist ein zusätzlicher Term aber auch nicht nötig, um die gewünschte Genauigkeit zu erreichen. Ein weiteres Argument für die Beschränkung auf eine feste Anzahl von offenen Parametern ist, dass damit ein einheitliches Schema festgelegt werden kann, dass für sämtliche Modelle Gültigkeit besitzt und somit eine Vergleichbarkeit der Resultate erlaubt.

Wie schon angedeutet, hängen die Parameter α und β in (2.88) von der betrachteten Observable ab. Für die Grundzustandsenergie beispielsweise erwies sich die Wahl:

$$e_0(m) = E_0/N(m) := O_{2,4}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right)^2 + a_2 \left(\frac{1}{m}\right)^4, \quad (2.89)$$

in praktisch allen mit der CCM untersuchten Modellen als die mit Abstand geeignetste Fitfunktion. Dies zeigte sich insbesondere auch an solchen Modellen, für die es sehr genaue oder sogar exakte Vergleichsdaten gibt (wie das Quadratgitter oder die lineare Kette). Bei anderen Observablen kann die Wahl der Exponenten durchaus auch vom untersuchten Modell oder bestimmten Modellparametern abhängen. Für den magnetischen Ordnungsparameter gibt es beispielsweise zwei verschiedene Ansätze:

$$M_1(m) := O_{1,2}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right) + a_2 \left(\frac{1}{m}\right)^2 \quad (2.90)$$

$$M_2(m) := O_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}} + a_2 \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{3}{2}}, \quad (2.91)$$

wobei der Erste von beiden sich bisher als besonders gut für geordnete Phasen erwiesen hat und der Zweite Übergänge in ungeordnete Phasen deutlich besser beschreibt. Üblicherweise berechnet man beide Extrapolationen und entscheidet sich in dem Fall, dass beide Ordnungsparameter auf einen Phasenübergang hinweisen, für den zweiten Ansatz und im Fall, dass beide Ordnungsparameter endlich bleiben für den ersten Ansatz. Wenn diese Methode nicht funktioniert, muss im Einzelfall entschieden werden ob es andere Kriterien gibt, die einem der beiden Ansätze einen klaren Vorzug geben oder ein ganz anderer Ansatz besser geeignet ist. Die Vielzahl an Veröffentlichungen zur CCM legen allerdings grundsätzlich nahe, dass der Ansatz M_2 eine Art untere Schranke und der Ansatz M_1 eine obere Schranke für den magnetischen Ordnungsparameter liefert.

Es kann aber auch Systemobservable geben, für die eine eindeutige Wahl der Parameter α

⁹Beispiele dafür sind das Auslassen der SUB2-2 Daten, die oftmals die Besonderheiten des Modells nur unzureichend erfassen und daher teilweise recht deutlich von der durch die Fitfunktion angesetzten Abhängigkeit abweichen. Ein anderes Beispiel ist der sogenannte „Odd-Even-Effekt“ (siehe Abschnitt 2.3.6). Das Ziel ist es immer mindestens vier Datenpunkte, also einen mehr als Freiheitsgrade zur Verfügung stehen, einzubeziehen.

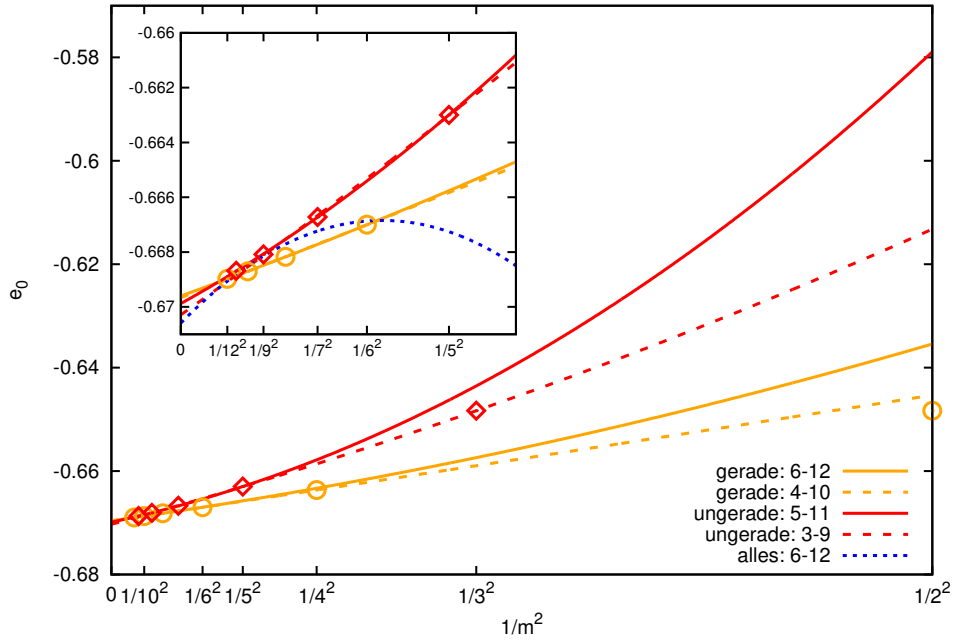


Abbildung 2.2.: Grundzustandsenergieapproximationen für den HAFM auf dem Quadratgitter von LSUB2 bis LSUB12.

und β nicht möglich ist bzw. deren Wahl stark von bestimmten Modellparametern abhängt. Hier hat es sich als erfolgversprechend erwiesen, einen offenen Exponenten als dritten Freiheitsgrad einzuführen:

$$O_{\text{ex}}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m} \right)^{a_2}. \quad (2.92)$$

Unabhängig von den gewählten Extrapolationsschemata gilt aber, dass die Resultate umso besser werden, je höher die Stufe der berücksichtigten Approximationen sind, ihre Anzahl ist von weitaus geringerer Bedeutung. In der Regel ist es bei vielen zur Verfügung stehenden Datensätzen (ungefähr ab sechs Datenpunkten) sogar sinnvoll, niedrige Approximationsstufen unberücksichtigt zu lassen, da diese häufig stärker von der ja nur näherungsweise Beschreibung durch die Fitfunktion abweichen.

Odd-Even-Effekt

Bei der Verwendung von kollinearen Modellzuständen (siehe Abschnitt 2.3.1) tritt eine als *Odd-Even-Effekt* bezeichnete Besonderheit auf, die die gleichzeitige Berücksichtigung von geraden und ungeraden Approximationsstufen bei der Extrapolationen beliebiger Systemobservablen verbietet [19]. Zur Verdeutlichung sind in der Abbildung 2.2 die auf einem Néelzustand basierenden Berechnungen der von LSUB2 bis LSUB12 approximierten Grundzustandsenergie des HAFM auf einem einfachen Quadratgitter dargestellt.

Es zeigt sich, dass die geraden und die ungeraden Approximationsstufen für sich genommen durchaus näherungsweise einem bestimmten funktionalen Zusammenhang folgen.

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Dieser unterscheidet sich für beide Gruppen allerdings so stark voneinander, dass eine Extrapolation unter Einbeziehung aller Datensätze zu offensichtlich stark fehlerbehafteten Resultaten führt. Die Ursache für dieses abweichende Verhalten lässt sich vermutlich auf die besonderen Symmetrien der aus den kollinearen Modellzuständen konstruierten Ket-Grundzustände zurückführen, bzw. auf die Auswirkungen der S^z -Erhaltung auf die Clusteroperatoren \hat{C}_I^\dagger . In Abschnitt 2.2 wurde gezeigt, dass gerade jene Korrelationskoeffizienten Null sein müssen, die zu Clusteroperatoren gehören, die nicht mit dem \hat{S}^z -Operator vertauschen. Für die kollinearen Modellzustände lassen sich die Clusteroperatoren als Produkte von \hat{S}^+ - und \hat{S}^- -Operatoren schreiben (die lokale Koordinatentransformation wird hier o.B.d.A. außer acht gelassen):

$$\hat{C}_I^\dagger = \underbrace{\hat{S}_{I_1^+}^+ \cdots \hat{S}_{I_{n^+}^+}^+}_{\hat{C}_{I^+}^\dagger} \underbrace{\hat{S}_{I_1^-}^- \cdots \hat{S}_{I_{n^-}^-}^-}_{\hat{C}_{I^-}^\dagger}.$$

Diese Operatoren vertauschen gerade dann mit \hat{S}^z wenn die Anzahl der \hat{S}^+ - und der \hat{S}^- -Operatoren gleich ist ($n^+ = n^-$), was sich wie folgt zeigen lässt:

$$\begin{aligned} [\hat{S}^z, \hat{C}_I^\dagger] &= [\hat{S}^z, \hat{C}_{I^+}^\dagger \hat{C}_{I^-}^\dagger] = [\hat{S}^z, \hat{C}_{I^+}^\dagger] \hat{C}_{I^-}^\dagger + \hat{C}_{I^+}^\dagger [\hat{S}^z, \hat{C}_{I^-}^\dagger] \\ &= \sum_{\substack{i=1 \\ i \in I^+}}^N [\hat{S}_i^z, \hat{C}_{I^+}^\dagger] \hat{C}_{I^-}^\dagger + \sum_{\substack{i=1 \\ i \in I^-}}^N \hat{C}_{I^+}^\dagger [\hat{S}_i^z, \hat{C}_{I^-}^\dagger] \\ &= \hbar \sum_{\substack{i=1 \\ i \in I^+}}^N \hat{C}_{I^+}^\dagger \hat{C}_{I^-}^\dagger - \hbar \sum_{\substack{i=1 \\ i \in I^-}}^N \hat{C}_{I^-}^\dagger \hat{C}_{I^+}^\dagger = \hbar \hat{C}_I^\dagger (n^+ - n^-). \end{aligned}$$

Dies bedeutet aber insbesondere, dass Clusteroperatoren die aus einer ungeraden Anzahl von Spinoperatoren (egal welchen Typs) bestehen, von vornherein ausgeschlossen sind. Für das LSUB m -Approximationsschema heißt das aber nichts anderes, als dass sich die ungeraden Approximationsstufen von ihren direkten Vorgängern nicht durch die Berücksichtigung von zusätzlichen Spinflips, sondern nur durch einen zusätzlichen Gitterplatz innerhalb der größten Konfigurationen unterscheiden können. Die ungeraden und geraden Approximationsstufen lassen sich etwas anschaulicher auch dadurch charakterisieren, dass erstere sich von ihren Vorgängern wesentlich durch zusätzliche unverbundene und letztere durch zusätzlich verbundene Cluster unterscheiden. Da der *Odd-Even-Effekt* eine Besonderheit der kollinearen Modellzustände ist und die S^z -Erhaltung bei den nichtkollinearen Modellzuständen im Allgemeinen nicht zu einem Ausschluss sämtlicher Clusteroperatoren mit ungerader Anzahl an Spinoperatoren führt, liegt der Schluss nahe, dass die funktionale Abhängigkeit der Approximationen von ihrer Stufe im Wesentlichen vom Typ der größten berücksichtigten Konfigurationen bestimmt wird.

Klar ist aber auch, dass diese Argumentation und das Verfahren der Extrapolation an sich nur dann schlüssig ist, wenn sowohl die Extrapolationen über die geraden als auch die über die ungeraden Approximationsstufen im Grenzfall $m \rightarrow \infty$ auf denselben Wert hinauslaufen. Am Beispiel des Quadratgitters lässt sich in der Tat recht gut erkennen, dass trotz der zunächst stark verschiedenen Anstiege bei der Berücksichtigung höherer Näherungsstufen, tatsächlich eine Annäherung beider Extrapolationen stattfindet (siehe Abb. 2.2). In der Praxis hat es sich daher auch durchgesetzt, sich bei den kollinearen Modellzuständen auf die Extrapolation der geraden Näherungsstufen zu beschränken.

2.4. Formulierung der CCM mit Dimer-Spinoperatoren

Der im vorherigen Abschnitt beschriebene „Einteilchen“-Formalismus ist aufgrund der notwendigen Spezialisierung auf einen bestimmten Typ von Clusteroperatoren bei der Implementierung der CCCM auf Modellzustände in der Form kollinear und nichtkollinear Einteilchen-Produktzustände beschränkt. Die Verwendung anderer Typen von Modellzuständen erfordert daher entweder eine Erweiterung des bisherigen oder die Entwicklung eines völlig neuen Programms. Letzteres wurde für den Spezialfall der sogenannten Zweiteilchen- oder Dimer-Produktzustände (mit $s = 1/2$) im Rahmen dieser Dissertation vom Autor selbstständig durchgeführt. Die vielversprechenden ersten Resultate dieser neuen CCM-Implementierung (ab jetzt DCCM) werden im nächsten Kapitel vorgestellt. Die technischen Grundlagen und eine Beschreibung des den Dimer-Produktzuständen angepassten CCM-Formalismus folgen in diesem Abschnitt.

2.4.1. Motivation

Der Ausgangspunkt der folgenden Betrachtungen ist die Suche nach einer adäquaten Beschreibung sogenannter „Valence-Bond Solids“ (VBS) im Rahmen der CCM. Ein VBS ist ein Vielteilchenzustand, der dadurch charakterisiert ist, dass jeder beteiligte Spin mit einem seiner nächsten Nachbarn einen rotationsinvarianten Spin-0-Zweiteilchenzustand (Singulett) bildet. Für Spins mit $s = 1/2$ lässt sich ein Singulett (auch Valence-Bond genannt) wie folgt darstellen:

$$|0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle). \quad (2.93)$$

Hierbei handelt es sich um einen nichtklassischen, stark korrelierten Zweiteilchenzustand, der sich gerade nicht mehr als Produktzustand von Einteilchenzuständen schreiben lässt. Dies gilt insbesondere für den vollständigen VBS, der sich als Produktzustand solcher Singuletts darstellen lässt:

$$|\Phi_0\rangle = |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes |0\rangle \dots \quad (2.94)$$

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Solche nichtmagnetischen VBS-Zustände spielen in der Festkörperphysik eine bedeutende Rolle in realen Materialien [20, 21], speziell auch bei der experimentellen Erforschung der *Bose-Einstein-Kondensation* von Magnonen (d.h. den Triplet-Anregungen von Singulett) [22]. In der CCCM lassen sich solche VBS-Zustände allerdings nicht als Modellzustände verwenden, was die Möglichkeiten der Untersuchung von Modellen, in denen sie eine Rolle spielen, deutlich einschränkt. Im Folgenden wird daher ein Formalismus beschrieben, der die CCM auf solche dimerisierten Systeme anwendbar macht.

2.4.2. Theoretische Grundlagen

Eine Basis des Hilbertraumes der Spin-1/2 Zweiteilchen-Zustände, die auch dem Fokus auf die Singulett-Zustände gerecht wird, besteht aus dem Singulett-Zustand selbst und den drei sogenannten Triplets:

$$\begin{aligned} |0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \\ |1\rangle &= |\uparrow\uparrow\rangle, \quad |2\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle), \quad |3\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle. \end{aligned} \quad (2.95)$$

Es gilt außerdem:

$$\langle n|m\rangle = \delta_{nm}. \quad (2.96)$$

Aus diesen Zuständen lässt sich wieder eine Produktbasis für den Gesamthilbertraum \mathcal{H} konstruieren:

$$\begin{aligned} |1\rangle_{\mathcal{H}} &= |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots & |2\rangle_{\mathcal{H}} &= |1\rangle \otimes |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots \\ |3\rangle_{\mathcal{H}} &= |2\rangle \otimes |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots & |4\rangle_{\mathcal{H}} &= |3\rangle \otimes |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots \\ |5\rangle_{\mathcal{H}} &= |0\rangle \otimes |1\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots & |6\rangle_{\mathcal{H}} &= |1\rangle \otimes |1\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots \\ & & & \vdots \end{aligned} \quad (2.97)$$

Im Umgang mit diesen Zuständen wäre eine Konstruktion der Clusteroperatoren basierend auf der bisher verwendeten Einteilchen-Operatorbasis:

$$S^z, S^+, S^-, \quad (2.98)$$

und dem Identitätsoperator nicht geeignet, da das eigentliche Ziel, die Clusteroperatoren $\{C^\dagger\}$ möglichst einfach, idealerweise als Produkte der elementaren Operatoren zu konstruieren, bereits bei einfachen Operationen (wie der Beschreibung des Übergangs von einem Basiszustand in einen anderen) Komplikationen verursacht. Die Einteilchenoperatoren

erhalten beispielsweise nicht die Normierung der Basiszustände:

$$\hat{S}_1^+ \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) = -\frac{1}{\sqrt{2}} |\uparrow\uparrow\rangle. \quad (2.99)$$

Ein möglicher Ausweg könnte eine Transformation \hat{T} des Singulett-Modellzustands in einen ferromagnetisch geordneten Produktzustand sein, ähnlich einer Koordinatentransformation:

$$\hat{T} |0\rangle = \hat{T} \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) = |\downarrow\downarrow\rangle, \quad (2.100)$$

in dieser Darstellung könnte dann theoretisch mit den auch in der CCCM verwendeten Spinstufenoperatoren (2.98) gearbeitet werden. Eine Transformation, die dies leistet (und auf andere Zustände als Vernichter wirkt), hätte folgende Form:

$$\hat{T} = \frac{1}{\sqrt{2\hbar}} \left(\hat{S}_1^+ + \hat{S}_2^+ \right) \left(\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z \right). \quad (2.101)$$

Eine solche Herangehensweise ist allerdings unpraktikabel, da sie die Berücksichtigung der S^z -Erhaltung (siehe Abschnitt 2.2.2) bei der Konstruktion der Clusteroperatoren aus den Spinstufenoperatoren unnötig kompliziert macht. Der Übergang zu Zweiteilchenoperationen als elementare Konstruktionseinheiten der Clusteroperatoren ermöglicht außerdem eine viel kompaktere Darstellung von Singulett-Triplett-Übergängen.

2.4.3. Dimeroperatoren

Die nun vorgestellte Zweiteilchen-Operatorbasis geht ursprünglich auf eine Arbeit von J.B. Parkinson aus dem Jahr 1979 zurück [23]. Ihre erste und bisher einzige Verwendung in einem Coupled-Cluster-Ansatz wurde im Jahr 1994 von Y. Xian bei der analytischen Lösung der SUB2-Gleichungen für die frustrierte Heisenberg-Kette beschrieben [13, 24].

Die einfachste Basis des Vektorraums der linearen Operatoren auf dem vierdimensionalen Hilbertraum der Zweiteilchenzustände (im Spezialfall $s = 1/2$), lässt sich konstruieren aus allen 4×4 -Matrizen die nur einen einzigen 1-Eintrag besitzen und an jeder anderen Stelle nur Nulleinträge aufweisen

$$\hat{A}_{ij} = \begin{pmatrix} & & & & \\ & & & & \vdots \\ & & & & \vdots \\ 0 & & & & \vdots \\ \dots & \dots & 1_{ij} & \dots & \\ & & & & \vdots \\ & & & & 0 \end{pmatrix}. \quad (2.102)$$

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Angewendet auf die kanonische Zweiteilchen-Basis (2.95) (dargestellt als Spaltenvektoren):

$$|0\rangle = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |1\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |2\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \quad |3\rangle = \begin{pmatrix} 0 \\ 0 \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (2.103)$$

bewirken die Dimer-Operatoren entweder eine Transformation von einem Basiszustand in einen anderen oder sie vernichten den Zustand im Fall nicht übereinstimmender Indizes.

$$|n\rangle = \hat{A}_{nm} |m\rangle; \quad 0 = \hat{A}_{nm} |k\rangle; \quad n, m, k \in \{0, 1, 2, 3\}, \quad m \neq k. \quad (2.104)$$

Es gibt also insgesamt 16 verschiedene Basis-Dimeroperatoren, die auf einfache Weise beliebige Transformationen der vier Basisvektoren des Produkt-Hilbertraumes der Zweiteilchenzustände untereinander ermöglichen (siehe auch Abb. 2.3). Die Dimeroperatoren

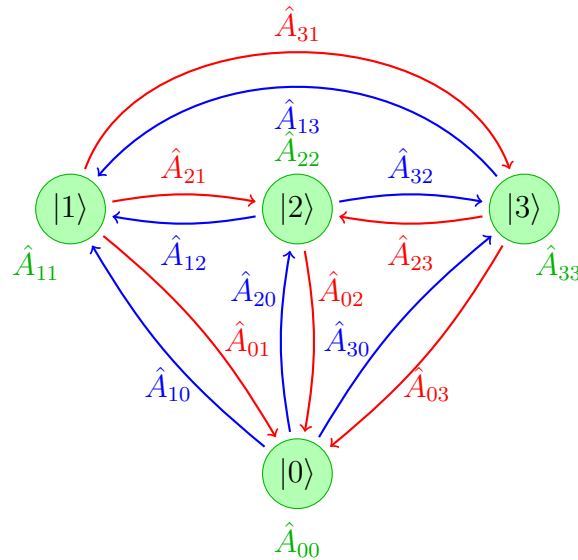


Abbildung 2.3.: Mittels der 16 Basis-Dimeroperatoren ist es möglich jeden Zustand der kanonischen Basis (2.95) des Zweiteilchen-Produkt-Hilbertraums in jeden anderen zu transformieren.

erfüllen folgende leicht nachprüfbare Vertauschungsrelationen:

$$\left[\hat{A}_{ij}^r, \hat{A}_{kl}^{r'} \right]_- = \delta_{rr'} \left(\hat{A}_{il}^r \delta_{jk} - \hat{A}_{kj}^r \delta_{il} \right), \quad (2.105)$$

der hier zusätzlich eingeführte Index r beschreibt den neuen Zweiteilchengitterplatz, auf den der Operator wirkt.

Darstellung der Einteilchenoperatoren

Für den Umgang mit den Dimeroperatoren benötigt man nun noch eine Darstellung der Systemobservablen, allen voran des Hamiltonoperators, in dieser neuen Dimeroperatorbasis. Für eine vollständige Beschreibung reicht es aus, sich auf die Darstellung der Einteilchenoperatorbasis:

$$\hat{S}^z, \hat{S}^+, \hat{S}^- \text{ und } \hat{1},$$

zu beschränken, wobei man aber zwischen den auf den ersten und den auf den zweiten Gitterplatz des Dimers wirkenden Operatoren unterscheiden muss:

$$\hat{S}_1^a := \hat{S}^a \otimes \hat{1}, \quad \hat{S}_2^a := \hat{1} \otimes \hat{S}^a. \quad (2.106)$$

Eine solche Darstellung kann man einfach aus der Matrixdarstellung eines solchen Einteilchenoperators (2.106) in der Zweiteilchenbasis (2.103) gewinnen, für deren Komponenten gilt:

$$(\hat{S}_i^a)_{lm} = \langle l | \hat{S}_i^a | m \rangle. \quad (2.107)$$

Da die Dimeroperatoren in ihrer Matrixdarstellung nur einen einzigen 1-Eintrag und sonst nur Nullen enthalten, kann man die Darstellung der Spinoperatoren in den Dimeroperatoren aus (2.107) einfach ablesen. Für den \hat{S}_1^z -Operator ergibt sich beispielsweise folgende Matrixdarstellung:

$$\hat{S}_1^z = \frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 \end{pmatrix} = \frac{\hbar}{2} (\hat{A}_{11} - \hat{A}_{33} + \hat{A}_{02} + \hat{A}_{20}). \quad (2.108)$$

Für die anderen Einteilchenoperatoren ist das Vorgehen analog und es ergibt sich die folgende Darstellung aller Einteilchen-Basisoperatoren in den Dimeroperatoren:

$$\begin{aligned} \hat{S}_1^z &= \frac{\hbar}{2} (\hat{A}_{11} - \hat{A}_{33} + \hat{A}_{02} + \hat{A}_{20}), & \hat{S}_2^z &= \frac{\hbar}{2} (\hat{A}_{11} - \hat{A}_{33} - \hat{A}_{02} - \hat{A}_{20}), \\ \hat{S}_1^+ &= \frac{\hbar}{\sqrt{2}} (\hat{A}_{12} + \hat{A}_{23} - \hat{A}_{10} + \hat{A}_{03}), & \hat{S}_2^+ &= \frac{\hbar}{\sqrt{2}} (\hat{A}_{12} + \hat{A}_{23} + \hat{A}_{10} - \hat{A}_{03}), \\ \hat{S}_1^- &= \frac{\hbar}{\sqrt{2}} (\hat{A}_{21} + \hat{A}_{32} - \hat{A}_{01} + \hat{A}_{30}), & \hat{S}_2^- &= \frac{\hbar}{\sqrt{2}} (\hat{A}_{21} + \hat{A}_{32} + \hat{A}_{01} - \hat{A}_{30}). \end{aligned} \quad (2.109)$$

Eine Umkehrtransformation lässt sich analog zu (2.107) aus einer Darstellung der Dimeroperatoren in der Produktbasis der Einteilchenzustände gewinnen. Da die Rechnung etwas aufwendiger ist und die Darstellung für den Formalismus nicht direkt benötigt wird, wird

2. Die Coupled-Cluster-Methode

sie hier nur der Vollständigkeit halber aufgeführt:

$$\begin{aligned}
\hat{A}_{00} &= \frac{1}{4} - \hat{S}_1^+ \hat{S}_2^+, & \hat{A}_{01} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^- - \hat{S}_2^-) (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z), \\
\hat{A}_{02} &= \frac{1}{2} (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z + \hat{S}_1^+ \hat{S}_2^- - \hat{S}_1^- \hat{S}_2^+), & \hat{A}_{03} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^+ - \hat{S}_2^+) (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z), \\
\hat{A}_{10} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^+ + \hat{S}_2^+) (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z), & \hat{A}_{11} &= \frac{1}{4} + \hat{S}_1^z \hat{S}_2^z + \frac{1}{2} (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z), \\
\hat{A}_{12} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^+ - \hat{S}_2^+) (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z), & \hat{A}_{13} &= \hat{S}_1^+ \hat{S}_2^+, \\
\hat{A}_{20} &= \frac{1}{2} (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z + \hat{S}_1^- \hat{S}_2^+ - \hat{S}_1^+ \hat{S}_2^-), & \hat{A}_{21} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^- + \hat{S}_2^-) (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z), \\
\hat{A}_{22} &= \frac{1}{4} - \hat{S}_1^z \hat{S}_2^z + \frac{1}{2} (\hat{S}_1^+ \hat{S}_2^- + \hat{S}_1^- \hat{S}_2^+), & \hat{A}_{23} &= -\frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^+ + \hat{S}_2^+) (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z), \\
\hat{A}_{30} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^- + \hat{S}_2^-) (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z), & \hat{A}_{31} &= \hat{S}_1^- \hat{S}_2^-, \\
\hat{A}_{32} &= \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{S}_1^- - \hat{S}_2^-) (\hat{S}_1^z - \hat{S}_2^z), & \hat{A}_{33} &= \frac{1}{4} + \hat{S}_1^z \hat{S}_2^z - \frac{1}{2} (\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z).
\end{aligned} \tag{2.110}$$

2.4.4. Die Clusteroperatoren

Im Folgenden kann immer davon ausgegangen werden, dass der Modellzustand in der DCCM als Singulett-Produktzustand (2.94) vorliegt. Unter dieser Voraussetzung lassen sich die Clusteroperatoren $\{\hat{C}_I^\dagger\}$ ausschließlich aus Produkten der drei Dimeroperatoren: \hat{A}_{10} , \hat{A}_{20} und \hat{A}_{30} zusammensetzen:

$$\hat{C}_I^\dagger = \underbrace{A_{10}^{r_1} \cdots A_{10}^{r_{n_1}}}_{\hat{C}_{I:A_{10}}} \underbrace{A_{20}^{r_{n_1+1}} \cdots A_{20}^{r_{n_1+n_2}}}_{\hat{C}_{I:A_{20}}} \underbrace{A_{30}^{r_{n_1+n_2+1}} \cdots A_{30}^{r_{n_1+n_2+n_3}}}_{\hat{C}_{I:A_{30}}}. \tag{2.111}$$

Alle anderen Dimeroperatoren \hat{A}_{00} und \hat{A}_{ni} (mit $n \in \{0, 1, 2, 3\}$ und $i \in \{1, 2, 3\}$) müssen in den Clusteroperatoren nicht berücksichtigt werden, da ersterer auf den Singulett-Zustand wie der Einheitsoperator wirkt und die übrigen wie „Vernichtungsoperatoren“. Jeder Clusteroperator ist daher eindeutig durch die Angabe der Gitterplätze auf denen die drei relevanten Dimeroperatoren wirken definiert, da jeder Gitterplatz hierbei nur einmal auftauchen kann, spielt die Reihenfolge der Dimeroperatoren keine Rolle.

Da der Korrelationsoperator $\hat{\mathcal{S}}$ die über ihre Korrelationskoeffizienten gewichtete Summe aller Clusteroperatoren ist, kann man alle Teilsummen, bestehend aus Clusteroperatoren mit einer bestimmten Anzahl n an Dimeroperatoren, in den Operatoren \hat{S}_n zusammenfassen und den Korrelationsoperator damit in einer kompakten Form wie folgt ausdrücken:

$$\hat{\mathcal{S}} = \sum_{n=1}^{N/2} \hat{S}_n. \tag{2.112}$$

In ihrer allgemeinen Form sehen die ersten beiden Teilsummen folgendermaßen aus:

$$\hat{S}_1 = \sum_{r=1}^{N/2} \left[s_r^{(1)} \hat{A}_{10}^r + s_r^{(2)} \hat{A}_{20}^r + s_r^{(3)} \hat{A}_{30}^r \right] \quad (2.113)$$

$$\begin{aligned} \hat{S}_2 = \sum_{r,r'}^{N/2} & \left[s_{r,r'}^{(1)} A_{10}^r A_{30}^{r'} + s_{r,r'}^{(2)} A_{20}^r A_{20}^{r'} + s_{r,r'}^{(3)} A_{10}^r A_{10}^{r'} + s_{r,r'}^{(4)} A_{30}^r A_{30}^{r'} \right. \\ & \left. + s_{r,r'}^{(5)} A_{10}^r A_{20}^{r'} + s_{r,r'}^{(6)} A_{20}^r A_{30}^{r'} \right]. \end{aligned} \quad (2.114)$$

Diese Ausdrücke lassen sich nun noch weiter vereinfachen, wenn man, wie in Abschnitt 2.2 beschrieben, die Symmetrien des Modells (d.h. des Hamiltonoperators und des verwendeten Modellzustands) ausnutzt. Hierbei bietet sich ganz konkret die „ S^z -Erhaltung“ an, die auf die Rotationsinvarianz des isotropen Hamiltonoperators zurückgeht (siehe Abschnitt 2.2.1) und gleichbedeutend mit der Aussage ist, dass dieser mit dem Operator der *totalen Magnetisierung* (in Richtung einer globalen z-Achse)

$$\hat{S}_T^z = \sum_{i=1}^N \hat{S}_i^z \quad (2.115)$$

vertauscht. Es lässt sich einfach nachrechnen, dass die Singulettzustände Eigenzustände dieses Operators sind (mit dem Eigenwert 0), also muss es nach Abschnitt 2.2.2 auch eine damit verträgliche Lösung für den Grundzustand (2.3) geben:

$$[\hat{\mathcal{S}}, \hat{S}_T^z]_- = 0. \quad (2.116)$$

In Abschnitt 2.2.2 wurde ebenfalls gezeigt, dass die notwendige Bedingung dafür ist, dass die Korrelationskoeffizienten s_J sämtlicher Clusteroperatoren \hat{C}_J^\dagger , die nicht mit \hat{S}_T^z vertauschen, nicht weiter berücksichtigt werden müssen, d.h. von vornherein auf Null gesetzt werden können.

Im Folgenden wird nun noch gezeigt, dass dies gleichbedeutend damit ist, dass in den \hat{S}_n nur noch solche Summanden zulässig sind, in denen die Anzahl der Operatoren vom Typ A_{10} und A_{30} gleich ist.

Für die Berechnung der Kommutatorrelation (2.116) ist es zunächst sinnvoll, den Operator (2.115) mittels der Transformationsgleichungen (2.109) durch die Dimeroperatoren darzustellen:

$$\hat{S}_T^z = \sum_{i=1}^N \hat{S}_i^z = \sum_{r=1}^{N/2} \left(\hat{S}_{1,r}^z + \hat{S}_{2,r}^z \right) = \hbar \sum_{r=1}^{N/2} \left(\hat{A}_{11}^r - \hat{A}_{33}^r \right).$$

2. Die Coupled-Cluster-Methode

Aus den Vertauschungsrelationen für die Dimeroperatoren (2.105) folgt insbesondere:

$$\begin{aligned} [\hat{A}_{11}^r, \hat{A}_{10}^{r'}] &= \delta_{r,r'} \hat{A}_{10}^r, & [\hat{A}_{11}^r, \hat{A}_{20}^{r'}] &= 0, & [\hat{A}_{11}^r, \hat{A}_{30}^{r'}] &= 0, \\ [\hat{A}_{33}^r, \hat{A}_{10}^{r'}] &= 0, & [\hat{A}_{33}^r, \hat{A}_{20}^{r'}] &= 0, & [\hat{A}_{33}^r, \hat{A}_{30}^{r'}] &= \delta_{r,r'} \hat{A}_{30}^r. \end{aligned}$$

Im nächsten Schritt kann der Kommutator nun direkt für beliebige Clusteroperatoren vom Typ (2.111) berechnet werden:

$$\begin{aligned} 0 &\stackrel{!}{=} [\hat{C}_I^\dagger, \hat{S}_T^z] = \hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger \hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger [\hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger, \hat{S}_T^z] + \hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger [\hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger, \hat{S}_T^z] \hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger \\ &\quad + [\hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger, \hat{S}_T^z] \hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger \hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger \\ &= \hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger \left\{ \hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger [\hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger, \hat{S}_T^z] + [\hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger, \hat{S}_T^z] \hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger \right\} \\ &= \hbar \hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger \sum_{r=1}^{N/2} \left\{ \hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger [\hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger, \hat{A}_{33}^r] - [\hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger, \hat{A}_{11}^r] \hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger \right\} \\ &= \hbar \hat{C}_{I:A_{20}}^\dagger \left\{ n_1 \hat{C}_{I:A_{10}}^\dagger \hat{C}_{I:A_{30}}^\dagger - n_3 \hat{C}_{I:A_{10}} \hat{C}_{I:A_{30}} \right\} \\ &= \hbar \hat{C}_I^\dagger (n_1 - n_3) \quad \Rightarrow \quad n_1 \stackrel{!}{=} n_3. \end{aligned}$$

Damit vereinfachen sich die Teilsummen des Korrelationsoperators wie folgt (wobei die Korrelationskoeffizienten dieser neuen Formulierung entsprechend umindiziert wurden):

$$\hat{S}_1 = \sum_{r=1}^{N/2} s_r \hat{A}_{20}^r, \tag{2.117}$$

$$\hat{S}_2 = \sum_{r,r'}^{N/2} \left[s_{r,r'}^{(1)} \hat{A}_{10}^r \hat{A}_{30}^{r'} - \frac{1}{2!} s_{r,r'}^{(2)} \hat{A}_{20}^r \hat{A}_{20}^{r'} \right], \tag{2.118}$$

$$\hat{S}_3 = \sum_{r,r',r''}^{N/2} \left[s_{r,r',r''}^{(1)} \hat{A}_{10}^r \hat{A}_{30}^{r'} \hat{A}_{20}^{r''} - \frac{1}{3!} s_{r,r',r''}^{(2)} \hat{A}_{20}^r \hat{A}_{20}^{r'} \hat{A}_{20}^{r''} \right]. \tag{2.119}$$

Die hierbei eingefügten Vorfaktoren dienen nur der Angleichung der Korrelationskoeffizienten, auf die Darstellung haben sie keinen Einfluss.

Eine weitere wichtige Voraussetzung für die obige Vereinfachung des Korrelationsoperators war die Gültigkeit der Vertauschungsrelationen für die Dimeroperatoren (2.105), insbesondere bezüglich des Dimergitterplatzindex r . Die Grundlage dafür ist die Verwendung gleicher Quantisierungsachsen nicht nur für die Gitterplätze $(1, r)$ und $(2, r)$ sondern auch auf verschiedenen Dimergitterplätzen r und r' .

Dies spielt gerade dann eine Rolle, wenn es für die Tripletanregungen $|\uparrow\uparrow\rangle$ und $|\downarrow\downarrow\rangle$ günstiger ist, sich nichtkollinear aneinander auszurichten, da diese im Gegensatz zum Singulett und dem verbliebenen Triplet eine klare Orientierung besitzen. Für die in dieser Arbeit vorgestellten Modelle ist dies allerdings nicht relevant, da die Verwendung des rotationssymmetrischen Singulett-Modellzustands mit solchen Grundzuständen nicht

vereinbar wäre.

2.4.5. Der Dimer-Ordnungsparameter

Für die CCM im Allgemeinen ist es wichtig, dass der gewählte Modellzustand dem eigentlichen Grundzustand möglichst ähnlich ist, d.h. sich nur um wenige Spinflips bzw. nur um kurzreichweitig korrelierte Cluster von diesem unterscheidet. Daher war es im Rahmen der CCCM sinnvoll, die Ordnung der untersuchten Grundzustandsphasen als eine Art Abweichung von der durch den Modellzustand vorgegebenen „Spinorientierung“ zu definieren. Erreicht wurde dies durch die Bildung des Erwartungswerts der Summe aller lokalen z -Komponenten des Spinoperators (siehe: magnetischer Ordnungsparameter in Abschnitt 2.3.3).

Im Unterschied zur CCCM basiert die DCCM nicht auf Einteilchenzuständen, denen man im Sinne des Korrespondenzprinzips eine Orientierung zuordnen kann, sondern auf den bereits beschriebenen Singulett, die als verschränkte Zustände die beiden beteiligten Einzelspins in einem Überlagerungszustand ohne klare Orientierung beschreiben. Das Singulett an sich ist sogar vollständig rotationsinvariant, d.h. sein Gesamtspin ist Null und in der Folge auch sämtliche Spinkomponenten:

$$\left(\hat{S}_1 + \hat{S}_2\right)^2 |0\rangle = 0, \quad \left(\hat{S}_1^{x,y,z} + \hat{S}_2^{x,y,z}\right) |0\rangle = 0. \quad (2.120)$$

Damit ist auch die bereits im vorherigen Abschnitt eingeführte *totale Magnetisierung* (2.115):

$$\hat{S}_T^z = \sum_{i=1}^N \hat{S}_i^z$$

immer Null, eine Eigenschaft, die sich aufgrund der S^z -Erhaltung vom Modellzustand (einem Singulett-Produktzustand) auf den eigentlichen Grundzustandsansatz (2.3) überträgt. Kurz gesagt: die totale Magnetisierung ist ebenfalls nicht als Ordnungsparameter geeignet, da sie nicht zwischen dem Singulett und dem mittleren Triplet (und anderen mit der S^z -Erhaltung verträglichen „Anregungszuständen“) unterscheidet:

$$\left(\hat{S}_1 + \hat{S}_2\right)^2 |2\rangle = 2\hbar^2, \quad \left(\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z\right) |2\rangle = 0. \quad (2.121)$$

Im Umgang mit Dimeren geht man daher einen anderen Weg und konstruiert den Dimer-Ordnungsparameter aus den sogenannten Paar-Korrelationsfunktionen $\langle \hat{S}_i \hat{S}_j \rangle$ auf direkt benachbarten Gitterplätzen. Für die Korrelationen auf den Dimeren selbst gilt bekanntermaßen (es handelt sich um Eigenzustände dieses Operators):

$$\hat{S}_{r,1} \hat{S}_{r,2} |0\rangle_r = -\frac{3}{4} \hbar^2 |0\rangle_r \quad \Rightarrow \quad \langle 0|_r \hat{S}_{r,1} \hat{S}_{r,2} |0\rangle_r = -\frac{3}{4} \hbar^2 \quad (2.122)$$

2. Die Coupled-Cluster-Methode

sowie:

$$\hat{S}_{r,1} \hat{S}_{r,2} |1, 2, 3\rangle_r = \frac{\hbar^2}{4} |1, 2, 3\rangle_r \quad \Rightarrow \quad \langle 1, 2, 3 |_r \hat{S}_{r,1} \hat{S}_{r,2} |1, 2, 3\rangle_r = \frac{\hbar^2}{4}. \quad (2.123)$$

Die Korrelationsfunktionen zweier Spins, die nicht zum selben, sondern zu zwei verschiedenen Singuletts eines Produktzustands gehören sind immer Null:

$$\begin{aligned} \langle 0 |_r \otimes \langle 0 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= \frac{1}{2} \left(\langle 0 |_r \otimes \langle 0 |_{r'} \hat{S}_{r,a}^+ \hat{S}_{r',b}^- + \hat{S}_{r,a}^- \hat{S}_{r',b}^+ |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} \right) \\ &\quad + \langle 0 |_r \otimes \langle 0 |_{r'} \hat{S}_{r,a}^z \hat{S}_{r',b}^z |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} \\ &= 0. \end{aligned} \quad (2.124)$$

Hierbei wurde die Orthogonalität der Basiszustände (2.96) ausgenutzt und die folgenden Beziehungen verwendet:

$$\begin{aligned} \hat{S}_{r,a}^+ \hat{S}_{r',a}^- |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= -\frac{1}{2} |1\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'}, & \hat{S}_{r,a}^+ \hat{S}_{r',a'}^- |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= +\frac{1}{2} |1\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'}, \\ \hat{S}_{r,a}^- \hat{S}_{r',a}^+ |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= -\frac{1}{2} |3\rangle_r \otimes |1\rangle_{r'}, & \hat{S}_{r,a}^- \hat{S}_{r',a'}^+ |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= +\frac{1}{2} |3\rangle_r \otimes |1\rangle_{r'}, \\ \hat{S}_{r,a}^z \hat{S}_{r',a}^z |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= +\frac{1}{2} |2\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'}, & \hat{S}_{r,a}^z \hat{S}_{r',a'}^z |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} &= -\frac{1}{2} |2\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'} \end{aligned}$$

(hierbei gilt $a, b \in \{1, 2\}$, $a \neq a'$, $r \neq r'$ und $\hbar = 1$). Für die anderen Zwischendimerkorrelationsfunktionen, insbesondere für die gemischten Zustände, ergibt sich:

$$\langle 1 |_r \otimes \langle 1 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |1\rangle_r \otimes |1\rangle_{r'} = \frac{\hbar^2}{4}, \quad (2.125)$$

$$\langle 2 |_r \otimes \langle 2 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |2\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'} = 0, \quad (2.126)$$

$$\langle 3 |_r \otimes \langle 3 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |3\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'} = \frac{\hbar^2}{4}, \quad (2.127)$$

$$\langle 0 |_r \otimes \langle 1 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |0\rangle_r \otimes |1\rangle_{r'} = 0, \quad (2.128)$$

$$\langle 0 |_r \otimes \langle 2 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |0\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'} = 0, \quad (2.129)$$

$$\langle 0 |_r \otimes \langle 3 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |0\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'} = 0, \quad (2.130)$$

$$\langle 1 |_r \otimes \langle 2 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |1\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'} = 0, \quad (2.131)$$

$$\langle 1 |_r \otimes \langle 3 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |1\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'} = -\frac{\hbar^2}{4}, \quad (2.132)$$

$$\langle 2 |_r \otimes \langle 3 |_{r'} \hat{S}_{r,a} \hat{S}_{r',b} |2\rangle_r \otimes |3\rangle_{r'} = 0. \quad (2.133)$$

Eine relativ offensichtliche Möglichkeit, aus diesen Korrelationsfunktionen einen Ordnungsparameter zu konstruieren, ergibt sich für die eindimensionalen Modelle wie die lineare Kette. Von dieser ist schon länger bekannt, dass sie bei der Berücksichtigung

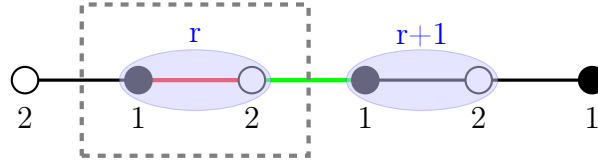


Abbildung 2.4.: Beispiel für Singulettbildung auf der linearen Kette. Die Elementarzelle (grau gestrichelt umrahmt) enthält negativ in den Dimer-Ordnungsparameter eingehende Dimer-Spinpaare (rot hervorgehoben) und positiv eingehende Zwischendimer-Spinpaare (grün hervorgehoben).

antiferromagnetischer Wechselwirkungen zwischen nächsten (J_1) und übernächsten (J_2) Nachbarn mit einem Verhältnis von $J_2/J_1 = 0.5$ (das sogenannte „Majumdar-Ghosh-Modell“) einen Grundzustand einnimmt, der durch eine Singulettbildung auf jedem zweiten Paar benachbarter Gitterplätze gekennzeichnet ist (Abb. 2.4) [25, 26]. Eine solche Ordnung lässt sich durch die Summe aller Nächster-Nachbar-Korrelationsfunktionen abbilden, wobei die Dimer-Korrelatoren mit einem negativen Vorzeichen versehen werden müssen [27, 28]:

$$D := \langle \hat{D} \rangle = -\frac{2}{N} \sum_{r=1}^{N/2} \left(\langle \hat{S}_{r,1} \hat{S}_{r,2} \rangle - \langle \hat{S}_{r,2} \hat{S}_{r+1,1} \rangle \right). \quad (2.134)$$

Beschränkt auf die reinen Dimer-Produktzustände, wäre der Wert dieses Parameters wegen der Gleichungen (2.122) bis (2.127) im Singulett-Produktzustand positiv und auch betragsmäßig am größten und negativ oder Null für die Triplet-Produktzustände ($\hbar = 1$):

$$\begin{aligned} \langle 0|_r \otimes \langle 0|_{r'} \otimes \cdots \hat{D} |0\rangle_r \otimes |0\rangle_{r'} \otimes \cdots &= 0.75, \\ \langle 1, 3|_r \otimes \langle 1, 3|_{r'} \otimes \cdots \hat{D} |1, 3\rangle_r \otimes |1, 3\rangle_{r'} \otimes \cdots &= 0, \\ \langle 2|_r \otimes \langle 2|_{r'} \otimes \cdots \hat{D} |2\rangle_r \otimes |2\rangle_{r'} \otimes \cdots &= -0.25. \end{aligned} \quad (2.135)$$

Es ist auch klar (unter Berücksichtigung der Gleichungen (2.128) bis (2.133)), dass ein beliebiger Spinflip (also der Übergang von einem Singulett auf einen beliebigen Tripletzustand) den Ordnungsparameter immer nur reduziert, was ein weiteres notwendiges Kriterium für seine Eignung als Maß für die Stärke der Singulettbildung darstellt.

Man muss an dieser Stelle aber betonen, dass dieser Ordnungsparameter im reinen Singulett-Produktzustand nicht maximal ist, da dieser kein Eigenzustand des zugrunde liegenden Operators ist [29]. Eine im Anhang dieser Arbeit dargestellte qualitative Analyse (siehe A.2) eines solchen Ordnungsparameters für ein endliches System zeigt aber, dass der Singulett-Produktzustand zum größten Teil (seine Projektion hat einen Anteil von über 90%) im zum größten Eigenwert gehörigen Unterraum liegt. Das tatsächliche Maximum des Ordnungsparameters liegt daher mit $\frac{\sqrt{3}}{2} \approx 0.86602540378443864676$ nur knapp 15% über dem Singulettwert bei 0.75. Die Untersuchung zeigt aber auch, dass der Zustandsraum des größten Eigenwertes nicht zwangsläufig eindimensional ist und daher auch Zustände enthalten kann, die orthogonal zum Singulettzustand sind. Das bedeutet, dass die Verwen-

2. Die Coupled-Cluster-Methode

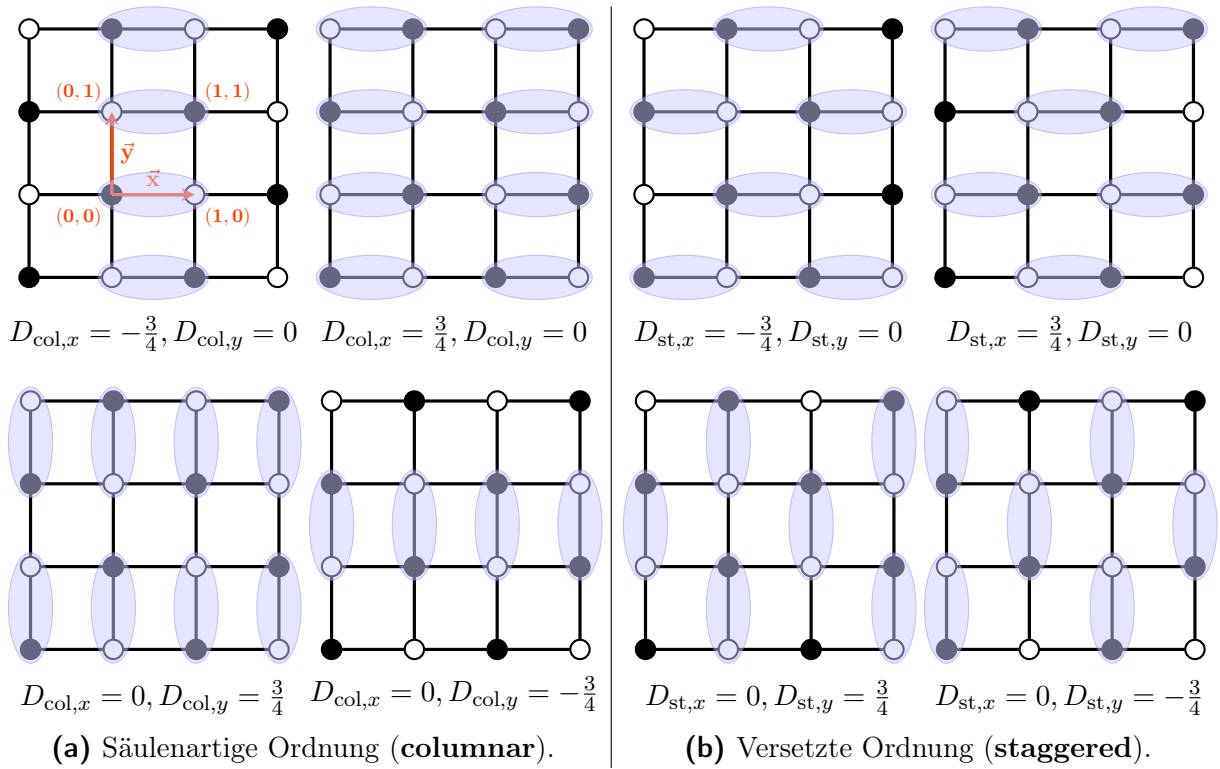


Abbildung 2.5.: Zwei Beispiele für regelmäßige Dimerordnungen auf dem Quadratgitter, in den sich durch die Rotation um 90° und die Verschiebung um einen Gittervektor ergebenden Varianten.

derung des beschriebenen Ordnungsparameters immer nur auf der Basis bereits vorhandener Informationen über das zu untersuchende Modell bzw. der untersuchten Phase und ihrer Einbeziehung bei der Interpretation des Wertes des Dimeroperators sinnvoll ist.¹⁰

Der Ordnungsparameter in zwei Dimensionen

Während sich die Dimerbildung auf direkt benachbarten Gitterplätzen in einer Dimension in der Ausbildung einer von zwei möglichen, über eine einfache Gittervektortranslation verknüpften, Varianten erschöpft, sind die Möglichkeiten in höheren Dimensionen deutlich vielzähliger. Je nach dem zugrunde liegenden Gitter können sich hierbei Dimerstrukturen ausbilden, deren Regelmäßigkeit sich erst in einer deutlich vergrößerten Elementarzelle zeigt. Ein Beispiel dafür ist der HAFM auf dem Kagomegitter, bei dem eine aus 36 Gitterplätzen bestehende Elementarzelle vorgeschlagen wurde [30, 31].

Die beiden einfachsten Ordnungen vollständig dimerisierter Phasen auf dem Quadratgitter, sind die sogenannte *versetzte* (auch: *staggered*) und die *säulenartige* (auch: *columnar*) Ordnung (siehe dazu die Abbildungen 2.5a und 2.5b), die aufgrund der Rotations- und Translationssymmetrien des Gitters in jeweils vier Varianten auftreten können. Eine Unter-

¹⁰Das bedeutet, dass man vom Betrag des Ordnungsparameters nicht unmittelbar auf die Art der Dimerisierung schließen kann, insbesondere lässt sich bei einem hohen Wert nicht direkt schlussfolgern, dass das System einen Singulett-Produktzustand eingenommen hat.

scheidung der auftretenden Varianten wird durch die Konstruktion eines zweikomponentigen Ordnungsparameters möglich, der außerdem der zugrunde liegenden Ordnung angepasst sein muss. Für die **säulenartige Ordnung** eignet sich der folgende Ordnungsparameter [32]:

$$\begin{aligned}
 D_{\text{col},x} &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|x_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_{i+1},y_i)} \rangle, \\
 D_{\text{col},y} &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|y_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_{i+1})} \rangle.
 \end{aligned} \tag{2.136}$$

Die einzelnen Komponenten sind im Prinzip identisch mit dem Ordnungsparameter der linearen Kette (2.134), d.h. es werden immer nur solche Paarkorrelationen aufsummiert, die auf Ketten mit einer eindeutigen Orientierung (parallel zur x- bzw. zur y-Achse) liegen. Bei der **versetzten Ordnung** führt die Verschiebung der Dimere um einen Gitterplatz, beim Übergang zu einer benachbarten Kette, auf einen leicht abgewandelten Ordnungsparameter:

$$\begin{aligned}
 D_{\text{st},x} &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|x_i|+|y_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_{i+1},y_i)} \rangle, \\
 D_{\text{st},y} &= \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|x_i|+|y_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_i,y_{i+1})} \rangle.
 \end{aligned} \tag{2.137}$$

Mittels dieser Ordnungsparameter ist es nun möglich, den auftretenden Varianten ein charakteristisches Zahlenpaar zuzuordnen und diese somit klar voneinander zu unterscheiden (siehe Abbildung 2.5). Für Phasen, die sich nicht als reine Dimer-Produktzustände darstellen lassen, gelten wieder die gleichen Überlegungen wie bei der linearen Kette.

Grundsätzlich lässt sich festhalten, dass der Dimeroperator abhängig von der abzubildenden Ordnung konstruiert werden muss. Dies ist analog zur Konstruktion des magnetischen Ordnungsparameters der CCCM aus den lokalen S^z -Operatoren, nur dass im Dimeroperator Informationen zur Lage und Orientierung der Dimere auf dem Gitter verarbeitet werden. Mit der Kenntnis des Modellzustands ist die Konstruktion des Dimer-Ordnungsparameters allerdings eindeutig festgelegt, weshalb es auch hier ausreicht, sich auf die Bezeichnungen D_x und D_y zu beschränken.

Es gibt allerdings auch Gittertypen, wie beispielsweise das Star-Gitter (siehe Abschnitt 4.4), auf denen die Dimere nicht nur parallel oder senkrecht zueinander orientiert sind und daher eine Anpassung der Ordnungsparameter an diese Strukturen erfordern. Im Gegensatz zum magnetischen Ordnungsparameter der CCCM lassen sich die einzelnen Dimerordnungsparameter verschiedener Gittertypen also nicht direkt miteinander vergleichen. Allen gemeinsam ist aber die Eigenschaft, dass sie bei der Gleichheit aller Nächster-Nachbar-Korrelationsfunktionen Null werden.

2.4.6. Approximationsschemata

Die in Abschnitt 2.1.4 beschriebene Notwendigkeit für die Einführung von Approximationsschemata gilt auch für die DCCM. Von einem technischen Standpunkt aus betrachtet sind in der DCCM dieselben auf einer Hierarchie von berücksichtigten Gitterplätzen und den auf diesen vollzogenen „Spin-Flips“ aufgebauten Schemata anwendbar wie auch in der CCCM (siehe Abschnitt 2.3.5); physikalisch gesehen sind sie aber nicht unmittelbar vergleichbar, da die Relevanz des eigentlichen Gitterplatzes in der DCCM hinter dem Konzept des neu eingeführten Zweiteilchen- oder Dimergitterplatzes zurücksteht und ein einzelner „Spin-Flip“ immer eine Zweiteilchenoperation ist. Bei der Betrachtung konkreter Modelle im letzten Kapitel dieser Arbeit, insbesondere in der Abbildung 4.12b in Abschnitt 4.2, wird deutlich, dass bei der Anwendung der gleichen Begrifflichkeiten wie in der CCCM im Prinzip von einem Übergang zu einem völlig anderen Modell auszugehen ist, bei dem sich prinzipiell auch die Topologie ändern kann. Um eine Verwechslung der Approximationen beider Methoden auszuschließen wird den Approximationsschemata der DCCM im Folgenden immer ein „D“ vorangestellt (DSUB $n-m$, DLSUB m , usw.).

Vergleichbarkeit mit den Approximationsschemata der CCCM

Das bereits beschriebene SUB $n-m$ -Schema entspricht der Zulassung von Clustern bestehend aus bis zu n „Spin-Flips“ (also dem Übergang von einem \hat{S}^z -Eigenzustand in einen anderen) auf einem Gebiet von bis zu m aneinander angrenzender Gitterplätze. Übertragen auf die Dimeroperatoren ändert sich bei der Anwendung des DSUB $n-m$ -Schemas grundsätzlich nichts, außer dass n nun die Anzahl der „Dimer-Flips“ angibt (wobei es sich um Zweiteilchenoperationen handelt, da ein Dimeroperator immer zwei benachbarte Einteilchengitterplätze betrifft) und die Größe m des Gebietes sich nun auf die Anzahl benachbarter Dimergitterplätze (ein Dimergitterplatz entspricht zwei benachbarten Einteilchengitterplätzen) bezieht. Übertragen auf das SUB $n-m$ -Schema und den normalen Gitterplatzbegriff der CCCM entspräche dies also gerade der Zulassung von bis zu $2n$ „Spin-Flips“¹¹ auf einem Gebiet von bis zu $2m$ Gitterplätzen. Dies bedeutet aber nicht, dass man einfach eine prinzipielle Gleichsetzung von DSUB $n-m$ und SUB $2n-2m$ vornehmen kann, im Allgemeinen gilt:

$$\text{DSUB}_{n-m} \neq \text{SUB}_{2n-2m}.$$

¹¹Dies ist im übertragenen Sinne zu verstehen, da man nicht alle Übergänge zwischen den Dimerbasiszuständen durch (Tensor-)Produkte von Einteilchen-Spinflipoperatoren beschreiben kann. Eine vollständige Basis des Zweiteilchen-Hilbertraumes der Spin-1/2-Teilchen lässt sich aber durch die sukzessive Anwendung von jeweils drei Zweiteilchen-Operatoren auf einen einer Basiszustände gewinnen. Beispiel: $\hat{S}_1^+ \otimes \hat{1}$, $\hat{1} \otimes \hat{S}_2^+$ und $\hat{S}_1^+ \otimes \hat{S}_2^+$ auf den Zustand $|\downarrow\downarrow\rangle$.

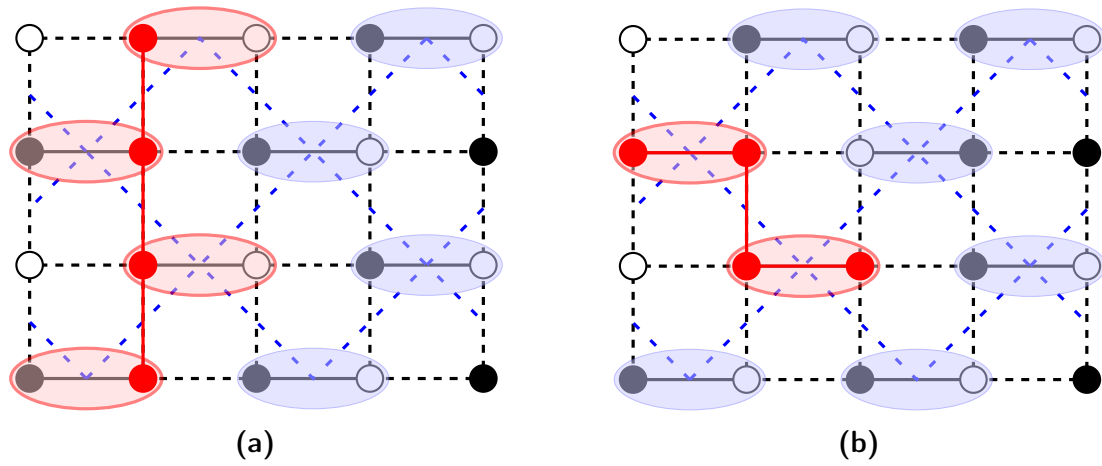


Abbildung 2.6.: Darstellung der Relationen zwischen den LSUB m - und den DLSUB m -Konfigurationen am Beispiel des zweidimensionalen J - J' -Gitters (schwarze Linien). Beim Übergang zu den Dimergitterplätzen, ändern sich die nächsten Nachbarverhältnisse (blaue Linien). **(a)** Beispiel für eine LSUB4-Einteilchenkonfiguration (rote Plätze), die nur durch eine DLSUB4-Dimerkonfiguration (rote Ovale) abgedeckt werden kann. **(b)** Beispiel für eine weitere LSUB4-Konfiguration (rote Plätze), die aber bereits durch das DLSUB2-Schema abgedeckt wird. Beiden Beispielen gemein ist, dass die abdeckende DLSUB m -Näherung eine ganze Reihe weiterer LSUB m -Konfigurationen beinhaltet, die erst in höheren LSUB m -Näherungsstufen berücksichtigt werden können. Das erste Beispiel macht deutlich, dass innerhalb der DLSUB4-Näherung bereits einige LSUB8-Konfigurationen berücksichtigt werden.

Bei der DCCM sind pro „Spin-Flip“ zwar immer gleich zwei Gitterplätze betroffen, bei diesen handelt es sich aber immer um den „linken“ und den „rechten“ Partner eines Dimers bzw. Dimergitterplatzes, während bei der CCCM keine Unterscheidung der Gitterplätze vorgenommen wird. Daher kann es passieren, dass ein CCCM-Cluster auf zwei benachbarten Gitterplätzen gerade auf zwei verschiedenen Dimergitterplätzen liegt und daher nur von einem DCCM-Cluster abgedeckt werden kann, der ebenfalls auf zwei Dimergitterplätzen liegt; dafür aber gleichzeitig noch zwei weitere Gitterplätze abdeckt, die im ursprünglichen CCCM-Cluster nicht berücksichtigt sind (siehe Abbildung 2.6a).

Auf den eindimensionalen Gittern ist die Zuordnung relativ übersichtlich, da der Übergang zur Dimer-Beschreibung nichts an der Topologie ändert (die Kette bleibt eine Kette, an der Anzahl und der Lage der Nachbarn ändert sich nichts). Alle Cluster einer DLSUB m -Approximation werden erst durch die CCCM-Approximationsstufe LSUB $2m$ mit einbezogen, außerdem noch einige wenige Cluster, die aufgrund der Besetzung halber Dimergitterplätze erst ab der Stufe DLSUB $m + 1$ auftreten:

$$\mathbf{1D} : \text{LSUB}_{2m-1} \subset \text{DLSUB}_m \subset \text{LSUB}_{2m} \subset \text{DLSUB}_{m+1}. \quad (2.138)$$

Bei den zweidimensionalen Gittern kann es passieren, dass sich bei dem Übergang zur Dimer-Beschreibung die Topologie des Gitters verändert. Das heißt, dass ursprünglich direkt benachbarte Gitterplätze nicht mehr zwangsläufig zu benachbarten Dimergitterplätzen

gehören müssen. In diesem Fall können in der Näherungsstufe $LSUB_m$ Cluster auftreten, die erstmals in der Näherungsstufe $DLSUB_{m+1}$ berücksichtigt werden können (siehe Abbildung 2.6b).¹² Dabei handelt es sich aber immer um einen Bruchteil der Gesamtzahl möglicher Cluster, für alle Gittertopologien muss immer gelten:

$$LSUB_m \subset DLSUB_m \subset LSUB_{2m}. \quad (2.139)$$

2.4.7. Extrapolationen

Wie bereits im Abschnitt 2.3.6 für die CCCM erläutert, ist es auch mit der DCCM notwendig, aus den verschiedenen Approximationen der Systemobservablen eine Näherung für den exakten Grenzfall $\lim_{m \rightarrow \infty} SUB_{m-m}$ zu ermitteln. Die Überlegungen sind dabei prinzipiell identisch mit den in diesem Abschnitt beschriebenen, der wesentliche Unterschied zur CCCM besteht aber darin, dass es für die Auswahl geeigneter Extrapolationsschemata in der DCCM noch keine Erfahrungswerte gibt. Ob sich hier die gleichen Ansätze eignen, muss sich erst noch zeigen und streng genommen an jedem Anwendungsfall einzeln geprüft werden. An dieser Stelle kann aber bereits vorweggenommen werden, dass sich die Ansätze (2.88) und (2.92) in allen in dieser Arbeit vorgestellten Modellen als sehr gut geeignet herausgestellt haben. Entsprechende Nachweise werden im Kapitel 4 für die vorgestellten Modelle einzeln diskutiert. Es werden daher die gleichen Abkürzungen verwendet wie im Abschnitt 2.3.5 festgelegt.

¹²Dies ist beispielsweise der Fall bei einem $LSUB_2$ -Cluster bestehend aus zwei benachbarten Gitterplätzen, allerdings auf zwei verschiedenen Dimergitterplätzen liegend, die selbst keine direkten Nachbarn mehr sind (siehe Abbildung 4.12b). Um beide Dimergitterplätze zu verbinden, benötigt man nun einen weiteren Dimergitterplatz und erhält damit einen $DLSUB_3$ -Cluster.

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

In diesem Kapitel wird die *Coupled Cluster Methode* nun, zunächst in der Standardimplementierung der CCCM, auf verschiedene Variationen des Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Kagomegitter (KHAFM) angewendet. Der KHAFM gilt als eines der anspruchsvollsten Modelle auf dem Gebiet des sogenannten *frustrierten Quantenmagnetismus*. Es wird seit den 1990er Jahren mittels verschiedenster Methoden intensiv untersucht [30, 31, 33–50]. Dennoch gelang es bis heute nicht, die Frage nach der Natur des Grundzustandes bzw. nach dem Vorhandensein von magnetischer Fernordnung in allen Spezialfällen endgültig zu klären. Auch weitestgehend ungeklärt ist, welchen Einfluss Modellparameter wie die Spinquantenzahl, mögliche Anisotropien und die Dimension des Gitters (bzw. die Koordinationszahl) darauf haben. Diese Aspekte stellten daher auch einen Schwerpunkt der im Rahmen der Erstellung der vorliegenden Dissertation durchgeführten Untersuchungen dar und werden in diesem Kapitel ausgiebig besprochen.

Darüber hinaus wurde die CCCM vom Autor dieser Arbeit noch auf eine Vielzahl weiterer Modelle angewendet. Hervorzuheben sind dabei unter anderem Untersuchungen an zweidimensionalen Modellen, wie den sogenannten *Archimedischen Gittertypen* [51], einem J_1 - J_2 -Quadratgitter mit Plakettenstruktur [52], auf den HAFM auf dem Dreiecksgitter [53, 54], aber auch auf dreidimensionale Modelle auf kubischen Gittern [55]. Da eine Darstellung dieser Untersuchungen den Rahmen dieser Arbeit aber deutlich überschreiten würde, wird auf diese im Folgenden nicht weiter eingegangen.

3.1. Das isotrope Kagome-Gitter mit beliebigem Spin

Das Kagome-Gitter besteht aus gleichseitigen Dreiecken, die über ihre Eckpunkte (auch Gitterpunkte) miteinander verbunden sind, so dass ihre Kanten regelmäßige Sechsecke (Hexagone) bilden (siehe Abbildung 3.1). Im Modell des HAFM werden auf den Gitterpunkten lokalisierte Spins angenommen, die über eine Wechselwirkung J , zwischen nächsten Nachbarn, miteinander gekoppelt sind. Der Hamiltonoperator dieses Modells hat damit die folgende Darstellung:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \hat{S}_i \hat{S}_j. \quad (3.1)$$

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

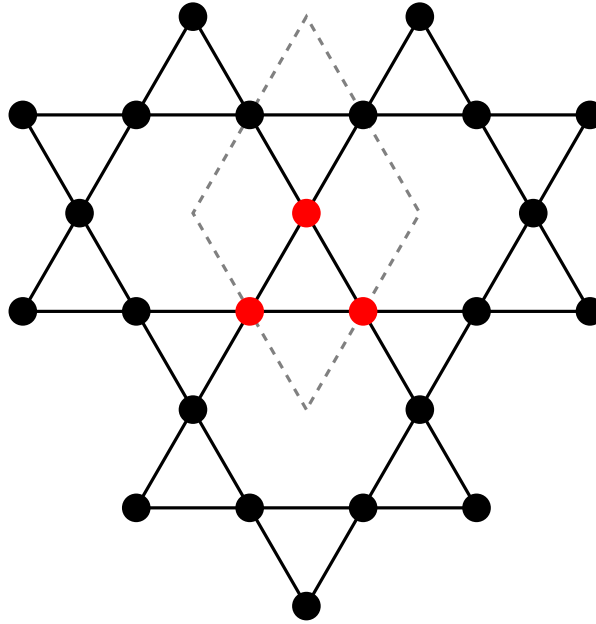


Abbildung 3.1.: Darstellung eines Ausschnitts des Kagome-Gitters. Die Kreise markieren die Gitterplätze, auf denen die im Heisenberg-Modell angenommenen Spinträger lokalisiert sind. Die drei Gitterplätze (rot markiert) beinhaltende Elementarzelle ist durch eine gestrichelte Linie gekennzeichnet.

Für eine klassische Beschreibung kann man die Vektorspinoperatoren einfach als normale Vektoren auffassen. Beschränkt man sich zunächst außerdem auf ein System bestehend aus nur zwei miteinander antiferromagnetisch ($J > 0$) wechselwirkender Spins, kann man sich leicht klarmachen, dass das energetische Minimum bei einer antiparallelen Ausrichtung der Spins zueinander erreicht ist:

$$\vec{S}_i \vec{S}_j = |S|^2 \cos(\alpha) \Rightarrow \min_{\alpha \in [0, 2\pi)} (\cos(\alpha)) = \cos \pi. \quad (3.2)$$

Eine solche Konfiguration ist allerdings bereits bei drei Spins auf einem Dreieck, und damit auch auf aus Dreiecken konstruierten Gittern (wie dem Kagome-Gitter), nicht gleichzeitig für alle Spinpaare zu erreichen:

$$\sum_{\langle i, j \rangle} \vec{S}_i \vec{S}_j = |S|^2 \sum_{\langle i, j \rangle} \cos \alpha_{ij} \stackrel{\text{i.A.}}{\neq} \min_{\{\alpha_{ij}\} \in [0, 2\pi)} \sum_{\langle i, j \rangle} \cos \alpha_{ij} \propto \cos \pi \quad (3.3)$$

Anders formuliert: Antiferromagneten ist es im Allgemeinen (d.h. auf beliebigen Gittern) nicht möglich, eine Spinkonfigurationen einzunehmen, bei der jedes Spinpaar, isoliert betrachtet, ein energetisches Minimum einnimmt. Man nennt dies auch „Geometrische Frustration“ (siehe Abbildung 3.2).

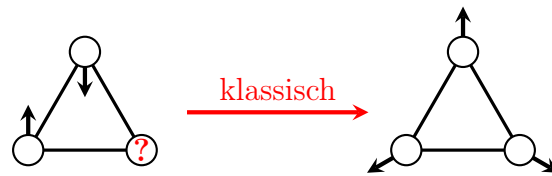


Abbildung 3.2.: Beispiel für die geometrische Frustration eines HAFM auf einem Dreieck (links), nebst einer Lösung für das klassische Modell (rechts).

3.1.1. Grundzustand und Modellzustandwahl

Im sogenannten klassischen Grenzfall für $s \rightarrow \infty$ führt die geometrische Frustration auf Grundzustände, die sich durch einen Winkel von 120° zwischen benachbarten Spins auszeichnen. Die Möglichkeiten diese Bedingung zu erfüllen sind jedoch unbegrenzt und führen zu einer riesigen nicht-trivialen Entartung des Grundzustandes, die erst durch thermische Fluktuationen aufgehoben werden kann [56–59]. Für das Quantenmodell ($s < \infty$) konnte mittels der *Spinwellentheorie* gezeigt werden, dass diese Entartung zunächst teilweise zugunsten der koplanaren Grundzustände (bei denen sämtliche Spins innerhalb derselben Ebene liegen) aufgehoben wird [33] und unter Berücksichtigung von höheren Ordnungen innerhalb der Methodik sogar eine konkrete Auswahl des sogenannten „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustands (siehe Abb. 3.3a) auftritt [60–62].

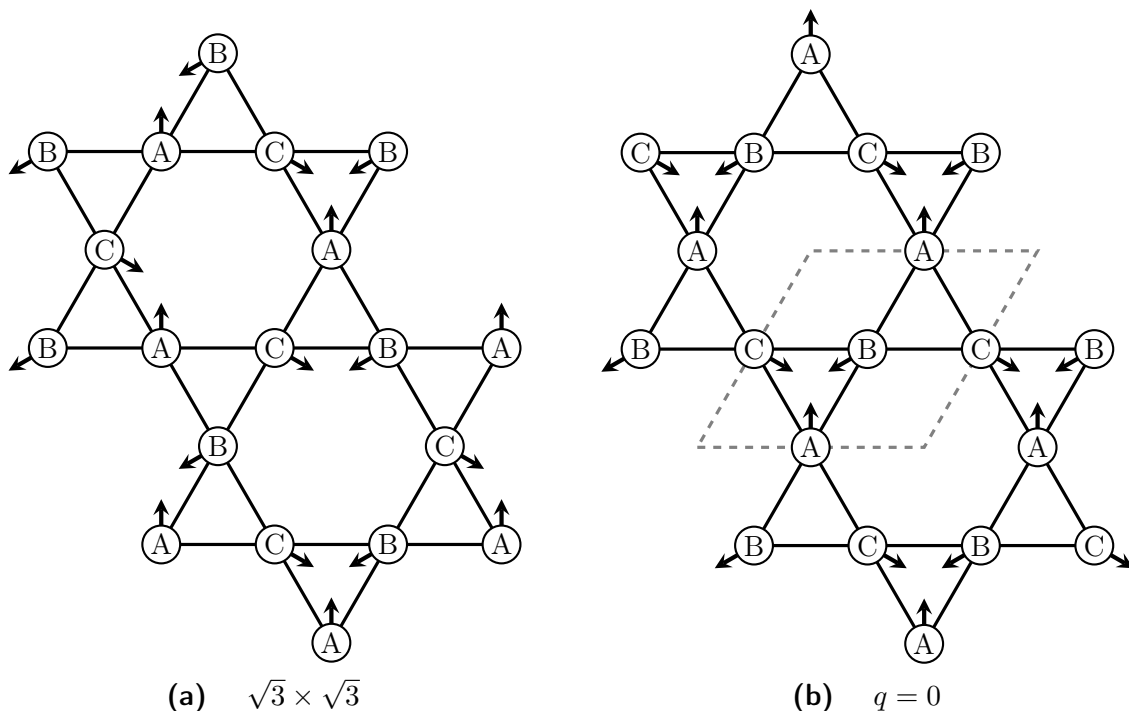


Abbildung 3.3.: Zwei klassische koplanare Grundzustände bzw. Spinkonfigurationen für den Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Kagome-Gitter.

Dies wird auch als „Order from Disorder“-Effekt bezeichnet, durch den es aufgrund von Quantenfluktuationen (Fluktuationen führen eigentlich zu Unordnung) gerade zur

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

Entstehung von Ordnung (Aufhebung der klassischen Grundzustandsentartung) kommt. Im extremen Quantenfall ($s = 1/2$) ist die Situation allerdings komplizierter. Man weiß zwar, dass hier keine magnetische Fernordnung vorliegt [35, 36], die wahre Natur des Grundzustandes ist allerdings bis heute nicht vollständig geklärt. Mögliche Kandidaten für den Grundzustand sind beispielsweise „Valence Bond“-Zustände [30, 31, 34, 39, 41], sowie Spinflüssigkeiten ohne [38, 40] und mit [37, 42–45] Energielücke zum ersten angeregten Zustand (man spricht hier auch von einem „Spingap“). Dabei liefern gerade die letztgenannten (und auch aktuellsten) Veröffentlichungen sehr überzeugende Argumente für die Existenz einer Spinflüssigkeit mit Gap.

Die CCM bietet sich an, das Problem der Grundzustandsauswahl aus einer anderen Perspektive zu untersuchen. In der CCM entspricht die Wahl eines bestimmten Modellzustands der Festlegung der „nullten Ordnung“ einer Grundzustandsentwicklung, sie ist in diesem Punkt der SWT nicht ganz unähnlich und ermöglicht daher einen expliziten Vergleich der durch die Modellzustände vorgegebenen Grundzustandsordnungen.¹ Aufgrund der hervorgehobenen Stellung der koplanaren Grundzustände, werden in diesem Abschnitt auch zwei verschiedene koplanare Modellzustände verwendet und miteinander verglichen. Dabei handelt es sich um den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand (bzw. um einen aus dem klassischen Zustand korrespondenzmäßig abgeleiteten Quantenzustand mit identischer Symmetrie), dessen magnetische Elementarzelle dreimal so groß wie seine geometrische Elementarzelle ist und um den „ $q = 0$ “-Zustand (siehe Abbildung 3.3), dessen magnetische Elementarzelle mit seiner geometrischen Elementarzelle identisch ist. Der letztgenannte Zustand ist ein weiterer klassischer Grundzustandskandidat der ebenfalls die 120° -Bedingung erfüllt aber andere Gittersymmetrien als der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand aufweist. Die Auswahl der genannten Zustände richtet sich dabei nach dem üblichen Vorgehen in der Literatur, in der nur diese beiden als mögliche Grundzustandskandidaten in Betracht kommen. In den oben bereits zitierten Quellen verlief die Grundzustandsselektion allerdings immer zugunsten des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustandes, d.h. der „ $q = 0$ “-Zustand konnte sich nicht durchsetzen.

In beiden Fällen wird der Hamiltonoperator (3.1) zunächst durch eine Transformation auf lokale Koordinaten, in denen die Einteilchenspinzustände des jeweiligen Modellzustands auf jedem Gitterplatz im niedrigsten \hat{S}^z -Eigenzustand dargestellt werden können (für $s = 1/2$ entspricht dies dem so genannten „down“-Zustand):

$$\hat{S}_i^{z'} |\downarrow\rangle'_i = -\frac{\hbar}{2} |\downarrow\rangle'_i, \quad (3.4)$$

an die Modellzustände angepasst (siehe dazu Abschnitt 2.3.2). Da die lokale Koordina-

¹In der CCM wird durch die Auswahl eines konkreten Modellzustands im Wesentlichen eine Vorfestlegung der Symmetrien des angenommenen Grundzustandes vorgenommen, d.h. der Grundzustand wird auf einen mit diesen Symmetrien verträglichen Unterraum eingeschränkt. Da sich die gesuchten Grundzustandsordnungen allesamt in ihren Symmetrien unterscheiden, ist es daher möglich, eine Selektion über ihre Energien durchzuführen.

tentransformation konsequent auf alle Gitterplätze und Operatoren angewendet wird und die in der CCM auftretenden Operatoren eine eindeutige Gitterplatzzuordnung aufweisen, kann im Folgenden wieder auf den Strich zur Kennzeichnung der lokalen Koordinaten verzichtet werden. Schlussendlich führt dies in beiden Fällen auf, auf den ersten Blick, identische transformierte Hamiltonoperatoren:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i \rightarrow j \rangle} \left\{ -\frac{1}{2} \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z + \frac{\sqrt{3}}{4} \left(\hat{S}_i^z \hat{S}_j^+ + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^- - \hat{S}_i^+ \hat{S}_j^z - \hat{S}_i^- \hat{S}_j^z \right) + \frac{1}{8} \left(\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^+ \right) - \frac{3}{8} \left(\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^+ + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^- \right) \right\}. \quad (3.5)$$

Der Unterschied zwischen beiden Modellzuständen liegt in der Art und Weise wie die Gitterplätze den drei Untergittern A, B und C zuzuordnen sind und damit auch welche Art von lokaler Koordinatentransformation ausgeführt wird (siehe dazu Abbildung 3.3). Es ist deshalb nicht mehr möglich, unter Beibehaltung der Form der summierten Terme, eine Vertauschung von i und j vorzunehmen, da diese Gitterplätze in jedem Fall zu verschiedenen Untergittern gehören. Jeder Modellzustand erfordert also eine eindeutige „Direktionalität“ bei der Summation über die Paare benachbarter Gitterplätze, welche durch den Pfeil unter dem Summationszeichen angedeutet wird. Die obige Form des transformierten Hamiltonoperators (3.5) erfordert eine zyklische Summation über die Untergitter:

$$\sum_{\langle i \rightarrow j \rangle} := \sum_{\langle i, j \rangle} \quad : \quad (i, j) \in A \times B \cup B \times C \cup C \times A. \quad (3.6)$$

Für weitere Details zur Bindungsdirektionalität sei außerdem auf andere Arbeiten wie z.B. [63] verwiesen.

Quantenfluktuationen

Es wurde bereits darauf hingewiesen, dass der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “- und der „ $q = 0$ “-Zustand im klassischen Modell energetisch identisch sind, im Quantenfall (d.h. für $1/2 \leq s < \infty$) findet allerdings eine Aufhebung dieser Entartung aufgrund des Auftretens von Quantenkorrekturen statt (im Rahmen der nichtlinearen SWT, siehe oben). Wie bereits erwähnt, spricht man hierbei auch oft verallgemeinernd von Quantenfluktuationen und meint die Tatsache, dass die sich korrespondenzmäßig aus den klassischen Zuständen ergebenden Quantenzustände keine Eigenzustände des Hamiltonoperators sind. Am koordinatentransformierten Hamiltonoperator (3.5) kann man sehr deutlich erkennen, welche Anteile für die Quantenfluktuationen verantwortlich sind, versieht man all diese Terme mit einem

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

Vorfaktor λ ergibt sich der folgende Operator:

$$\hat{H}_\lambda = J \sum_{\langle i \rightarrow j \rangle} \left\{ -\frac{1}{2} \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z + \frac{\sqrt{3}}{4} \lambda \left(\hat{S}_i^z \hat{S}_j^+ + \hat{S}_i^z \hat{S}_j^- - \hat{S}_i^+ \hat{S}_j^z - \hat{S}_i^- \hat{S}_j^z \right) + \frac{1}{8} \lambda \left(\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^- + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^+ \right) - \frac{3}{8} \lambda \left(\hat{S}_i^+ \hat{S}_j^+ + \hat{S}_i^- \hat{S}_j^- \right) \right\}. \quad (3.7)$$

Setzt man $\lambda = 0$ verbleibt im Wesentlichen eine Summe von $\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z$ -Termen, deren Grundzustand, da es sich ja um lokale Koordinaten handelt, gerade der gewählte Modellzustand ist. Dies gilt für alle möglichen Modellzustände, die mit der oben erwähnten 120° -Bedingung verträglich sind. Mit anderen Worten: bei $\lambda = 0$ sehen alle koordinatentransformierten Hamiltonoperatoren gleich aus, sie haben die gleiche Grundzustandsenergie und ihre Grundzustände entsprechen den gewählten Modellzuständen (die lokalen Koordinatensysteme unterscheiden sich natürlich weiterhin). Für $\lambda = 1$ liegt wieder das volle Heisenberg-Modell und damit auch der volle Einfluss der Quantenfluktuationen vor. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird zur Untersuchung dieses Übergangs, mit dem modifizierten Hamiltonoperator (3.7) gearbeitet und im Rahmen der CCM für verschiedene Werte von λ ausgewertet. Die Einführung eines solchen λ -Faktors ist angelehnt an andere Arbeiten, die im Kontext anderer Methoden, aber auch mit der CCM für den HAFM auf dem Dreiecksgitter, ein solches Vorgehen bereits demonstrierten [64, 65].

3.1.2. Berechnete Näherungsstufen und Extrapolationen

Zur Untersuchung dieses Modells wurden die Grundzustandsenergie und der magnetische Ordnungsparameter für die Spinquantenzahlen $s = 1/2, 1, \dots, 7/2$ berechnet. Im Fall $s = 1/2$ konnten Resultate bis zur Näherungsstufe LSUB10 (SUB10-10) und für alle anderen Spinquantenzahlen bis zur Näherungsstufe SUB8-8 bestimmt werden. Zur Verbesserung der Resultate wurden diese „Rohdaten“ mit den im Rahmen der CCM erprobten Methoden in den exakten Grenzfall $\text{SUB}\infty\text{-}\infty$ extrapoliert, wobei sämtliche Näherungsstufen beginnend bei SUB4-4 bis zur höchsten berechneten Näherungsstufe einbezogen wurden. Bevor die eigentlichen Resultate dieser Untersuchungen im nächsten Abschnitt näher betrachtet werden, werden nun zunächst die für die verschiedenen Systemobservablen verwendeten Extrapolationsschemata eingeführt und auf ihre Eignung geprüft.

Grundzustandsenergie

Für die Grundzustandsenergie wurde die folgende Abhängigkeit von der Approximationsstufe angenommen (für Details siehe Abschnitt 2.3.6):

$$E_N(m) := \frac{E}{N}(m) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4; \quad a = E_N(m \rightarrow \infty). \quad (3.8)$$

Zur Veranschaulichung der Eignung der gewählten Extrapolationsvorschrift, sind die ermittelten Fitfunktionen und deren zugrunde liegenden Rohdaten in Abbildung 3.4 am Beispiel des „ $q = 0$ “-Modellzustands für die Spinquantenzahlen $s = 1/2$ und $s = 1$ für verschiedene Werte des Parameters λ dargestellt. Der Vollständigkeit halber sind die analogen Darstellungen für den ebenfalls untersuchten Bereich höherer Spinquantenzahlen, einschließlich der Resultate für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand, als Anhang dieser Arbeit angefügt (siehe Abschnitt A.4.1 bzw. die darin aufgeführten Abbildungen A.3 und A.4).

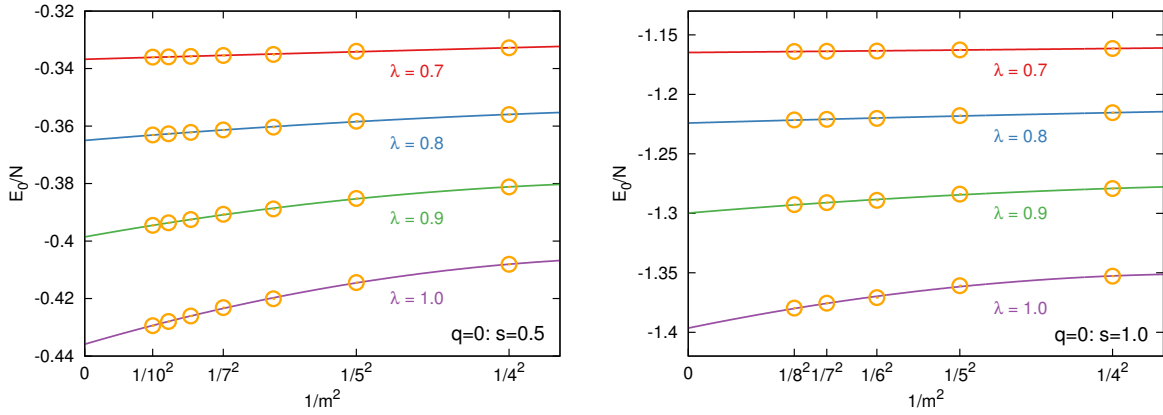


Abbildung 3.4.: Darstellung der Grundzustandsfitfunktion $E_N(m)$ und der zugehörigen SUB m - m Rohdaten für den $q = 0$ -Modellzustand des KHAFM ($\lambda = 1$) für $s = 1/2$ (links) und $s = 1$ (rechts).

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Fitfunktion (3.8) den Verlauf der approximierten Grundzustandsenergien sehr gut beschreibt, insbesondere auch gut genug, um die sich daraus ergebende Verbesserung der Näherung für die exakte Grundzustandsenergie (Grenzfall: $m \rightarrow \infty$) rechtfertigen zu können.

Magnetischer Ordnungsparameter

Aufgrund der in der Einleitung beschriebenen Situation, dass der KHAFM für Spinquantenzahlen $s > 1$ eine magnetische Fernordnung aufweist, für kleinere Spinquantenzahlen allerdings, dem allgemeinen Konsens nach, ungeordnet ist, werden für dieses Modell beide Standardextrapolationen mit festem Exponenten ($O_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}}$ und $O_{1,2}$) berechnet (siehe Abschnitt 2.3.6):

$$M_1(m) = O_{1/2,3/2} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{3}{2}}, \quad (3.9)$$

$$M_2(m) = O_{1,2} = a + b \left(\frac{1}{m} \right) + c \left(\frac{1}{m} \right)^2. \quad (3.10)$$

Eine grafische Darstellung zur Verdeutlichung der prinzipiellen Eignung der Fitfunktionen erfolgt in Abbildung 3.5 wieder am Beispiel des „ $q = 0$ “-Modellzustands für die Spin-

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

quantenzahlen $s = 1/2$ und $s = 1$. Die Darstellung der übrigen Datensätze ist wieder im Anhang zu finden (siehe Abb.: A.5, A.6, A.7, A.8).

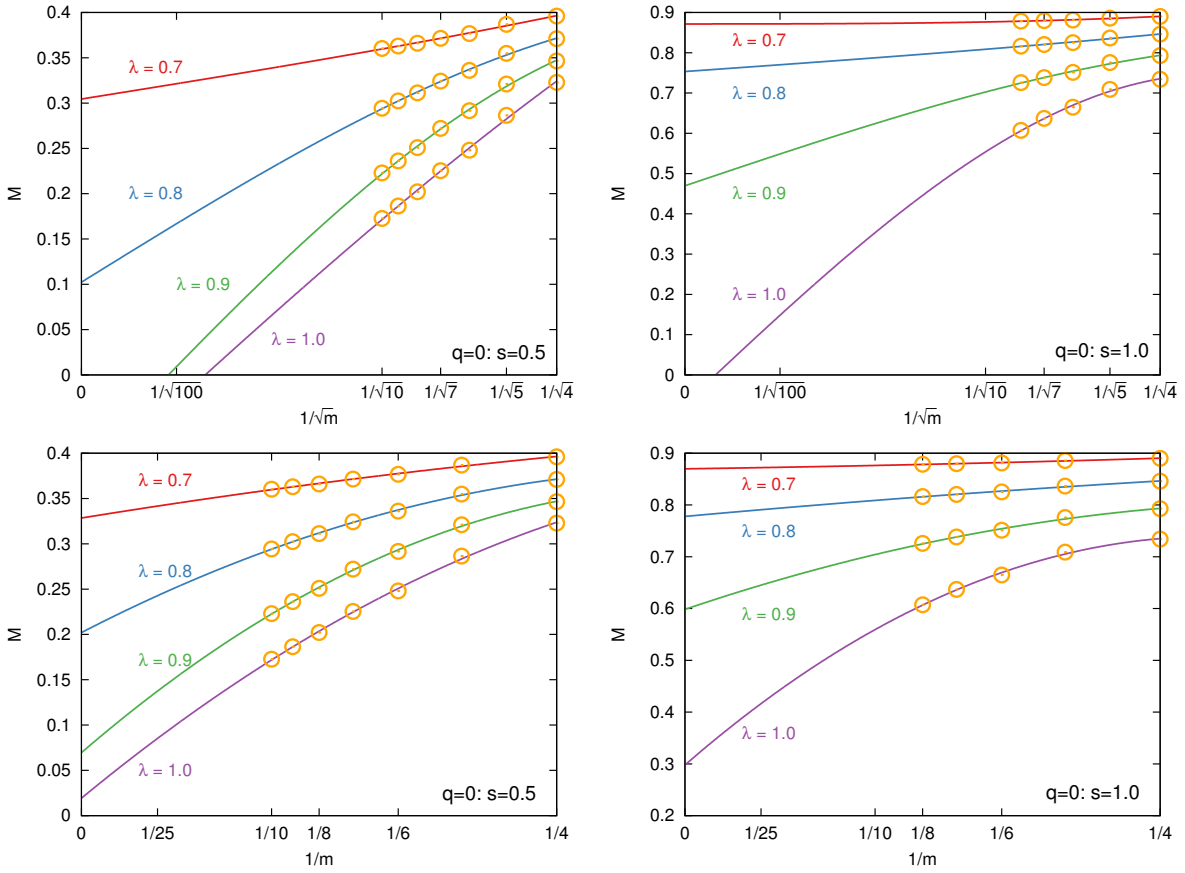


Abbildung 3.5.: Darstellung der Fitfunktion für die magnetischen Ordnungsparameter $M_1(m)$ (**oben**) und $M_2(m)$ (**unten**) einschließlich der verwendeten SUB m - m Rohdaten, für den „ $q = 0$ “-Modellzustand des KHAFM ($\lambda = 1$) für $s = 1/2$ (**links**) sowie $s = 1$ (**rechts**).

Es ist grundsätzlich erkennbar, dass beide Ansätze für die Abhängigkeit des magnetischen Ordnungsparameters von der SUB m - m -Approximationsstufe $M_1(m)$ und $M_2(m)$, die numerisch ermittelten Rohdaten sehr gut beschreiben. Es gibt allerdings dennoch Argumente, die das M_1 -Schema recht eindeutig (auch für höhere Spinquantenzahlen) als die bessere Wahl erkennen lassen, diese können aber erst im nächsten Abschnitt im Zusammenhang mit den konkreten Resultaten näher erläutert werden.

Es ist weiterhin erkennbar, dass die Qualität beider Ansätze mit zunehmender Spinquantenzahl abnimmt (siehe Abb.: A.5, A.6, A.7, A.8). Dies ist vermutlich auf die Tatsache zurückzuführen, dass das SUB m - m -Approximationsschema (im Gegensatz zum LSUB m -Schema) mit bei höheren Spinquantenzahlen immer weniger als eine Hierarchie von berücksichtigten Clustergrößen aufgefasst werden kann, da für eine vollständige Beschreibung aller Cluster einer bestimmten Größe immer weniger Spinflips zur Verfügung stehen und diese daher erst in höheren Näherungsstufen erfolgen kann.² Die grafische Darstellung der

²Ein Objekt mit Spinquantenzahl s kann $2s + 1$ ($m_s = -s, -s + 1, \dots, s - 1, s$) Zustände einnehmen,

Rohdaten macht aber deutlich (siehe Abbildungen im Anhang), dass diese unvollständige Einbeziehung von Clustern nur zu einer Art Schwankung um den „idealen“ Verlauf führt und daher durchaus mit einer Regression bzw. einem Fit verträglich sind (analog zu Messfehlern die sehr gut bei entsprechender Anzahl von Datenpunkten kompensiert werden können).

3.1.3. Resultate

Der Fall $s = 1/2$

Besonders interessant ist der Fall $s = 1/2$, von dem man, wie bereits in der Einleitung beschrieben, heute recht sicher weiß, dass er keine magnetische Fernordnung besitzt bzw. diese von den Quantenfluktuationen unterdrückt wird. In diesem Zusammenhang ist das Modell bereits recht gut untersucht und es stellt sich daher zunächst die Frage, ob die CCM in der Lage ist, diese Resultate zu bestätigen. Eine Übersicht der berechneten Daten der Grundzustandsenergie und des magnetischen Ordnungsparameters ist in der Tabelle 3.1 zu finden.

Die Untersuchung des magnetischen Ordnungsparameters zeigt deutlich, dass dieser mit steigender $LSUBm$ -Näherungsstufe sehr schnell abnimmt und in (fast) allen Extrapolationen für das volle Heisenberg-Modell ($\lambda = 1$) verschwindet. Die implizierte Ausnahme betrifft die M_2 -Extrapolation im Fall des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustands deren Wert bei 0.0019 liegt. Dies ist allerdings unproblematisch, da der Wert relativ klein ist und in Abschnitt 2.3.6 bereits diskutiert wurde, dass die M_2 -Extrapolation den magnetischen Ordnungsparameter in der Regel deutlich überschätzt und außerdem im Fall eines tatsächlich verschwindenden Ordnungsparameters durch die (erfahrungsgemäß) besser geeignete M_1 -Extrapolation ersetzt werden sollte. Eine Darstellung des Ordnungsparameters über den Parameter λ (siehe Abbildung 3.6) zeigt, dass eine signifikante Verminderung des Ordnungsparameters bei beiden Modellzuständen erst ab $\lambda \approx 0.6$ beginnt und die mit dem Anstieg dieses Parameters assoziierte Zunahme von Quantenfluktuationen in beiden Fällen zu einem Verschwinden der Fernordnung bereits oberhalb von $\lambda \approx 0.9$ führt. Wesentliche qualitative Unterschiede zwischen den beiden Modellzustandsansätzen lassen sich allerdings nicht erkennen.

Der Vergleich der Grundzustandsenergien zeigt allerdings eine sowohl mit dem Parameter λ , als auch mit der Näherungsstufe zunehmende Energiedifferenz zwischen beiden Modellzustandsansätzen, die auch in den Extrapolationen nicht verschwindet (siehe Abbildung 3.7). Letzteres kann durchaus als Hinweis auf eine energetische Selektion des

ausgehend von einem festen Anfangszustand (beispielsweise $m_s = -s$), benötigt man $2s$ Spinflips um den ganzen Zustandsraum abzudecken. Im $SUBm$ -Approximationsschema stehen allerdings für die zusammenhängenden Cluster der Länge m (also die größtmöglichen Cluster) auch nur m Spinflips zur Verfügung. Es kann also pro Gitterplatz nur einen einzigen Spinflip geben. Eine Einbeziehung weiterer Spinflips kann daher erst in höheren Stufen oder für Cluster geringerer Länge erfolgen.

Tabelle 3.1.: Zusammenfassung der Grundzustandsresultate für $s = 1/2$ im isotropen Fall ($\lambda = 1$). Bei den aufgeführten extrapolierten Werten, handelt es sich um den normalen Ansatz (3.8) für die Energie und um den Ansatz M_1 (3.9) für den magnetischen Ordnungsparameter.

$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$	e_0	M
LSUB4	-0.408728	0.320702
LSUB5	-0.414235	0.291917
LSUB6	-0.418052	0.272109
LSUB7	-0.420677	0.248989
LSUB8	-0.423554	0.219994
LSUB9	-0.424962	0.204661
LSUB10	-0.426485	0.187634
Extrapoliert (4-10)	-0.4318	< 0
Extrapoliert (6-10)	-0.4336	< 0
$q = 0$	e_0	M
LSUB4	-0.408066	0.322860
LSUB5	-0.414418	0.286462
LSUB6	-0.420078	0.248078
LSUB7	-0.423126	0.225356
LSUB8	-0.426054	0.202074
LSUB9	-0.427952	0.186435
LSUB10	-0.429413	0.172742
Extrapoliert (4-10)	-0.4357	< 0
Extrapoliert (6-10)	-0.4372	< 0
weitere Resultate		
SE: Singh und Huse (2007) [31]	-0.432	—
MERA: Evenbly und Vidal (2010) [66]	-0.4322	—
ED: Läuchli <i>et al.</i> (2011) [43], $N = 42$ (Var. a)	-0.437999	—
ED: Läuchli <i>et al.</i> (2011) [43], $N = 42$ (Var. b)	-0.438143	—
DMRG: Yan <i>et al.</i> (2011) [42]	-0.4379	—
DMRG: Depenbrock <i>et al.</i> (2012) [44]	-0.4386(5)	—

„ $q = 0$ “-Ansatzes verstanden werden; aufgrund des in beiden Fällen verschwindenden Ordnungsparameters, ist allerdings eine entsprechend ferngeordnete Phase ausgeschlossen. Der direkte Vergleich mit den Resultaten anderer Methoden, macht außerdem deutlich, dass die extrapolierte CCM-Grundzustandsenergie des selektierten „ $q = 0$ “-Zustandes, deutlich näher an den Literaturdaten liegt (siehe Tab. 3.1). Hervorzuheben sind dabei, neben den Resultaten einer Reihenentwicklung (SE) um einen Dimer bzw. „Valence Bond“-Grundzustand [31], dem „*Multiscale Entanglement Renormalization Ansatz*“ (MERA) der mit $e_0 = -0.4322$ eine obere Grenze für die echte Grundzustandsenergie liefert [66] und den Daten einer *exakten Diagonalisierung* (ED) des Modells für zwei verschiedene Elementarzellen mit jeweils 42 berücksichtigten Gitterplätzen [43], insbesondere die mittels der „*Density Matrix Renormalization Group*“-Technik (DMRG) bestimmten Resultate [42,

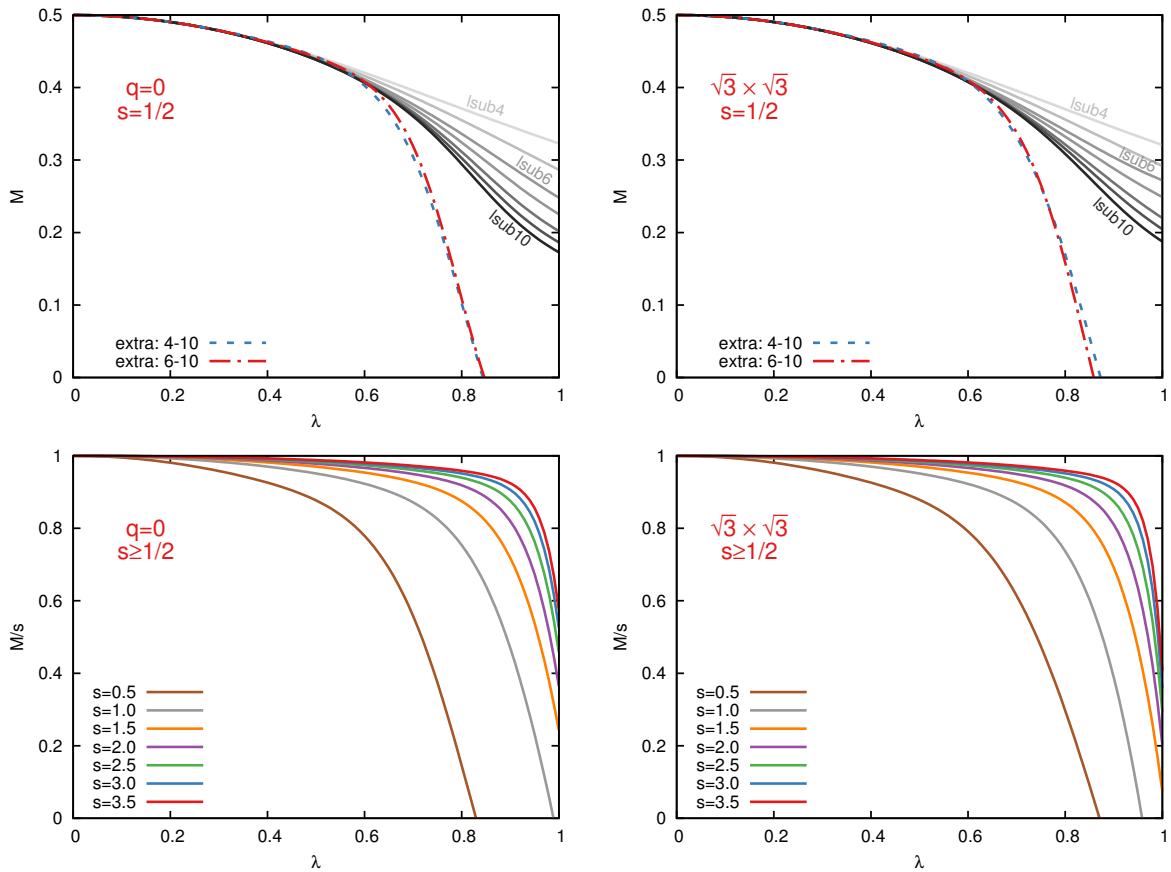


Abbildung 3.6.: Darstellung des magnetischen Ordnungsparameters für beide Modellzustände über den Parameter λ . Die oberen Abbildungen zeigen die LSUB n -Resultate sowie die daraus ermittelten Extrapolationen für den Fall $s = 1/2$, die unteren Abbildungen zeigen Extrapolationen (SUB4-4 bis SUB8-8) für alle untersuchten Werte von s . Verwendet wurde immer die Extrapolationsvorschrift: $M_1(m) = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{3}{2}}$.

44], die als die genauesten heutzutage zur Verfügung stehenden Näherungen für die exakte Grundzustandsenergie gelten. Hier zeigt sich außerdem, dass die Extrapolation bei der nur die Approximationen ab LSUB6 einbezogen wurden, deutlich bessere Resultate liefert; die Ursache dafür ist, dass bei der Ermittlung der Parameter der Fitfunktion kein Unterschied zwischen den niedrigeren aber ungenaueren und den höheren aber deutlich genaueren Approximationsstufen gemacht wird. Man kann also auch hier wieder festhalten, dass es ausreicht einen oder zwei zusätzliche Approximationsstufen mehr bei der Extrapolation zu berücksichtigen, als die Fitfunktion Freiheitsgrade besitzt.

Höhere Spinquantenzahlen: $s \geq 1$

Eine Übersicht der ermittelten Resultate für die höheren Spinquantenzahlen ist in Tabelle 3.2 zu finden. Für den Bereich $s > 1$ lässt sich klar festhalten, dass beide Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters endlich sind und mit höherem s weiter zunehmen. Dies ist ein deutlicher Hinweis auf eine langreichweitige magnetische Ordnung im isotropen

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

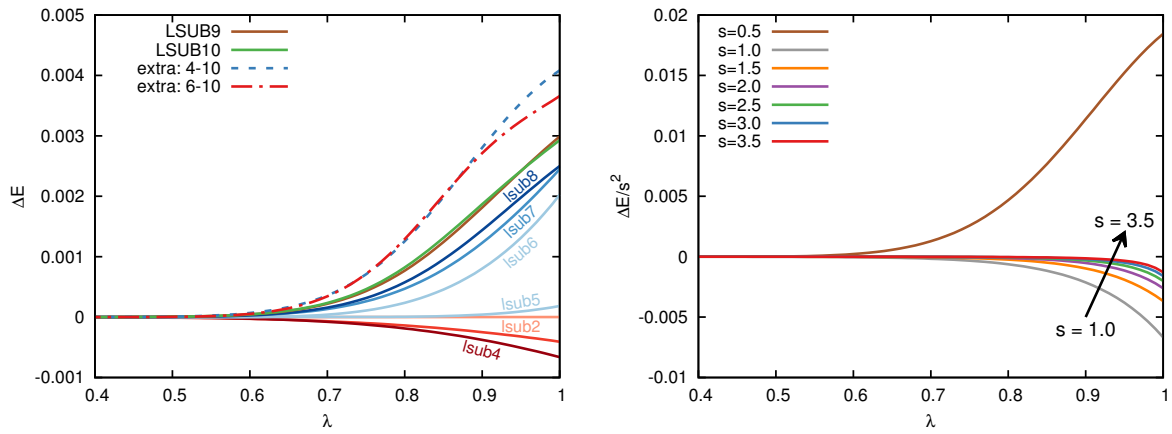


Abbildung 3.7.: Extrapolierte Grundzustandsenergieunterschiede $\Delta E = E_{\sqrt{3} \times \sqrt{3}} - E_{q=0}$ dargestellt über den Parameter λ , im Fall $s = 1/2$ (**links**) inklusive der berechneten Approximationen, sowie in einem Vergleich aller Spinquantenzahlen (**rechts**). Verwendet wurde die Extrapolationsvorschrift $E_N(m) = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^2 + c \left(\frac{1}{m}\right)^4$, wenn nicht anders angegeben immer unter Einbeziehung der Näherungsstufen SUB4-4 bis SUB8-8.

KHAFM ($\lambda = 1$), ein Resultat das durch die hier beschriebenen Untersuchungen erstmalig festgestellt und veröffentlicht [67] und später auch durch Arbeiten anderer Autoren [68, 69] bestätigt werden konnte.

Für $s = 1$ ist die Situation nicht eindeutig, da die Extrapolationen, für beide Modellzustände gleichermaßen, unterschiedliche Schlüsse bezüglich des Auftretens von Fernordnung für $\lambda = 1$ zulassen. Neuere Untersuchungen deuten allerdings stark auf einen ungeordneten Grundzustand bei dem KHAFM für $s = 1$ hin [46–50] und liefern damit ein indirektes Kriterium zur Auswahl bzw. Bevorzugung der M_1 -Extrapolationsvorschrift für das gesamte Modell, also einschließlich der höheren Spinquantenzahlen, da diese im Gegensatz zur M_2 -Extrapolationsvorschrift eine qualitativ korrekte Beschreibung sämtlicher magnetischer Eigenschaften liefert (d.h. sowohl den ungeordneten Grundzustand für $s \leq 1$ als auch die Fernordnung für $s > 1$). Eine Darstellung dieser Extrapolationen für sämtliche Werte von s erfolgt in Abbildung 3.6. Eine nähere Untersuchung der Art der magnetischen Fernordnung (für $s > 1$), kann nun durch einen Vergleich der Grundzustandsenergien erfolgen. Die grundsätzliche Überlegung ist die, dass sich in dem Parameterbereich in dem sowohl der auf dem „ $q = 0$ “- als auch der auf dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand basierende Grundzustand eine endliche Magnetisierung besitzen, die Fernordnung des Zustands durchsetzt, der die niedrigere Energie aufweist.

Die Betrachtung der Energiedifferenzen (siehe Abbildung 3.7) zeigt, dass sich für $s \geq 1$ der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand durchsetzt, was als deutlicher Hinweis auf eine „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Fernordnung im Bereich $s > 1$ interpretierbar ist, wie sie auch durch die aktuelle Literatur beschrieben wird [68, 69]. Für $s = 1$ ist die Situation völlig analog zum Fall $s = 1/2$, d.h. aufgrund des verschwindenden Ordnungsparameters ist eine anschauliche Interpretation der energetischen Selektion des auf dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand basierenden Grundzustandes

Tabelle 3.2.: Zusammenfassung der Grundzustandsresultate für beide Modellzustände für $s \geq 1$ im isotropen Fall ($\lambda = 1$). Für den magnetischen Ordnungsparameter wurden beide verwendeten Extrapolationsansätze aufgeführt (M_1 links und M_2 rechts).

	$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$		$q = 0$	
$s = 1$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.383644	0.580079	-1.379680	0.607293
Extrapoliert (4-8)	-1.4031	< 0 / 0.1593	-1.3965	< 0 / 0.2978
$s = 3/2$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.257354	0.690230	-1.254588	0.709167
Extrapoliert (4-8)	-1.2680	0.0744 / 0.4174	-1.2643	0.2438 / 0.4927
$s = 2$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.195442	0.735642	-1.193144	0.754580
Extrapoliert (4-8)	-1.2026	0.2029 / 0.4998	-1.2000	0.3645 / 0.5700
$s = 5/2$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.157697	0.766290	-1.155703	0.785822
Extrapoliert (4-8)	-1.1627	0.2942 / 0.5573	-1.1607	0.4586 / 0.6274
$s = 3$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.132263	0.788722	-1.130497	0.808862
Extrapoliert (4-8)	-1.1360	0.3583 / 0.5986	-1.1344	0.5256 / 0.6689
$s = 7/2$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
SUB8-8	-1.113941	0.806107	-1.112356	0.826827
Extrapoliert (4-8)	-1.1168	0.4062 / 0.6302	-1.1155	0.5759 / 0.7006
$s \rightarrow \infty$	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
Exakt	-1	1	-1	1

und insbesondere die damit einhergehende „Ablösung“ des „ $q = 0$ “-Zustands nicht ohne weitere Informationen möglich.

Es ist außerdem ersichtlich, dass die Energiedifferenz mit steigender Spinquantenzahl abnimmt und im Limes $s \rightarrow \infty$ verschwindet, was im ferneordneten Regime ($s > 1$) gerade dem Übergang in den, bezüglich seiner planaren Fernordnungen vollständig entarteten, klassischen Grundzustand entspricht.

3.1.4. Zusammenfassung

Mit der CCM wurde eine Modifikation des Heisenberg-Modells untersucht (3.7), die es ermöglicht, über einen zusätzlichen Parameter, der als ein Maß für die Stärke der Quantenfluktuationen interpretierbar ist, den Übergang aus einem von quantenmechanischen Effekten freien Grenzfall in das vollständige Modell des KHAFM zu steuern. Im Zuge der Untersuchungen wurde ein magnetischer Ordnungsparameter sowie die Grundzustandsenergie für zwei, sich aus den favorisierten planaren Grundzustandsordnungen: „ $q = 0$ “ und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “ (siehe Abbildung 3.3) abgeleiteten, Varianten des Grundzustandes berechnet. Dabei konnten wesentliche bereits bekannte Resultate wie das Fehlen von magnetischer

Fernordnung für $s \leq 1$ bestätigt werden. Besonders hervorzuheben ist die Tatsache, dass die hier vorgestellten Resultate, zum Zeitpunkt ihrer Veröffentlichung im Jahr 2011, erstmals das Auftreten eines magnetisch ferngeordneten Grundzustandes für $s > 1$ vorhersagten, eine Aussage die später auch durch andere Arbeiten bestätigt wurde [68, 69]. Eine klare Bestimmung der Art des Grundzustandes im Bereich fehlender Fernordnung ist mit den Mitteln der CCM nicht möglich gewesen. Eine Besonderheit trat allerdings bei der Untersuchung des Modells im Fall $s = 1/2$ auf, bei dem die Betrachtung der Energiedifferenzen auf eine von den höheren Spinquantenzahlen abweichende Selektion des Grundzustandes (zugunsten des „ $q = 0$ “-Ansatzes) hinweist. Eine solche Möglichkeit wurde ebenfalls in der Fachliteratur bis zu diesem Zeitpunkt nicht angenommen und könnte als ein Hinweis für das Auftreten von **kurzreichweitiger** „ $q = 0$ “-Ordnung angesehen werden, ist aber grundsätzlich auch mit der allgemein angenommenen Existenz einer Spinflüssigkeit mit Anregungslücke vereinbar.

An dieser Stelle soll außerdem noch einmal darauf hingewiesen werden, dass die Resultate dieses Abschnittes bereits in der Fachliteratur veröffentlicht wurden, siehe [67]. Dort findet man auch weiterführende Aussagen zur s -Abhängigkeit der Grundzustandsenergie und des magnetischen Ordnungsparameters.

3.2. Das XXZ-Modell auf dem Kagome-Gitter mit beliebigem Spin

Die im vorherigen Kapitel dargestellten Resultate für den zweidimensionalen KHAFM boten einen Einblick in die Vielzahl der möglichen Grundzustände und die Komplexität der diesen zugrunde liegenden Auswahlmechanismen wie dem durch thermische Fluktuationen und Quantenfluktuationen bedingten „Order from/by Disorder“-Effekt (OBD). Obwohl es durch eine ganze Reihe auf der Basis verschiedener Methoden durchgeführter Untersuchungen in den letzten Jahren zu einem großen Zuwachs an neuen Erkenntnissen kam, ist ein wirkliches Verständnis bis heute nicht erreicht. Diese Situation rückte schließlich andere Varianten des Heisenberg-Modells in den Vordergrund, wie das sogenannte XXZ-Modell auf dem Kagomegitter, das durch die Einführung einer Anisotropie in der Form eines zusätzlichen Vorfaktors Δ vor den z -Komponenten des Spins ausgezeichnet ist:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \left(\hat{S}_i^x \hat{S}_j^x + \hat{S}_i^y \hat{S}_j^y + \Delta \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z \right), \quad 0 \leq \Delta \leq 1. \quad (3.11)$$

Die Anisotropie hat für $0 \leq \Delta < 1$ zunächst einmal den Effekt, dass sie die klassische Grundzustandsentartung des isotropen Modells ($\Delta = 1$) zugunsten der vollständig innerhalb xy -Ebene liegenden Zustände aufhebt. Darüber hinaus findet allerdings keine weitere Einschränkung statt, d.h. wie beim isotropen Modell ist jeder Zustand gültig,

bei dem die Winkeldifferenzen zwischen allen benachbarten Spins 120° betragen. Durch diesen zusätzlichen Parameter im XXZ-Modell wird der bereits für den isotropen KHAFM beschriebene „Order from/by Disorder“-Mechanismus (siehe Abschnitt 3.1.1) also nicht im eigentlichen Sinne gestört, er bietet stattdessen vielmehr die Möglichkeit diesen Effekt näher zu untersuchen.³

Motiviert durch eine Reihe von aktuellen Veröffentlichungen zu diesem Modell [45, 70], insbesondere durch die Arbeit von Chernyshev und Zhitomirsky (CZ) [70], die sich mit der Grundzustandsselektion zwischen den bereits eingeführten Zuständen mit „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung befasst, wurden eigene Untersuchungen mittels der CCM durchgeführt, deren Resultate den wesentlichen Inhalt dieses Kapitels ausmachen und ebenfalls bereits veröffentlicht wurden [71].

3.2.1. Der klassische Grundzustand und die Auswahl des Modellzustands

Im klassischen Fall lässt sich das XXZ-Modell noch analytisch untersuchen. Beschränkt man sich dabei auf die mindestens benötigte Anzahl von drei Untergittern (A , B und C), so ergibt sich zunächst der folgende Ausdruck für die Grundzustandsenergie (siehe dazu Abbildung 3.8):

$$\begin{aligned} \frac{E_0}{N} = \frac{2}{3} & \left[\bar{s}_A \bar{s}_B \cos(\delta_1) + \bar{s}_B \bar{s}_C \cos(2\pi - \delta_1 - \delta_2) + \bar{s}_C \bar{s}_A \cos(\delta_2) \right. \\ & \left. + \Delta s^2 (\cos \gamma_A \cos \gamma_B + \cos \gamma_B \cos \gamma_C + \cos \gamma_A \cos \gamma_C) \right], \end{aligned} \quad (3.12)$$

hier steht \bar{s}_n für den Betrag der Projektion des Spinvektors des n -ten Untergitters auf die xy -Ebene:

$$\bar{s}_n = s \sin \gamma_n, \quad n \in \{A, B, C\}.$$

Es gilt außerdem:

$$\gamma_A, \gamma_B, \gamma_C \in [0, \pi] \text{ sowie } \delta_1, \delta_2, \delta_1 + \delta_2 \in [0, 2\pi).$$

Man kann nun zeigen, dass die Anisotropie die Grundzustände nicht nur für $\Delta = 0$ sondern im gesamten untersuchten Parameterbereich: $0 \leq \Delta < 1$ auf die xy -Ebene (man spricht auch von der sogenannten „*Easy Plane*“) einschränkt ($\gamma_A = \gamma_B = \gamma_C = \frac{\pi}{2}$), wobei der Winkel zwischen den Spins 120° beträgt ($\delta_1 = \delta_2 = \frac{2}{3}\pi$). Dies schließt insbesondere die Zustände mit „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung mit ein, die im isotropen Modell als

³Durch thermische Fluktuationen und Quantenfluktuationen (hier speziell harmonische Fluktuationen im Rahmen der linearen Spinwellentheorie) beim Übergang zum Quantenmodell, werden aus der hochgradig entarteten Grundzustandsmannigfaltigkeit des klassischen isotropen KHAFM zunächst die koplanaren Zustände selektiert und aus diesen dann schlussendlich die Zustände mit langreichweitiger „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung, siehe Diskussion in Abschnitt 3.1.1.

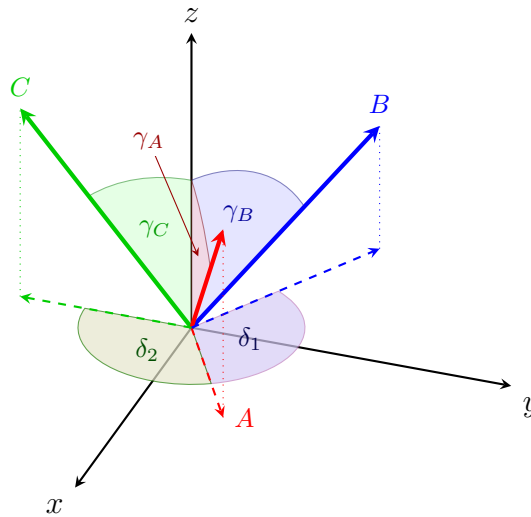


Abbildung 3.8.: Die klassische Raumorientierung der Spins dreier Untergitter ist bestimmt durch ihre Winkel zur z -Achse: γ_A, γ_B und γ_C , sowie die Winkeldifferenzen ihrer Projektionen auf die xy -Ebene: δ_1 und δ_2 . Bis auf Rotationen aller Spins um die z -Achse ist ihre Lage damit eindeutig beschrieben.

wahrscheinlichste Kandidaten und direkte Konkurrenten für bzw. um die dominierende magnetische Fernordnung gelten. Im Rahmen der in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen soll nun die Frage geklärt werden, ob die für $s > 1$ gefundene Bevorzugung einer „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung im isotropen Modell, durch die eingeführte Anisotropie zugunsten einer „ $q = 0$ “-Ordnung verändert werden kann und ob die Abschwächung der Quantenfluktuationen bei geringer werdendem Δ auch zu einer Entstehung von magnetischer Fernordnung im Bereich $s \leq 1$ führen kann. Wie schon in den vorherigen Kapiteln werden dafür wieder zwei CCM-Ansätze für den Grundzustand konstruiert, naheliegenderweise sowohl auf der Basis eines „ $q = 0$ “-Modellzustands als auch eines „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustands (Abb. 3.3). Die damit berechneten Resultate werden im folgenden Abschnitt vorgestellt und ausgewertet.

3.2.2. Resultate

Mit dem Ziel der Bestimmung eines s - Δ -Phasendiagramms wurden auf der Basis der beiden vorgestellten Modellzustände verschiedene CCM-Approximationen für die Grundzustandsenergie $e_0 = E_0/N$ und den magnetischen Ordnungsparameter M berechnet. Für die Spinquantenzahl $s = 1/2$ konnten dabei Näherungen bis zur Stufe LSUB10 (bzw. SUB10-10) und für alle höheren Werte ($s = 1, \dots, 5$) bis zur Stufe SUB8-8 berechnet werden. In jedem Fall wurde dabei der gesamte Parameterbereich $0 \leq \Delta \leq 1$ der Anisotropie durchlaufen. Aus diesen Rohdaten wurden im nächsten Schritt Extrapolationen für den exakten Grenzfall ($\lim_{m \rightarrow \infty} \text{SUB}m$) unter Einbeziehung der Stufen $m = 4, 5, \dots, 10$ für den Fall $s = 1/2$, sowie $m = 4, 5, \dots, 8$ für $s \geq 1$ berechnet. Für die Grundzustandsenergie

wurde dabei wieder der übliche Ansatz $e_0(m) = O_{2,4}$:

$$e_0(m) = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^2 + c \left(\frac{1}{m}\right)^4 \quad (3.13)$$

verwendet. Für den Ordnungsparameter wurde der Ansatz $M(m) = O_{1/2,3/2}$:

$$M(m) = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{3}{2}}, \quad (3.14)$$

gewählt, der sich bereits beim isotropen KHAFM (dort als Ansatz M_1 bezeichnet) als die geeignetste Wahl erwiesen hatte und deshalb auch schon aus Gründen der Konsistenz mit diesem Modell (es ist im Grenzfall $\Delta = 1$ im XXZ-Modell enthalten) eine sinnvolle Wahl darstellt. Zusätzlich wurden aber dennoch wieder Vergleichsdaten auf der Basis des alternativen Ansatzes $M(m) = O_{1,2}$:

$$M(m) = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^1 + c \left(\frac{1}{m}\right)^2,$$

berechnet. Es zeigte sich aber auch hier, dass das $O_{1/2,3/2}$ Schema deutlich bessere Resultate liefert (siehe dazu auch die Abbildungen im Anhang A.4.2). Da sich dabei aber eine prinzipiell ähnliche Situation wie beim isotropen Modell darstellte (siehe Abschnitt 3.1.2), wird an dieser Stelle allerdings auf eine erneute ausführliche Diskussion verzichtet.

Eine einfache Darstellung der Resultate bzw. der Extrapolationen für die Grundzustandsenergie und den magnetischen Ordnungsparameter über den Parameter Δ (siehe Abbildungen 3.9 und 3.10) zeigt, dass sich der „ $q = 0$ “- und der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Fall grundsätzlich ähnlich sind. So zeigt die Energie für $s = 1/2$ in beiden Fällen eine nahezu lineare Abhängigkeit von der Stärke der Anisotropie, die für höhere s , insbesondere in der Nähe von $\Delta = 1$, aber wieder davon abweicht. Deutlich stärker ist die Δ -Abhängigkeit beim magnetischen Ordnungsparameter M/s . Ab $s = 3/2$ weist die $M(\Delta)$ -Kurve einen anfänglich (beginnend bei $\Delta = 0$) noch moderaten Anstieg auf, erfährt dann aber in der Nähe von $\Delta = 1$ einen relativ drastischen Einbruch, der sich mit steigendem s noch stärker ausprägt. Es lässt sich außerdem festhalten, dass eine Verstärkung der Anisotropie ($\Delta \rightarrow 0$) die magnetische Ordnung grundsätzlich stabilisiert. Besonders interessant ist in diesem Zusammenhang der Fall $s = 1$, für den im isotropen Modell keine Fernordnung nachgewiesen werden konnte (siehe Abschnitt 3.1). Hier zeigt sich, dass diese potenziell ungeordnete Phase in beiden Fällen tatsächlich nur innerhalb einer Region $\Delta^* \leq \Delta \leq 1$ Bestand hat. Für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand liegt die Grenze bei $\Delta^* = 0.818$ und für den „ $q = 0$ “-Zustand bei $\Delta^* = 0.945$, unterhalb derer die CCM einen langreichweitig geordneten Grundzustand vorhersagt. Nicht abgebildet wurde der Fall $s = 1/2$, der im gesamten Bereich $0 \leq \Delta \leq 1$ keine magnetische Fernordnung aufweist.

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

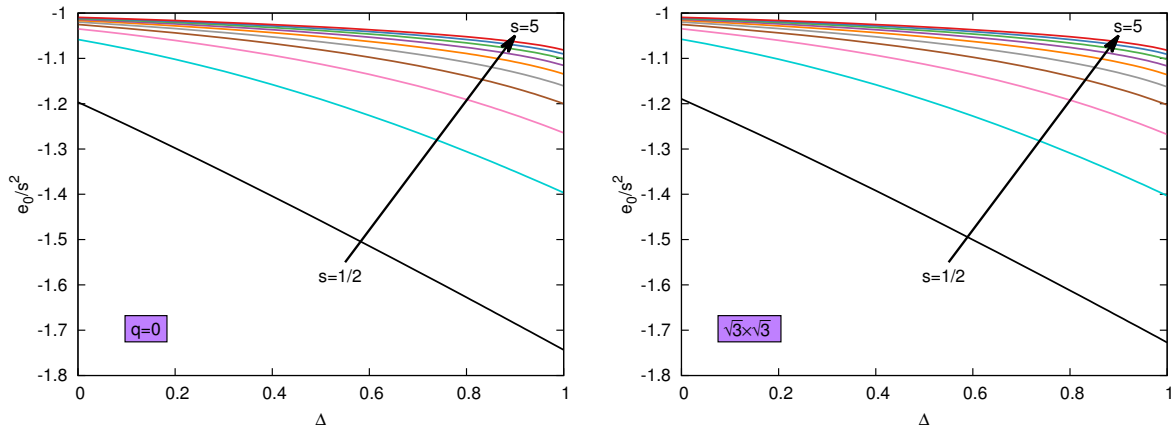


Abbildung 3.9.: Extrapolation der Grundzustandsenergie für das XXZ-Modell auf dem Kagomegitter, basierend auf dem „ $q = 0$ “-Modellzustand (**links**) und dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand (**rechts**) für verschiedene Werte der Spinquantenzahl.

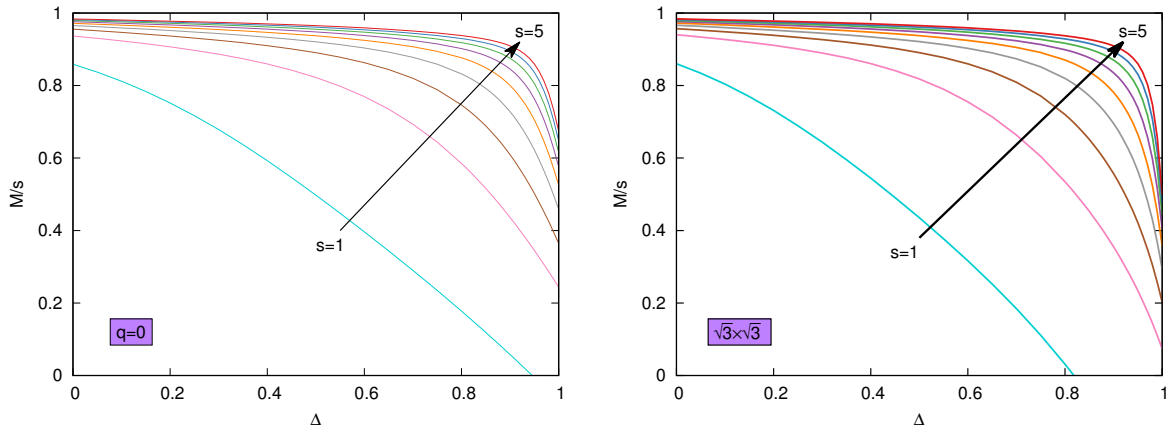


Abbildung 3.10.: Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters für das XXZ-Modell auf dem Kagomegitter, basierend auf dem „ $q = 0$ “-Modellzustand (**links**) und dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand (**rechts**) für verschiedene Werte der Spinquantenzahl.

In Ergänzung zu den Daten des isotropen Falls ($\Delta = 1$) in Abschnitt 3.1 (in den Tabellen 3.1 und 3.2), sind die extrapolierten Resultate für das XY-Modell ($\Delta = 0$) in der Tabelle 3.3 aufgeführt.

Bestimmung der Phasengrenzen

Wie schon beim isotropen Modell, werden im Folgenden nun die Grundzustandsenergieunterschiede ermittelt, auf deren Basis dann eine Aussage darüber getroffen werden kann, welche der beiden Fernordnungen im Grundzustand vorliegt. Die Grundzustandsenergien wurden mit einer numerischen Genauigkeit von mindestens zehn Nachkommastellen berechnet und da die Darstellung ihrer Differenzen in der Abbildung 3.11 deutlich macht, dass deren Größenordnung im kritischen Bereich (d.h. vor und nach den Nulldurchgängen: $\Delta < 0.8$) mindestens bei 10^{-4} liegt, sind diese Resultate also durchaus relevant.

Tabelle 3.3.: Extrapolationen der Grundzustandsenergie und des magnetischen Ordnungsparameters im XY-Grenzfall ($\Delta = 0$) für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “- und den „ $q = 0$ “-Zustand.

	$\sqrt{3} \times \sqrt{3}$		$q = 0$	
	e_0/s^2	M/s	e_0/s^2	M/s
$s = 1/2$	-1.1896	< 0	-1.1968	< 0
$s = 1$	-1.0578	0.8602	-1.0583	0.8589
$s = 3/2$	-1.0347	0.9402	-1.0349	0.9368
$s = 2$	-1.0252	0.9570	-1.0253	0.9556
$s = 5/2$	-1.0198	0.9664	-1.0199	0.9656
$s = 3$	-1.0163	0.9723	-1.0164	0.9719
$s = 7/2$	-1.0139	0.9765	-1.0139	0.9762
$s = 4$	-1.0121	0.9796	-1.0121	0.9793
$s = 9/2$	-1.0107	0.9819	-1.0107	0.9817
$s = 5$	-1.0096	0.9838	-1.0096	0.9836

Eine konkrete Analyse der Energiedifferenzen lässt sich wie folgt zusammenfassen. Innerhalb der Region $0 \leq \Delta \leq 1$ gibt es kritische, von der Spinquantenzahl abhängige Werte $\Delta_c(s)$, bei denen sich die Vorzeichen der Energiedifferenzen $\delta e = e_0^{q=0} - e_0^{\sqrt{3} \times \sqrt{3}}$ umkehren. Ganz allgemein lässt sich feststellen, dass bei $\Delta = 0$ der „ $q = 0$ “-Zustand noch für alle Werte von s die niedrigere Energie aufweist. Mit Abschwächung der Anisotropie (bzw. größer werdendem Δ) vollzieht sich dann ein Übergang zum „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand, der bei $s = 1$ beginnend sich mit der Zunahme von s immer weiter zu höheren Δ verschiebt (siehe Tabelle 3.4 für eine Übersicht). Ebenfalls in Abbildung 3.11 dargestellt, ist eine Kurve

Tabelle 3.4.: Liste der kritischen Punkte: $\delta e(s, \Delta_c) = 0$.

	$s = 1$	$s = \frac{3}{2}$	$s = 2$	$s = \frac{5}{2}$	$s = 3$	$s = \frac{7}{2}$	$s = 4$	$s = \frac{9}{2}$	$s = 5$	$s \rightarrow \infty$
Δ_c	0.281	0.525	0.588	0.621	0.643	0.657	0.666	0.673	0.679	0.727

aus dem bereits erwähnten Artikel von CZ [70], welche die Autoren mittels nichtlinearer Spinwellentheorie (NLSWT) für den Grenzfall kleiner $1/s$ bzw. großer s ermittelt haben und sehr gut mit den CCM Daten für die höheren Werte von s übereinstimmt. Diese NLSWT-Kurve liefert also einen von s unabhängigen kritischen Wert von $\Delta_c = 0.72235$, der mit den CCM-Daten ($s = 1/2, \dots, 5$) zunächst nicht direkt überprüft werden kann. Es bietet sich aber an den Fall $s \rightarrow \infty$ aus den vorhandenen Daten zu extrapolieren, dafür wird ein einfaches Polynom zweites Grades in $1/s$ angesetzt:

$$\delta e(s) = a + b \frac{1}{s} + c \frac{1}{s^2}, \quad (3.15)$$

dessen Koeffizienten dann mittels der „Methode der kleinsten Quadrate“ (GNUplot-Fit) bestimmt werden. Unter Einbeziehung der Werte für $s = 3, 7/2, 4, 9/2, 5$ ergibt sich der

3. Der Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagome-Gitter

kritische Wert der Anisotropie für große s zu $\Delta_c = 0.727$, der gut mit dem NLSWT Resultat übereinstimmt.

In der SWT ist die Spinquantenzahl s ein Parameter der beliebige (d.h. auch unphysikalische) Werte annehmen kann. Im Rahmen dieser Methode ist es daher möglich, eine kontinuierliche Kurve für den Phasenübergang $M(s, \Delta) = 0$ anzugeben (siehe dazu die aus dem Artikel [70] von CZ entnommene Abbildung 3.12). In der CCM ist die gequantelte Natur des Spins allerdings ein wesentliches Element ihres Formalismus, weshalb die direkte Berechnung einer solchen kontinuierlichen Kurve mit ihr natürlich nicht möglich ist. Um dennoch eine bessere Vergleichbarkeit mit den SWT Resultaten zu ermöglichen, wurden die Daten des Ordnungsparameters M für feste Werte von Δ über s gefittet, um daraus dann Datenpunkte für eine zur SWT analoge „virtuelle“ Übergangslinie $M_\Delta(s_c) = 0 \Rightarrow s_c(\Delta)$ zwischen der vorherrschenden magnetisch geordneten und der ungeordneten Phase zu gewinnen. Dabei wurde die folgende Fitfunktion angesetzt

$$M_\Delta(s) = b_0(\Delta) - b_1(\Delta)s^{-1/2} - b_2(\Delta)s^{-1} - b_3(\Delta)s^{-3/2} - b_4(\Delta)s^{-2}, \quad (3.16)$$

wobei die Daten für $s = 1/2$ nicht miteinbezogen wurden. Zusammen mit den kritischen Werten Δ_c aus der Grundzustandsselektion kann damit nun ein s - Δ -Phasendiagramm erzeugt werden (Abbildung 3.11 rechts). Verglichen mit dem Phasendiagramm von CZ

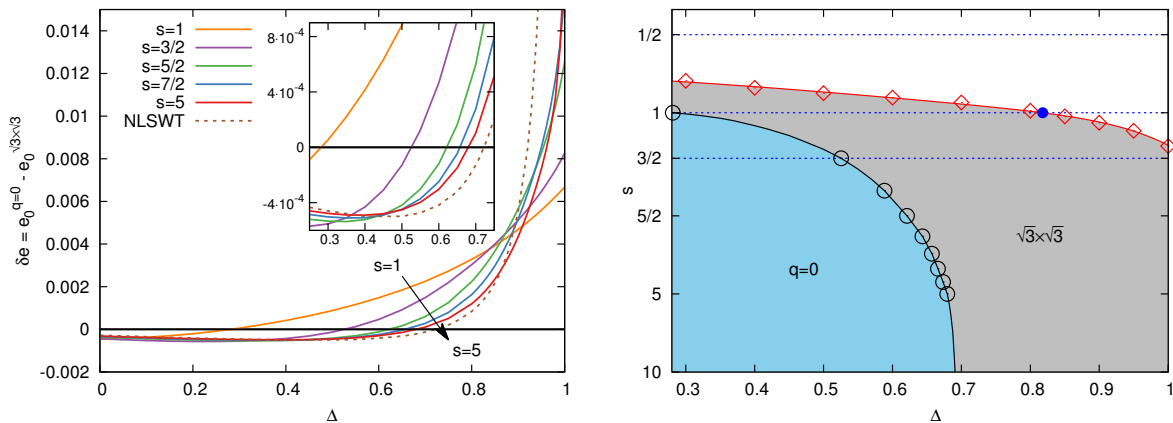


Abbildung 3.11.: (links) Grundzustandsenergiedifferenzen des „ $q = 0$ “- und des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ansatzes für verschiedene Werte von s , sowie für $s \rightarrow \infty$ der nichtlinearen SWT von CZ [70]. (rechts) s - Δ Phasendiagramm aus den Δ_c (schwarz) und den virtuellen Nullstellen des magnetischen Ordnungsparameters $M_\Delta(s)$ für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand (rot). Der blaue Punkt entspricht dem realen Phasenübergangspunkt für $s = 1$.

(Abb. 3.12a) zeigen sich zunächst deutliche Unterschiede. Die von den Autoren verwendete Methode zur Bestimmung der Übergänge zwischen der „ $q = 0$ “- und der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-geordneten Phase (bzw. der Δ_c) ist nicht geeignet die Spinabhängigkeit korrekt wiederzugeben⁴,

⁴Die SWT ist im Prinzip eine $1/s$ -Entwicklung und liefert daher nur Resultate für den Grenzfalle hoher s . In [70] ist Δ_c daher unabhängig von s .

weshalb diese dort nur als vertikale Linie dargestellt ist. Ein weiterer Unterschied betrifft die bereits besprochene Übergangslinie $M_\Delta(s_c) = 0$ zur ungeordneten Phase. Verglichen mit den CCM Resultaten (aber auch mit aktuellen DMRG Resultaten, siehe [45, 72]) impliziert diese für $\Delta < 1$ eine deutlich vergrößerte geordnete Phase, wobei der $\Delta = 1$ Fall gleichzeitig als praktisch ungeordnet dargestellt wird. Die Autoren weisen in ihrem Artikel aber auch selbst darauf hin, dass die SWT die geordnete Phase überschätzt und daher für kleinere Spinquantenzahlen sowie im Heisenberg-Grenzfall ($\Delta \rightarrow 1$) nicht wirklich geeignet ist. Sie machen daher Vorschläge wie die angesprochenen Unzulänglichkeiten kompensiert werden könnten und stellen diese in einem korrigierten, aber spekulativem zusätzlichen Phasendiagramm dar (Abb. 3.12b). Die darin dargestellte Phasenübergangslinie $s_c(\Delta)$ ist

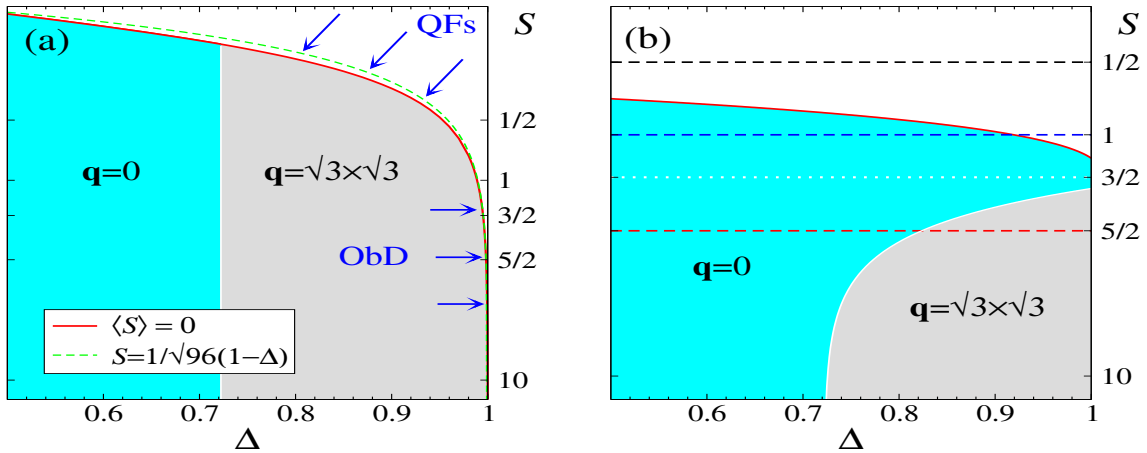


Abbildung 3.12.: (a) Methodisches und (b) spekulatives s - Δ Phasendiagramm von CZ [70].

Die Verwendung dieser beiden Abbildungen erfolgt mit freundlicher Genehmigung von A.L. Chernyshev und M.E. Zhitomirsky und liegt in schriftlicher Form vor.

in guter qualitativer Übereinstimmung mit den CCM-Resultaten. Besonders hervorzuheben sind dabei die fehlende Fernordnung für $s = 1/2$ im gesamten Parameterbereich, die Existenz eines Phasenübergangspunkts bei $s = 1$ und der durchgängig langreichweitig geordnete Grundzustand für $s \geq 3/2$ insbesondere auch im Heisenberg-Limit ($\Delta = 1$). Die von den Autoren vorgeschlagene Spinabhängigkeit der Übergangspunkte zwischen den geordneten Phasen: $\Delta_c(s)$ ist allerdings nicht mit den CCM-Resultaten vereinbar, gerade auch die im Heisenberg-Fall für $s = 3/2$ gefolgerte Existenz eines „ $q = 0$ “ geordneten Grundzustandes steht im Widerspruch zu sämtlicher Fachliteratur [60–62, 67–69]. Die CCM wiederum bietet, aufgrund der direkten Berechenbarkeit der relevanten Observablen für beliebige Werte der Anisotropie und insbesondere auch der Spinquantenzahl, gar nicht den nötigen Spielraum, die in das Phasendiagramm einfließenden Größen anders zu interpretieren. Da sie außerdem in allen entscheidenden Punkten mit den als gesichert geltenden Resultaten aus der Fachliteratur übereinstimmt, kann an dieser Stelle davon ausgegangen werden, dass das CCM-Phasendiagramm den korrekten Verlauf wiedergibt.

3.2.3. Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde der Einfluss einer „*Easy Plane*“-Anisotropie auf die Entstehung und Stabilität bestimmter Grundzustandsphasen untersucht. Insbesondere sollte die Frage geklärt werden, ob die mit der Zunahme der Anisotropie ($\Delta \rightarrow 0$) verknüpfte Abschwächung der Quantenfluktuationen zu einer Ablösung der für $s \geq 3/2$ im Heisenberg-Modell bereits nachgewiesenen „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung durch eine, zu dieser in direkter Konkurrenz stehenden, „ $q = 0$ “-Ordnung führt. Auf der Basis zweier entsprechender CCM-Grundzustandsansätze konnte gezeigt werden, dass die dafür notwendigen energetischen Selektionen an den Stellen $\Delta_c(s)$ für $s \geq 1$ tatsächlich auftreten. Es zeigte sich ganz grundsätzlich, dass die Anisotropie die Entstehung von Fernordnung begünstigt, speziell im Fall $s = 1$ ließ sich an der Stelle $\Delta^* = 0.818$ ein Übergang von dem noch im Heisenberg-Fall ($\Delta = 1$) ungeordneten Grundzustand in eine magnetisch langreichweitig geordnete „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Phase nachweisen, die ab $\Delta_c = 0.281$ schließlich durch eine „ $q = 0$ “ Phase abgelöst wird. Für $s = 1/2$ ließ sich allerdings im gesamten untersuchten Parameterbereich $0 \leq \Delta \leq 1$ keine Fernordnung nachweisen. Über die Natur der ungeordneten Phasen kann hier nur spekuliert werden, es ist allerdings davon auszugehen, dass die in den Untersuchungen zum isotropen KHAFM bereits angesprochene Spinflüssigkeitsphase für $s \leq 1$ zumindest in einer begrenzten Region um $\Delta = 1$ weiterhin Bestand hat, eine konkrete Untersuchung geht aber über die Möglichkeiten der CCM hinaus. Abschließend wird hiermit darauf hingewiesen, dass die hier vorgestellten Ergebnisse neben dieser Arbeit außerdem in einem Fachartikel veröffentlicht wurden [71].

3.3. Das geschichtete Kagome-Gitter

Bei der Klärung der Frage nach der Existenz einer Spinflüssigkeit (auch „*Quantum Spin Liquid*“ oder kurz QSL) mit Gap im Grundzustand des Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Kagomegitter (KHAFM) konnte die CCM nur indirekt dadurch beitragen, dass sie deutliche Hinweise auf ungeordnete Phasen für die Spinquantenzahlen $s \leq 1$ lieferte. Unter der Annahme der Existenz einer solchen QSL-Phase, stellt sich nun unter anderem die Frage nach ihrer Beständigkeit bei Variationen des zugrunde liegenden Modells. Es ist beispielsweise so, dass das Heisenberg-Modell in höheren Dimensionen bzw. bei höheren Koordinationszahlen eine stärkere Tendenz zur Bildung von langreichweitiger Ordnung im Grundzustand aufweist, woraus sich schlussfolgern lässt, dass eine Spinflüssigkeit auf einem dreidimensionalen, geschichteten Kagomegitter auch bei niedrigen Spinquantenzahlen durch einen geordneten Zustand abgelöst werden kann. Wie in den vorherigen Abschnitten bereits deutlich gemacht wurde, gibt es zu den rein zweidimensionalen Varianten des KHAFM eine Vielzahl an Untersuchungen; ganz im Gegensatz zu den dreidimensionalen Modellen, wie dem in diesem Abschnitt betrachteten „geschichteten KHAFM“, zu denen

praktisch keine Veröffentlichungen vorliegen. Die Ursachen dafür sind auf die Tatsache zurückzuführen, dass die meisten Methoden, die hinreichend genaue Resultate liefern können, wie die *exakte Diagonalisierung* für große Gitterausschnitte, die „*Density Matrix Renormalization Group*“-Technik und andere, allesamt für niedrigdimensionale Systeme konzipiert wurden und daher bei den dreidimensionalen Gittern entweder nicht anwendbar sind oder unbefriedigende Resultate liefern. Eine Ausnahme dazu stellt eine frühere Arbeit unter Anwendung der *rotationsinvarianten Greensfunktionmethode* (RGM) dar [73], die sich ebenfalls mit dem „geschichteten Kagomegitter“ befasst.

In der CCM spielt die Dimension von Spinsystemen allerdings keine besonders hervorgehobene Rolle, was sie neben der schon mehrfach erwiesenen Qualität ihrer Resultate zu einer idealen Methode zur Untersuchung solcher Systeme macht und damit auch einen der Hauptgründe für ihre Anwendung auf das im Folgenden näher betrachtete Modell liefert.

Das „geschichtete Kagomegitter“ besteht aus periodisch übereinander geschichteten zweidimensionalen Kagomegittern. Dabei sind die Kagome-Ebenen über eine zusätzliche Kopplung J_{\perp} zwischen direkt über- bzw. untereinander benachbarten Gitterplätzen miteinander verbunden, die Kopplung der Spinträger innerhalb der Ebenen wird auf Eins fixiert ($J = 1$). Der resultierende Hamiltonoperator sieht folgendermaßen aus:

$$\hat{H} = \sum_{\langle i,j \rangle, n} \hat{S}_{i,n} \hat{S}_{j,n} + J_{\perp} \sum_{i,n} \hat{S}_{i,n} \hat{S}_{i,n+1}, \quad (3.17)$$

hierbei laufen die Indizes i und j über die Gitterplätze innerhalb einer durch den zusätzlichen Index n festgelegten Ebene. Des Weiteren beschränken sich die hier vorgestellten Untersuchungen auf den Fall $s = 1/2$.

3.3.1. Die Auswahl der Modellzustände

Das weitere Vorgehen verläuft nun analog zur Herangehensweise im vorherigen Abschnitt, d.h. basierend auf den bereits eingeführten Modellzuständen des zweidimensionalen KHAFM, dem „ $q = 0$ “- und dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand, werden zwei dreidimensionale Modellzustände konstruiert, die einheitlich auf jeder Ebene entweder identisch mit dem „ $q = 0$ “- oder dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand sind.⁵ Mischzustände bestehend aus unterschiedlich geordneten Ebenen sind nicht zielführend, da die Kopplung zwischen den Ebenen unfrustriert ist und die Spins einer Ebene sich somit, in einer klassischen Vorstellung, entweder parallel oder antiparallel zu ihren direkten Partnern in den Nachbarebenen ausrichten.

⁵Streng genommen handelt es sich dabei um vier Modellzustände, da die Berücksichtigung von antiferromagnetischen und ferromagnetischen Zwischenschichtenkopplungen jeweils einen anderen Modellzustand erfordern.

3.3.2. Resultate

Auf der Basis der genannten Modellzustände wurden für den geschichteten KHAFM (mit $s = 1/2$) CCM-Approximationen für die Grundzustandsenergie sowie für den magnetischen Ordnungsparameter bis zur Näherungsstufe LSUB8 berechnet. Eine grafische Darstellung der Resultate erfolgt in den Abbildungen 3.13 und 3.14.

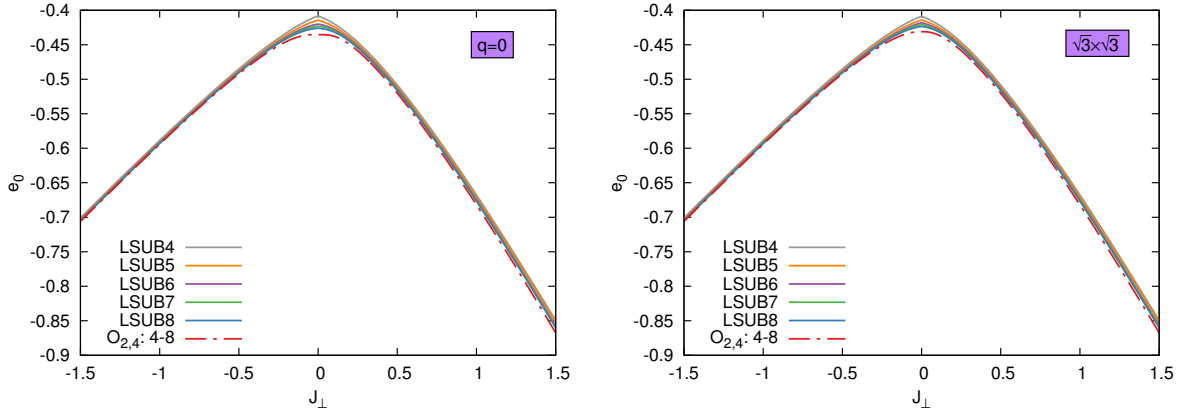


Abbildung 3.13.: CCM-Approximationen und Extrapolation der Grundzustandsenergie für den geschichteten KHAFM basierend auf einem „ $q = 0$ “-Modellzustand (**links**) und einem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand (**rechts**).

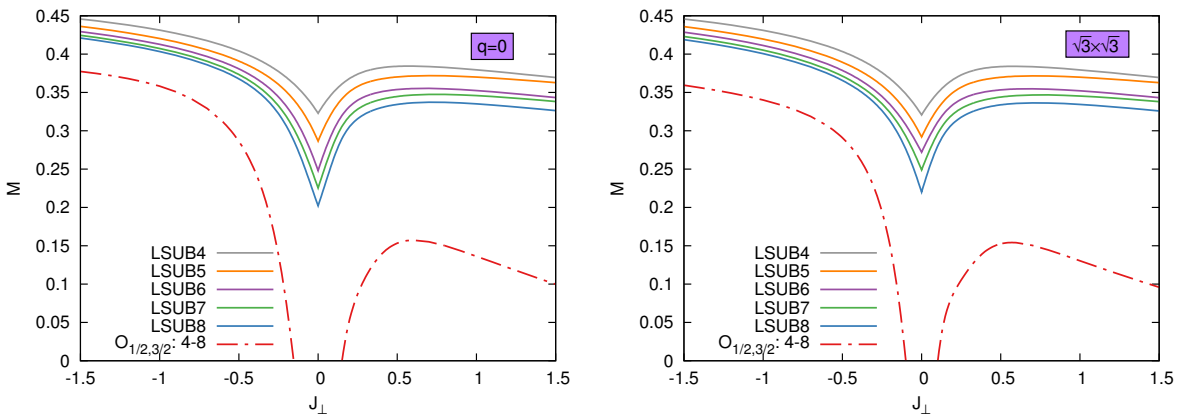


Abbildung 3.14.: CCM-Approximationen und Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters für den geschichteten KHAFM basierend auf einem „ $q = 0$ “-Modellzustand (**links**) und einem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand (**rechts**).

Es zeigt sich, dass die Grundzustandsenergiekurven für beide Modellzustände nahezu identisch sind und auch grundsätzlich sehr schnell konvergieren. Für die Extrapolationen wurde wieder das $O_{2,4}$ -Schema verwendet, das im gesamten Parameterbereich sehr gute und stetige Resultate liefert (eine Darstellung der Fitfunktionen erfolgt wieder im Anhang, siehe dazu A.4.3). Für die magnetischen Ordnungsparameter bestätigt sich ganz offensichtlich die Annahme, dass diese mit zunehmender Zwischenschichtenkopplung $|J_{\perp}| > 0$ endlich

(also positiv) werden. Davon abgesehen zeigen sich auch hier keine qualitativen Unterschiede zwischen den verwendeten Ansätzen. Für die Ermittlung der Übergangspunkte ($M(J_{\perp}^c) = 0$) wurde die schon im zweidimensionalen Fall verwendete $O_{1/2,3/2}$ -Extrapolation verwendet, die sich bei der Berechnung solcher Phasenübergänge bereits bewährt hat. Es sollte allerdings darauf hingewiesen werden, dass die unfrustrierte Natur der eingeführten Zwischenschichtenkopplung J_{\perp} einen *Odd-Even-Effekt* zur Folge hat (siehe Abschnitt 2.3.6). Dieser macht es notwendig, sich bei der Berechnung der Extrapolationen auf die geraden LSUB m -Approximationen zu beschränken. Es zeigte sich aber, dass dieser Effekt erst ab $J_{\perp} > 1$ zu, zunächst leichten aber zunehmend stärker werdenden, „Verfälschungen“ der Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters führt (siehe die Abbildungen A.14 und A.15 im Anhang A.4.3). Für $J_{\perp} < 1$ (einschließlich der gesamten ferromagnetischen Region: $J_{\perp} < 0$) ist der Effekt aber gering genug, um durch die zusätzliche Berücksichtigung der ungeraden Näherungsstufen, auf die niedrigen und deutlich schlechteren Approximationen unterhalb der Näherungsstufe LSUB4 verzichten zu können. Zusätzlich zeigte sich auch, dass die eigentlich nur interessierenden Nullstellen der Extrapolationen so deutlich im unproblematischen Bereich liegen, dass der *Odd-Even-Effekt* praktisch vernachlässigt werden kann.

Bei der konkreten Bestimmung dieser Phasengrenzen zeigten sich Unterschiede zwischen den beiden Modellzuständen. Während der Ordnungsparameter für den „ $q = 0$ “-Zustand innerhalb der Region: $-0.154 \leq J_{\perp} \leq 0.151$ verschwindet, ergibt sich bei der Verwendung des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustands eine deutlich kleinere ungeordnete Region: $-0.100 \leq J_{\perp} \leq 0.102$.

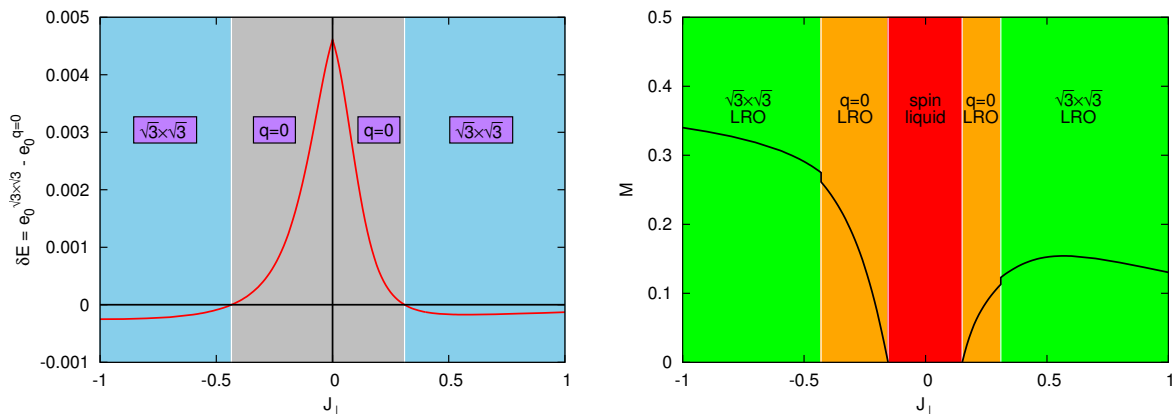


Abbildung 3.15.: Energiedifferenzen der auf dem „ $q = 0$ “-Modellzustand und dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand basierenden CCM-Grundzustandsansätze (**links**) und das sich unter Einbeziehung des magnetischen Ordnungsparameters ergebende Phasendiagramm (**rechts**).

Ein anschaulicheres Bild ergibt sich, wenn man die Energiedifferenzen betrachtet und die daraus abgeleitete Zustandselektion mit den sich aus dem Verschwinden des magnetischen Ordnungsparameters ergebenden Phasenübergangspunkten verknüpft (siehe Abbildung

3.15). An der Stelle $J_{\perp} = 0$ zeigt sich zunächst die schon vom zweidimensionalen Modell bekannte energetische Selektion des „ $q = 0$ “-Modellzustands. Dies muss natürlich so sein, da das Modell an diesem Punkt völlig entkoppelte zweidimensionale KHAFM-Ebenen beschreibt. Des Weiteren bestätigte sich die naheliegende Vermutung, dass diese Selektion auch in einer Umgebung dieses Punktes erhalten bleibt, diese Region konnte auf der Basis der $O_{2,4}$ -Extrapolation auf: $-0.435 \leq J_{\perp} \leq 0.310$ eingegrenzt werden. Außerhalb dieses Bereiches weist der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ansatz wieder durchgehend die niedrigere Energie auf. Diese Selektion ist allerdings nur dann mit der Existenz einer langreichweitig, magnetisch geordneten Phase assoziiert, wenn der magnetische Ordnungsparameter in dem Gebiet endlich ist. Letzteres ist wie bereits gezeigt auch tatsächlich nicht auf dem gesamten „ $q = 0$ “-Bereich gegeben (für $J_{\perp} = 0$ und $s \leq 1$ war dies ebenfalls nicht der Fall). Die eigentliche Besonderheit ist aber gerade, dass der Ordnungsparameter noch innerhalb dieses Bereiches endlich wird, wie die zweite Abbildung (3.15 rechts) deutlich macht und nicht erst innerhalb der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Region, die sich ja in den bisherigen Untersuchungen zum KHAFM unter den langreichweitig geordneten Phasen immer gegenüber der „ $q = 0$ “-Phase durchsetzen konnte. Schlussendlich gibt es aber dennoch sowohl auf der ferro- sowie der antiferromagnetischen Seite jeweils einen Phasenübergang mindestens erster Ordnung (die beiden geordneten Phasen zeichnen sich durch unterschiedliche Symmetrien aus) in eine „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-geordnete Phase.

3.3.3. Zusammenfassung

Mit dem Ziel der Untersuchung des Einflusses einer zusätzlichen Bindung auf die Stabilität der im vorherigen Abschnitt abgegrenzten Grundzustandsphasen des zweidimensionalen KHAFM, wurde das zugrunde liegende Heisenberg-Modell auf ein dreidimensionales, geschichtetes Modell erweitert. Auf der Basis von aus dem Zweidimensionalen abgeleiteten Modellzuständen wurden die Grundzustandsenergien und die magnetischen Ordnungsparameter sowohl für den Bereich antiferromagnetischer als auch ferromagnetischer Zwischenschichtenkopplungen bis zur CCM-Näherungsstufe LSUB8 berechnet und extrapoliert. Die Ergebnisse geben deutliche Hinweise darauf, dass die bereits im Zweidimensionalen gefundene ungeordnete Phase (wahrscheinlich eine Spinflüssigkeit mit Gap) innerhalb der Grenzen: $-0.154 \leq J_{\perp} \leq 0.151$ Bestand hat, dann aber stetig in zwei langreichweitig geordnete „ $q = 0$ “-Zwischenphasen übergeht, welche dann wiederum nach Phasenübergängen erster Ordnung an den Stellen $J_{\perp} = -0.435$ und $J_{\perp} = 0.310$ durch ebenfalls langreichweitig geordnete „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Phasen abgelöst werden. Das Besondere an diesem Resultat ist, dass damit erstmals Hinweise auf eine langreichweitig, magnetisch geordnete „ $q = 0$ “-Phase für den KHAFM gefunden wurden. Eine Veröffentlichung der hier vorgestellten Resultate erfolgte außerdem in [74].

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

Die in diesem Kapitel untersuchten Modelle haben allesamt die Gemeinsamkeit, dass sie sogenannte dimerisierte bzw. „Valence-Bond Solid“-Phasen (VBS) im Grundzustand aufweisen. Solche Phasen sind durch die Verschränkung direkt benachbarter Spins zu Singulett-Paaren auf makroskopischen Skalen gekennzeichnet [75, 76]. Da Singulett-Paare kein magnetisches Moment tragen, sind diese Phasen nicht magnetisch. Man kann aber dennoch von einer Fernordnung (einer sogenannten „VBS-Ordnung“) sprechen und dafür einen angepassten Ordnungsparameter definieren. Für die Untersuchung solcher Modelle wurde im Vorfeld dieser Arbeit eigenständig ein neues CCM-Programm entwickelt (im Folgenden DCCM genannt), dessen Konzeption von vornherein auf die Verwendung von Singulett-Produktzuständen als Modellzustände innerhalb des CCM-typischen Grundzustandsansatzes ausgerichtet war; eine Möglichkeit, die das bei nahezu allen bisherigen veröffentlichten Anwendungen der CCM ausschließlich verwendete Standardprogramm CCCM nicht bietet. Der Schwerpunkt der in diesem Kapitel vorgestellten Untersuchungen liegt daher auch insbesondere auf dem Vergleich mit anderen Methoden und generell bereits bekannten Resultaten, also auf der Überprüfung der Konzeption und der Implementierung dieser neuen Methode.

4.1. Das eindimensionale antiferromagnetische

J_1 - J_2 -Modell für $s = 1/2$

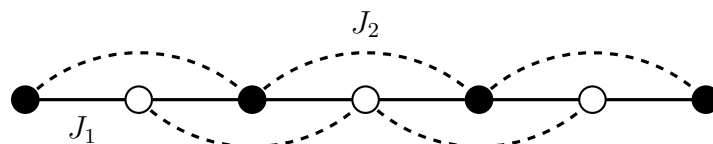


Abbildung 4.1.: Darstellung des eindimensionalen J_1 - J_2 -Modells auf der Kette.

Das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell (auch: „Heisenberg-Modell der linearen Kette mit Berücksichtigung der Wechselwirkungen zwischen nächsten und übernächsten Nachbarn“)

gehört zu den einfachsten und daher auch viel untersuchten Modellen für frustrierte Quantenspinsysteme überhaupt [27, 28, 77–87]. Es beschreibt ein eindimensionales Gitter (also eine Kette) von Spinträgern, die mit ihren nächsten und übernächsten Nachbarn wechselwirken. Der Hamiltonoperator des Modells mit N Gitterplätzen sieht folgendermaßen aus:

$$\hat{H} = \sum_{i=1}^N \left(J_1 \hat{S}_i \hat{S}_{i+1} + J_2 \hat{S}_i \hat{S}_{i+2} \right), \quad \text{wobei gilt } \hat{S}_{N+1} = \hat{S}_1. \quad (4.1)$$

Die Untersuchung dieses Modells mittels der DCCM ist aus mehreren Gründen interessant, der wichtigste ist, dass es aufgrund der Einfachheit des Modells möglich ist, in relativ kurzer Zeit und mit geringem Ressourcenbedarf sehr hohe Näherungsstufen und damit aussagekräftige Resultate zu berechnen.¹ Ein weiterer wichtiger Punkt ist, dass in zwei Spezialfällen des Modells **exakte** Vergleichsresultate zur Verfügung stehen, an denen sich die Qualität der DCCM messen lässt. Für $J_2 = 0$, d.h. bei ausschließlicher Berücksichtigung der Wechselwirkungen zwischen nächsten Nachbarn, kann das Modell durch den bekannten „Bethe-Ansatz“ analytisch gelöst werden [88]. Im Spezialfall $J_2 = J_1/2$ spricht man auch vom sogenannten „Majumdar-Ghosh-Modell“ (MG), dessen Grundzustand (ein reiner Singulett-Produktzustand) ebenfalls bekannt ist [25, 75, 89].

Diese Arbeit beschränkt sich auf den Parameterbereich, in dem auch die interessanten Spezialfälle liegen, d.h. auf das rein antiferromagnetische Modell ($J_1 > 0$ und $J_2 \geq 0$); es wird sich außerdem auf den Fall $J_1 = 1$ beschränkt, der bis auf eine Multiplikation mit einer Zahl äquivalent zu (4.1) ist:

$$\hat{H}(J_1, J_2) = J_1 \sum_{i=1}^N \left(\hat{S}_i \hat{S}_{i+1} + \frac{J_2}{J_1} \hat{S}_i \hat{S}_{i+2} \right) = J_1 \hat{H}(1, J_2/J_1) = J_1 \hat{H}(1, J_2').$$

4.1.1. Bekannte Grundzustandsphasen und die Auswahl geeigneter Modellzustände

Das klassische Modell

In vielen Fällen lässt sich die Wahl eines geeigneten Modellzustands durch die Kenntnis des klassischen Grundzustands motivieren. Der Ausgangspunkt für seine Berechnung ist die Hamiltonfunktion des eindimensionalen J_1 - J_2 -Modells, die sich einfach aus dem Hamiltonoperator (4.1) durch die Interpretation des Skalarprodukts als Maß für den Winkel zwischen den beteiligten Spinvektoren

$$\hat{S}_i \hat{S}_j \rightarrow \vec{S}_i \vec{S}_j = s^2 \cos(\alpha_{ij})$$

¹In höheren Dimensionen ist das CCM-Gleichungssystem deutlich größer, da es viel mehr Gitterplatz-Konfigurationen zu berücksichtigen gibt.

ergibt. Für $s = 1/2$ lassen sich im klassischen antiferromagnetischen Modell zwei Fälle unterscheiden. Im Fall $J_1 = 1$ und $0 \leq J_2 < \infty$ kann man zeigen, dass die Winkel α zwischen sämtlichen nächsten Nachbarn identisch sein müssen. Damit folgt für die Grundzustandsenergie des klassischen Systems

$$E(\alpha) = N \left(\frac{1}{4} \cos(\alpha) + \frac{J_2}{4} \cos(2\alpha) \right). \quad (4.2)$$

Die Minimierung dieser Energie bezüglich des Winkels α führt schließlich auf den folgenden Ausdruck:

$$0 = -\frac{1}{4} \sin(\alpha) - \frac{J_2}{2} \sin(2\alpha) \quad \Rightarrow \quad \alpha = \begin{cases} \arccos\left(-\frac{1}{4J_2}\right) & , \text{ für } J_2 \geq \frac{1}{4} \\ \pi & , \text{ sonst.} \end{cases}$$

Im Parameterbereich $0 \leq J_2 \leq \frac{1}{4}$ ist der klassische Grundzustand also néelgeordnet, darüber hinaus gibt es einen stetigen Übergang (sowohl die Energie als auch den Winkel betreffend) in eine spiralartige Phase. Im Grenzfall $J_2 \rightarrow \infty$ kann der Spiralwinkel schließlich nur noch die Werte $\alpha = \frac{\pi}{2} + n\pi$ ($n \in \mathbb{N}_0$) annehmen, was gleichbedeutend mit einem Zustand zweier néelgeordneter Ketten ist, deren Spins senkrecht zueinander orientiert sind. Dies ist allerdings nur ein möglicher Zustand des an diesem Punkt hochgradig entarteten Systems. Die vollständige Lösung erhält man, wenn man von vornherein vom Grenzfall $J_1/J_2 \rightarrow 0$ ausgeht. In diesem Fall hängt die Grundzustandsenergie nur noch vom Winkel zwischen den übernächsten Nachbarn γ ab:

$$E(\gamma) \propto \frac{N}{4} \cos(\gamma), \quad (4.3)$$

was sofort verdeutlicht, dass die néelgeordneten J_2 -Ketten sogar vollständig entkoppeln.

Das quantenmechanische Modell

Durch eine Vielzahl an Untersuchungen stellte sich allerdings heraus, dass das Quantenmodell wenig mit diesem klassischen Bild gemeinsam hat. Zunächst zeigte sich, dass die implizierte Néelphase dort überhaupt nicht existiert; es gilt inzwischen vielmehr als gesichert, dass der Grundzustand für $J_2 \geq 0$ magnetisch ungeordnet ist und bis ungefähr $J_2 \approx 0.2411$ eine *gaplose Spinflüssigkeit* ist [78, 83, 88]. Über diesen kritischen Punkt hinaus öffnet sich das Spingap und das System geht in einen zweifach entarteten dimerisierten Zustand über [28, 81], der an der Stelle $J_2 = 0.5$ (dem bereits erwähnten MG-Grenzfall) einem exakten Singulett-Produktzustand entspricht [25, 75, 89]. Erst ab $J_2 \approx 0.68$ gibt es Hinweise auf spiralartige Korrelationen bzw. auf die mögliche Existenz eines spiralartigen Grundzustands [84, 87].

Auswahl geeigneter Modellzustände

Eine direkte Beschreibung magnetisch nicht ferneordneter Phasen im Allgemeinen und von Spinflüssigkeiten im Speziellen ist mit der CCM nicht möglich, dennoch gibt es bereits eine ganze Reihe von CCM-Untersuchungen, die sich mit dem Modell der eindimensionalen J_1 - J_2 -Kette beschäftigen [80, 85–87]. In diesen Arbeiten konnte gezeigt werden, dass die Verwendung eines aus dem klassischen Néelzustand abgeleiteten Modellzustands:

$$|\Phi_0\rangle_{\text{Néel}} = |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow \cdots\rangle := |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \cdots, \quad (4.4)$$

für kleinere Werte der Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn ($J_2 < 0.5$), durchaus zur Beschreibung bestimmter Eigenschaften (wie der Grundzustandsenergie) geeignet ist. Auf der Basis dieses Néelzustandes gelang es, durch eine aufwendige Manipulation bestimmter Korrelationskoeffizienten im Kontext der CCCM, sogar den bei $J_2 = 0.5$ vorliegenden Singulett-Produktzustand exakt zu beschreiben und dessen Anwendungsbereich damit bis auf $J_2 < 0.6$ zu erweitern [86].

Über diesen Punkt hinaus war es nur durch die Verwendung eines spiralartigen Zustandes möglich, der ebenfalls an den klassischen Zustand angelehnt ist, weitere und vor allem physikalisch sinnvolle Resultate zu erzielen. In die konkrete Darstellung dieses Zustandes geht der Spiralwinkel α als Parameter ein, dieser kann durchaus deutlich von den klassischen Werten abweichen und wird dann auch als „Quantenwinkel“ bezeichnet:

$$|\Phi_0\rangle_{\text{Spiral},\alpha} = |\uparrow\rangle \otimes \hat{U}(\alpha) |\uparrow\rangle \otimes \hat{U}(2\alpha) |\uparrow\rangle \otimes \hat{U}(3\alpha) |\uparrow\rangle \otimes \cdots. \quad (4.5)$$

Die hier eingeführte Transformation $\hat{U}(\alpha)$ entspricht einer Rotation im Einteilchen-Hilbertraum um den Winkel α (siehe: *lokale Koordinatentransformation* in Abschnitt 2.3.2). Wie auch im klassischen Fall, ist der Néelzustand im Spiralzustand als Grenzfall enthalten:

$$|\Phi_0\rangle_{\text{Spiral},\pi} = |\Phi_0\rangle_{\text{Néel}}.$$

Durch die bereits in der Einleitung angesprochene Neuentwicklung einer CCM-Implementierung (der DCCM), ist es nun außerdem möglich, den im MG-Spezialfall vorliegenden Singulett-Grundzustand direkt als Modellzustand zu wählen

$$|\Phi_0\rangle_{\text{VB}} = |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \cdots; \quad |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \quad (4.6)$$

auf dessen Verwendung auch der Schwerpunkt dieses Kapitels liegt. Die konkrete Zielstellung der im Folgenden beschriebenen Untersuchungen liegt vor allem darin, die dabei gewonnenen neuen DCCM-Resultate mit denen anderer Methoden und insbesondere denen der CCCM zu vergleichen. Dafür wird es im Folgenden nötig sein, auch die mit dem Néel-

und dem Spiralzustand berechneten CCCM-Resultate ausführlicher darzustellen, es muss an dieser Stelle daher nochmals deutlich gemacht werden, dass die dafür verwendeten Daten den entsprechenden Veröffentlichungen entnommen wurden, also bereits beim Erstellen dieser Arbeit vorlagen.² Für einen tieferen Einblick in die Anwendung der CCCM auf dieses Modell muss allerdings wieder auf die bereits zitierten Arbeiten verwiesen werden.

4.1.2. Die Grundzustandsenergie

Die Grundzustandsenergie der dimerisierten Phase konnte mit der DCCM auf der Basis des angesprochenen Singulett-Modellzustands bis zur 9. Ordnung der neu eingeführten DLSUB m -Näherungsstufe (siehe Abschnitt 2.4.6) berechnet werden. Für eine Approximation des Grenzfalls ($m \rightarrow \infty$) wurden die Resultate basierend auf den folgenden beiden Ansätzen extrapoliert (siehe Abschnitt 2.3.6):

$$\begin{aligned} E_{0,a}/N(m) &:= O_{\text{ex}}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{a_2} \\ E_{0,b}/N(m) &:= O_{2,4}(m) = b_0 + b_1 \left(\frac{1}{m}\right)^2 + b_2 \left(\frac{1}{m}\right)^4. \end{aligned} \tag{4.7}$$

Eine Diskussion ihrer Eignung für das vorliegende Modell erfolgt in Abschnitt 4.1.2. Eine grafische Darstellung der Ergebnisse im Bereich: $0 \leq J_2 \leq 1$ findet man in Abbildung 4.2. Hervorzuheben ist zunächst, dass die DCCM im gesamten untersuchten Parameterbereich sehr gut mit den Ergebnissen einer exakten Diagonalisierung basierend auf einer aus 36 Gitterplätzen bestehenden Elementarzelle übereinstimmt³. Insbesondere werden die exakten Grundzustandsenergien aus der Bethe-Lösung und im Spezialfall des Majumdar-Ghosh-Modells sehr gut, im zweiten Fall sogar exakt, reproduziert (siehe Tabelle 4.1). Letzteres muss natürlich so sein, weil es mit der DCCM möglich war, den bekannten Grundzustand als Modellzustand zu wählen, weshalb alle Approximationsstufen bereits das exakte Resultat liefern. Es wird außerdem deutlich, dass die genäherten Energien sehr schnell konvergieren und das sogar im Bereich der klassischen Néelphase ($J_2 \leq \frac{1}{4}$), in welcher der Modellzustand in direkter „Konkurrenz“ zum Néel-Modellzustand der CCCM steht.

Für einen genaueren Vergleich beider Methoden werden nun zunächst die CCCM-Resultate für den Spiral- und den Néelzustand näher betrachtet. Bei ihrer Neuberechnung wurden dabei, je nach dem verwendeten Modellzustand und der verwendeten Lösungsmethode, alle geraden Approximationen (zur Vermeidung des *Odd-Even-Effektes*, siehe

²Da es für die Erzeugung bestimmter Darstellungen, Abbildungen etc. nötig war einige Daten nachzurechnen, wurden grundsätzlich alle in dieser Arbeit verwendeten CCM-Fremdresultate neu berechnet. In keinem Fall kam es dabei zu Abweichungen von den Literaturdaten.

³Die Daten wurde mittels des frei verfügbaren von J. Schulenburg entwickelten Programms *Spinpack* berechnet [90].

Tabelle 4.1.: Zusammenfassung der Grundzustandsresultate für das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell basierend auf dem Néel- und dem Singulett-Modellzustand. Hierbei steht e_0 für die Grundzustandsenergie pro Gitterplatz, M für den magnetischen Ordnungsparameter und D für den Dimer-Ordnungsparameter.

Resultat	e_0	D/M
$J_2 = 0$		
Singulett DLSUB2	-0.426777	0.451184
Singulett DLSUB3	-0.437056	0.317272
Singulett DLSUB4	-0.440048	0.251299
Singulett DLSUB5	-0.441273	0.212217
Singulett DLSUB6	-0.441891	0.186032
Singulett DLSUB7	-0.442245	0.167023
Singulett DLSUB8	-0.442467	0.152454
Singulett DLSUB9	-0.442616	0.140850
Extrapoliert: $O_{\text{ex}} (3 - 9)$	-0.443036	0.048810
Extrapoliert: $O_{\text{ex}} (5 - 9)$	-0.443101	0.033660
Extrapoliert: $O_{2,4} (3 - 9)$	-0.443170	0.109815
Extrapoliert: $O_{2,4} (5 - 9)$	-0.443153	0.094676
Extrapoliert: $O_{1,2} (3 - 9)$	—	0.051460
Extrapoliert: $O_{1,2} (5 - 9)$	—	0.044089
Extrapoliert: $O_{1/2,3/2} (3 - 9)$	—	< 0
Extrapoliert: $O_{1/2,3/2} (5 - 9)$	—	< 0
Extrapoliert: $O_{1/2} (3 - 9)$	—	< 0
Extrapoliert: $O_{1/2} (5 - 9)$	—	< 0
Néel LSUB6	-0.440024	0.207885
Néel LSUB8	-0.441366	0.182972
Néel LSUB10	-0.441995	0.165624
Néel LSUB12	-0.442340	0.152627
Néel LSUB14	-0.442550	0.142405
Néel LSUB16	-0.442688	0.134084
Extrapoliert: $O_{2,4} (6 - 16)$	-0.443134	—
Extrapoliert: $O_{1/2,3/2} (6 - 16)$	—	0.010308
Exakt (Bethe)	-0.44315	—
$J_2 = 0.5$		
Singulett DLSUB m ($m = 2 - 9$)	-0.375	0.75
Extrapoliert	-0.375	0.75
Néel LSUB6	-0.372673	0.068928
Néel LSUB8	-0.374086	0.020567
Néel LSUB10	-0.374840	< 0
Néel LSUB12	-0.375181	< 0
Néel LSUB14	-0.375190	< 0
Néel LSUB16	-0.374997	0.001223
Extrapoliert: $O_{2,4} (6 - 16)$	-0.375392	—
Exakt (MG)	-0.375	0.75

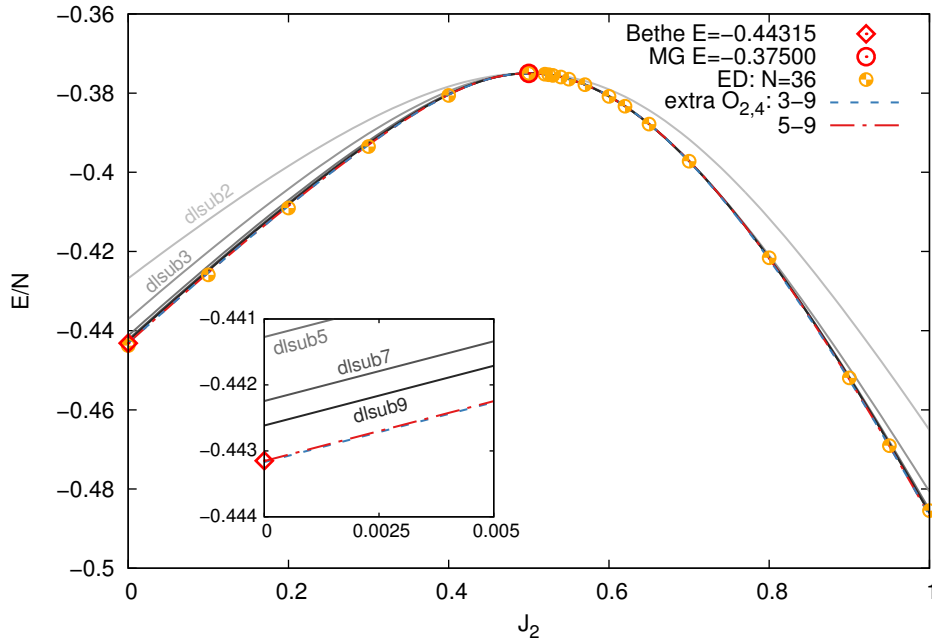


Abbildung 4.2.: Approximierte sowie extrapolierte Grundzustandsenergie des J_1 - J_2 -Modells, berechnet mit der DCCM, sowie die bekannten exakten Werte und den Ergebnissen einer exakten Diagonalisierung basierend auf einer Elementarzelle mit 36 Gitterplätzen [90].

Abschnitt 2.3.6 und [19]) bis zur Stufe LSUB16 berechnet und ebenfalls unter Verwendung des Standardschemas für die Grundzustandsenergie $O_{2,4}$, das auch für den Singulett-Modellzustand verwendet wurde, extrapoliert. Die numerische Lösung der CCM-Gleichungssysteme erfolgte dabei zunächst mit dem Verfahren der **Direkten Iteration**. Bei der Verwendung des Néelzustandes zeigte sich, dass das Verfahren zwar für $J_2 \geq 0$ zunächst konvergiert, mit steigender Näherungsstufe aber nur noch für eine immer kleiner werdende Region um $J_2 = 0$ und bei LSUB16 schließlich nur noch an der Stelle $J_2 = 0$ überhaupt Resultate liefern kann (siehe dazu Abbildung 4.3 links). Unter Verwendung des alternativen **Newton-Raphson** Lösungsverfahrens, war es allerdings möglich diese Konvergenzprobleme bis einschließlich der LSUB16-Approximationen teilweise zu umgehen und somit im gesamten Bereich: $0 \leq J_2 \leq 0.5$ Resultate zu erhalten, die sehr gut mit den bekannten Daten übereinstimmen (eine Übersicht findet sich in Tabelle 4.1). Die über den Punkt $J_2 = 0.5$ hinaus berechneten Resultate, stellten sich allerdings als unphysikalisch heraus und mussten verworfen werden, da sie offensichtliche Sprünge und Unstetigkeiten aufwiesen und vor allem deutlich zu niedrig und nicht mit den Literaturdaten vereinbar waren (siehe Abbildung 4.3 rechts).

Die Verwendung des spiralartigen Modellzustands ist aufgrund des offenen und variationell zu optimierenden Parameters α deutlich aufwendiger, weshalb die größte hierbei bestimmte Approximationsstufe nur bei LSUB12 liegt. Grundsätzlich ist es schwierig eindeutige Kriterien für die definitive Eignung eines Modellzustands bzw. die physikalische

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

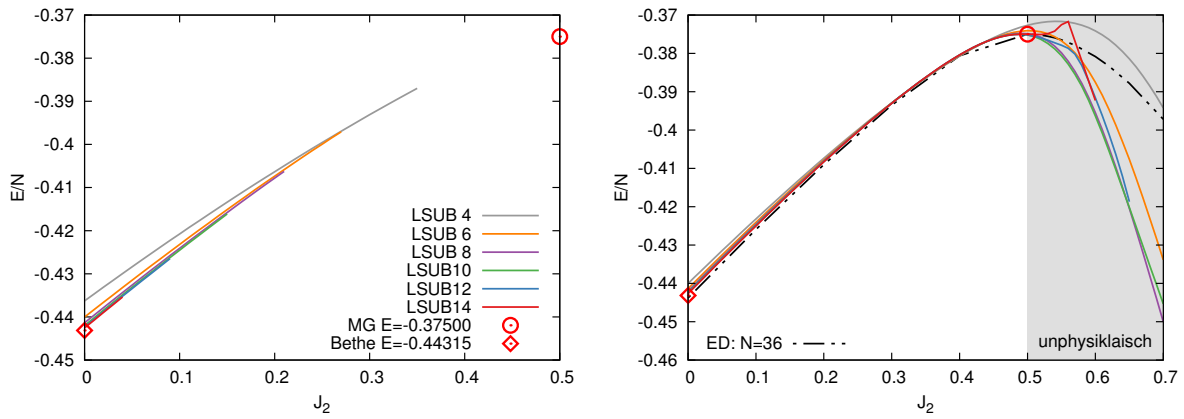


Abbildung 4.3.: Approximierte CCCM-Grundzustandsenergien des eindimensionalen J_1 - J_2 -Modells basierend auf dem néelgeordneten Modellzustand, berechnet mittels *Direkter Iteration* (**links**) und dem *Newton-Raphson-Verfahren* (**rechts**).

Korrektheit der mit Diesem ermittelten Resultate zu finden. Mit dem Spiralzustand lässt sich aber zumindest eine notwendige Bedingung für die Eignung des im Vorfeld verwendeten Néelzustandes überprüfen. Da der Néelzustand ein Spezialfall des Spiralzustands ist, sollte es einen Wertebereich der Wechselwirkungsstärke J_2 geben, in welchem die mit beiden Modellzuständen ermittelten Resultate übereinstimmen. Insbesondere sollte der Spiralwinkel den Wert $\alpha = \pi$ annehmen.

An dieser Stelle kann bereits vorweggenommen werden, dass dies prinzipiell auch der Fall ist. Es zeigte sich aber, dass die Lage des Übergangspunkts insbesondere davon abhängt welches numerische Lösungsverfahren verwendet wird.

Unphysikalische Lösungen bei Verwendung des Spiralzustands

Wenn die *Direkte Iteration* und das *Newton-Raphson-Verfahren* ohne gezielte Manipulation oder Abweichung von ihren jeweiligen Standardstartwerten unterschiedliche Lösungen für das CCM-Gleichungssystem liefern, ist dies in der Regel ein Hinweis auf eine problematische Region, in der unter Umständen keine der Lösungen physikalisch relevant ist. Die eigentliche Ursache für das Auftreten konkurrierender bzw. widersprüchlicher Lösungen, ist in diesem Fall allerdings auf die Existenz verschiedener lokaler Minima der approximierten Grundzustandsenergie des Spiralzustands $E(\alpha)$ zurückzuführen. Im Kontext der CCCM ist der Spiralzustand eigentlich eine Schar von Zuständen die durch den Spiralwinkel parametrisiert wird und aus der schlussendlich der Zustand ausgewählt wird, der die approximierte Grundzustandsenergie minimiert. Im hier vorliegenden Fall zeigt sich nun, dass der Néelzustand ($\alpha = \pi$) ein ausgeprägtes lokales Energieminimum dieser Schar darstellt, was im Zusammenhang mit der bereits angesprochenen unphysikalisch niedrigen Energie für $J_2 > 0.5$ problematisch ist. Die bisherige Erfahrung mit der CCCM zeigt allerdings, dass es beim Auftreten unphysikalischer Lösungen für parametrisierte

Modellzustände häufig möglich ist, eine lokal numerisch stabile und physikalisch sinnvollere Lösung durch die Anpassung der Startwerte zu finden (oder wie in diesem Fall, durch die Wahl eines alternativen Lösungsverfahrens). Eine Darstellung der beiden auf diese Weise ermittelten Lösungen für die Grundzustandsenergie und den Quantenwinkel α ist in Abbildung 4.4 zu finden. Es wird zunächst deutlich, dass es eine Region $J_2^s \leq J_2 \leq 1$

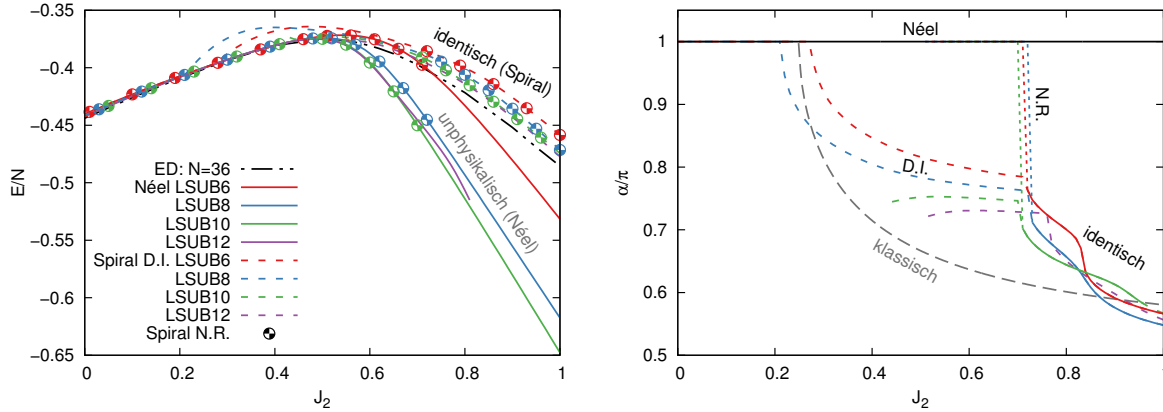


Abbildung 4.4.: (links) Grundzustandsenergien für verschiedene Lösungen der CCM-Gleichungssysteme basierend auf dem Néel- und dem spiralartigen Modellzustand. (rechts) Die mit der Direkten Iteration (D.I.) und dem Newton-Raphson-Verfahren (N.R.) bestimmten zugehörigen Spiralwinkel.

gibt, in der beide Lösungen für den Spiralzustand identisch sind und auch physikalisch sinnvolle Resultate für die Grundzustandsenergie liefern; abgesehen von einer schwachen Abhängigkeit von der verwendeten Näherungsstufe kann die kritische Kopplungsstärke auf ungefähr $J_2^s = 0.72 \pm 0.01$ bestimmt werden. Die Abweichung dieses Resultats vom in [87] ermittelten Wert von $J_2^s = 0.68$, ist auf die unterschiedlichen betrachteten Näherungsstufen zurückzuführen. Ab diesem kritischen Punkt beginnen die Lösungen dann deutlich voneinander abzuweichen. Während die mittels des *Newton-Raphson-Verfahrens* bestimmte Lösung sprunghaft in die bereits mit dem Néelzustand ermittelte unphysikalische Lösung übergeht und daher direkt verworfen werden kann, macht die Betrachtung der Grundzustandsenergie deutlich, dass die mit der *Direkten Iteration* bestimmte Lösung zunächst durchaus als physikalisch sinnvolle Fortsetzung der unproblematischen Region rechts von J_2^s angesehen werden kann. Aber auch hier sprechen einige Punkte dafür, auch diese Lösung ab dem kritischen Punkt J_2^s zu verwerfen. So konnte bereits bei der Verwendung des Néelzustandes gezeigt werden, dass die exakte Grundzustandsenergie am MG-Punkt bereits ab LSUB6 deutlich besser approximiert werden kann, als dies hier mit dem Spiralzustand bei LSUB10 der Fall ist. Es zeigt sich aber auch, dass der Quantenwinkel an dieser Stelle noch deutlich vom Wert für den Néelzustand abweicht, der eigentliche Übergang vollzieht sich in diesen Näherungsstufen erst bei deutlich niedrigeren Werten von J_2 , weshalb die approximierte Grundzustandsenergie auch im weiteren Verlauf deutlich über der des Néelzustandes liegt. In den Näherungsstufen LSUB10 und LSUB12 zeigt sich,

dass das Verfahren mit zunehmender Näherungsstufe immer schlechter konvergiert und es deutet sich an, dass es in noch höheren Näherungsstufen womöglich gar keine Lösungen mehr unterhalb des kritischen Punktes J_2^s geben wird.

Eine mögliche physikalische Ursache für die beschriebenen Probleme könnte darin liegen, dass es in der problematischen Region gar keine Spiralphase gibt und der Spiralzustand daher gar nicht als Modellzustand geeignet ist. Es ist aber auch möglich, dass gerade die Koexistenz mit der ebenfalls vorliegenden dimerisierten Phase die numerischen Lösungsverfahren überfordert. In beiden Fällen ist es sinnvoll, sich bei der Verwendung der Resultate für den Spiralzustand auf den Bereich $J_2 \geq J_2^s$ zu beschränken, was im Folgenden auch getan wird.

Im direkten Vergleich der extrapolierten CCCM- und DCCM-Resultate zeigt sich, dass beide Methoden im Bereich $0 \leq J_2 \leq 0.5$ nahezu identische Resultate liefern (siehe Abbildung 4.5a). Die Energiedifferenzen zwischen dem Singulett- und dem Néel-Modellzustand liegen praktisch durchgehend unterhalb von 10^{-4} (siehe Abb. 4.5b) und damit bereits in der Größenordnung des Fehlers, der bei der Extrapolation der Grundzustandsenergie eingeräumt werden muss. Deutliche Abweichungen gibt es nur in der Nähe des MG-Punktes ($J_2 = 0.5$), die aber durch die systematischen numerischen Unsicherheiten der CCCM erklärt werden können, da die damit implizierte energetische Selektion des Néelzustandes im Widerspruch dazu steht, dass die DCCM bei $J_2 = 0.5$ die exakte Grundzustandsenergie reproduziert.

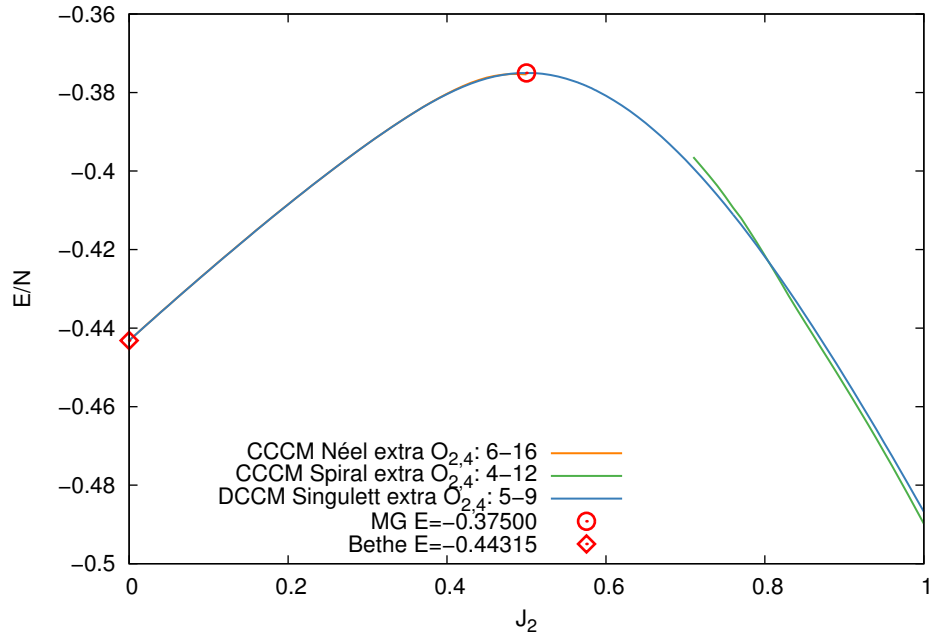
Etwas anders sieht die Situation für den Spiralzustand aus. Die Energiedifferenzen zum Singulett-Modellzustand sind hier mindestens eine Zehnerpotenz größer (siehe Abbildung 4.5c) und könnten daher durchaus bereits als ein Indiz für die Ablösung der dimerisierten Phase bei $J_2 \approx 0.81$ interpretiert werden. Aufgrund der noch fehlenden Erfahrung mit der DCCM, ist es aber nicht auszuschließen, dass die Energiedifferenzen zu CCCM-Modellzuständen deutlich fehlerbehafteter sind als es hier den Anschein macht.

Eignung der Extrapolationsansätze für die Grundzustandsenergie

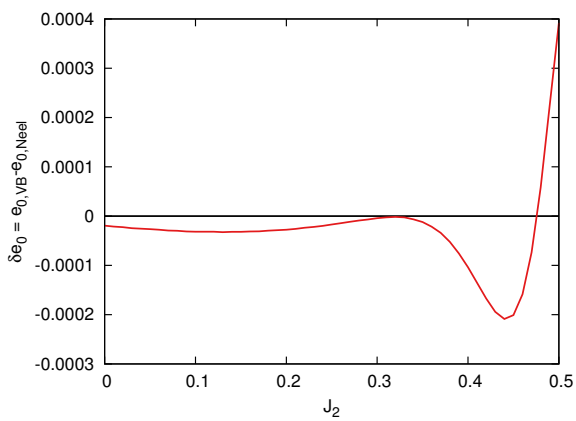
Die Berechnung einer Extrapolation in den exakten Grenzfall aus den approximierten Daten ist in der CCM ein bewährtes Vorgehen, das in der Regel zu einer deutlichen Verbesserung der Resultate führt. Es geht zurück auf die Feststellung, dass die mit der CCCM berechneten Approximationen bestimmter Systemobservabler fast immer in einem recht offensichtlichen Zusammenhang zueinander stehen (siehe Abschnitt 2.3.6).

In der CCCM erwies sich das $O_{2,4}$ -Schema für die Grundzustandsenergie im Prinzip bei allen untersuchten Modellen als das am besten geeignete. Es ist daher zu erwarten, dass dies auch in der DCCM der Fall sein könnte. Um dies zu überprüfen und damit nachträglich die Verwendung dieses Schemas im ersten Teil dieses Kapitels zu rechtfertigen, wurde es zusammen mit dem O_{ex} -Extrapolationsschema für verschiedene exemplarische

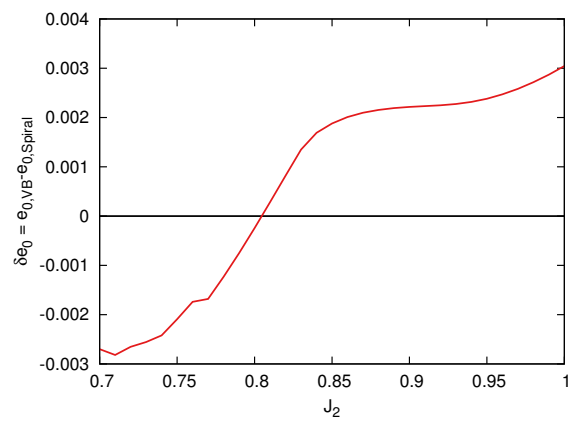
4.1. Das eindimensionale antiferromagnetische J_1 - J_2 -Modell für $s = 1/2$



(a) Grundzustandsenergieextrapolationen aller verwendeten Modellzustände.



(b) Energiedifferenz: $\delta e_0 = e_{0,VB} - e_{0,N\acute{e}el}$



(c) Energiedifferenz: $\delta e_0 = e_{0,VB} - e_{0,Spiral}$

Abbildung 4.5.: Gemeinsame Darstellung der Grundzustandsenergieergebnisse der CCCM und der DCCM.

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

Datensätze von J_2 im untersuchten Parameterbereich angewendet und die dabei ermittelten Fitfunktionen grafisch dargestellt (siehe Abbildung 4.6).

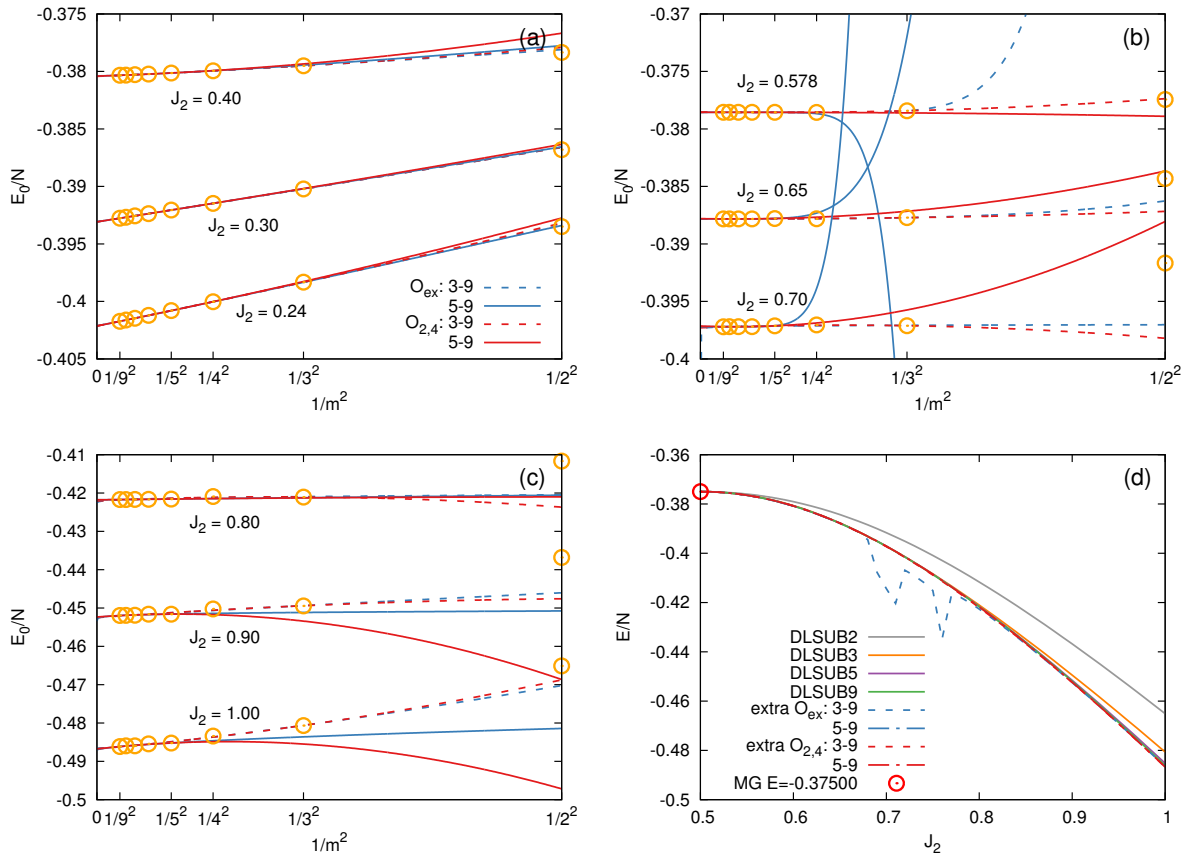


Abbildung 4.6.: (a)-(c) Vergleich der Extrapolationsvorschriften für die Grundzustandsenergie des eindimensionalen J_1 - J_2 -Modells, für verschiedene Werte von J_2 . (d) Approximierte und extrapolierte Grundzustandsenergie in Abhängigkeit von der Kopplungsstärke J_2 .

Es zeigt sich, dass auch die mit der DCCM berechneten Grundzustandsenergieapproximationen bzw. ihr funktionaler Zusammenhang: $E_0/N(m)$ in erster Ordnung hinreichend genau durch einen $1/m^2$ -Term beschrieben werden kann. Das ebenfalls getestete Extrapolationsschema mit einem variablen oder offenen Exponenten O_{ex} scheint grundsätzlich ebenfalls geeignet, da es in weiten Teilen Resultate liefert, die identisch mit denen des $O_{2,4}$ -Schemas sind, es treten hier allerdings auch abschnittsweise offensichtlich unphysikalische Unstetigkeiten auf, die das Schema nicht ohne weiteres universell, d.h. im ganzen Parameterbereich, einsetzbar machen. Mit dem $O_{2,4}$ -Schema treten keine solchen Probleme auf, weshalb man zumindest für das hier untersuchte Modell bereits sagen kann, dass es auch für die DCCM zur Extrapolation der Grundzustandsenergie geeignet zu sein scheint. Es ist aber dennoch sinnvoll dabei auf die DLSUB2-Daten zu verzichten, da sich auch hier zeigt, dass die niedrigen Approximationsstufen vom erwarteten Verlauf deutlicher abweichen.

4.1.3. Ordnungsparameter

Da es zur näheren Bestimmung der Natur des Grundzustandes nicht ausreicht nur seine Energie zu kennen, werden im nächsten Schritt nun noch die Ordnungsparameter des Modells berechnet. Für den néelgeordneten Modellzustand bzw. der mit diesem assoziierten Phase, wird der bereits im vorherigen Kapitel verwendete magnetische Ordnungsparameter (2.67):

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal,}$$

bestimmt (die Daten konnten ebenfalls der Fachliteratur entnommen werden, wurden aber auch hier wieder neu berechnet). Für die dimerisierte Phase wurde der Dimer-Ordnungsparameter (2.134):

$$D = -\frac{2}{N} \sum_{r=1}^{N/2} \left(\langle \hat{\mathbf{S}}_{r,1} \hat{\mathbf{S}}_{r,2} \rangle - \langle \hat{\mathbf{S}}_{r,2} \hat{\mathbf{S}}_{r+1,1} \rangle \right),$$

verwendet [28]. Im direkten Vergleich sind die absoluten Werte der Ordnungsparameter

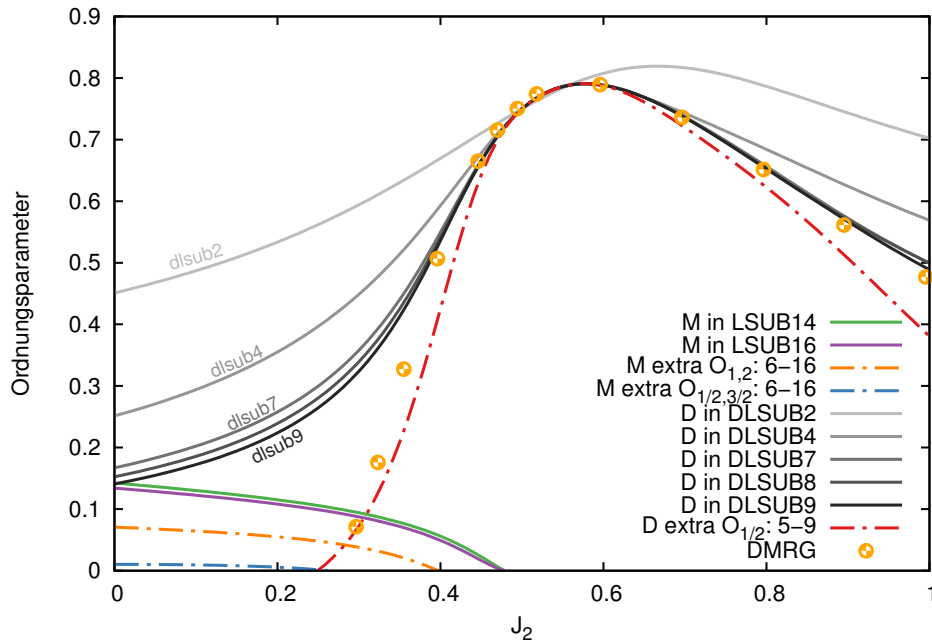


Abbildung 4.7.: Die approximierten und extrapolierten Ordnungsparameter des J_1 - J_2 -Modells auf der Kette. Dargestellt ist der magnetische Ordnungsparameter des néelartigen Modellzustands M und der Dimer-Ordnungsparameter D . Für D wurden außerdem die DMRG Daten von White und Affleck dargestellt [28].

nicht relevant, da sie zum einen deutlich verschiedene Maxima besitzen und zum anderen auch zwei völlig verschiedene physikalische Observable beschreiben. In beiden Fällen wird ihr Verschwinden aber mit der Existenz einer Phasengrenze verknüpft; um diese genauer

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

zu lokalisieren wurden die approximierten Daten wieder extrapoliert, wobei für beide Modellzustände zunächst die folgenden Zusammenhänge angesetzt wurden:

$$\begin{aligned}
 M_a(m) &:= O_{1,2}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right) + a_2 \left(\frac{1}{m}\right)^2 \\
 M_b(m) &:= O_{1/2,3/2}(m) = b_0 + b_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}} + b_2 \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{3}{2}} \\
 M_c(m) &:= O_{\text{ex}}(m) = c_0 + c_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{c_2}.
 \end{aligned} \tag{4.8}$$

Während für den magnetischen Ordnungsparameter bereits genügend Erfahrungswerte existierten, welche die Eignung der ersten beiden Schemata belegen (der Ansatz mit offenem Exponenten M_c wird hier nicht weiter untersucht), ist die Frage nach den besten Extrapolationsschema für den Dimer-Ordnungsparameter noch völlig offen. Wie bereits im Abschnitt 2.4.7 erwähnt, ist es daher nötig, die Eignung der etablierten und gegebenenfalls neu eingeführten Extrapolationsschemata für jeden neuen Anwendungsfall genau zu prüfen; eine solche Überprüfung für dieses Modell erfolgt im nächsten Abschnitt. An dieser Stelle kann aber bereits vorweggenommen werden, dass unter allen geprüften Optionen das $O_{1/2,3/2}(m)$ -Schema den bereits aus [28, 83] bekannten Übergangspunkt von der gaplosen Spinflüssigkeitsphase in die gegappte dimerisierte Phase am besten beschreibt, im Bereich $J_2 \geq 0.5$ treten allerdings technische Probleme auf, die erst durch das Weglassen des $1/m^{3/2}$ -Terms (bzw. durch das Fixieren von $b_2 = 0$) gelöst werden konnten:

$$M_b^*(m) := O_{1/2}(m) = b_0 + b_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}}. \tag{4.9}$$

Eine Darstellung der Ordnungsparameter, inklusive ihrer Extrapolationen, sowie der DMRG Daten aus [28] erfolgt in der Abbildung 4.7. Wobei an dieser Stelle nochmals betont werden sollte, dass das Modell keine magnetische Fernordnung aufweist, die dargestellten Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters können daher auch nicht als ein Hinweis auf eine solche interpretiert werden. Die durchgängig sehr niedrigen Werte der Extrapolationen sind vielmehr als eine Bestätigung der Annahme zu verstehen, dass der Néelzustand im Bereich der Spinflüssigkeitsphase als Modellzustand nicht ideal ist. Anders sieht die Situation allerdings für den Dimer-Ordnungsparameter aus; die unter Verwendung der $O_{1/2,3/2}$ - bzw. M_b -Extrapolation ermittelte Nullstelle bei $J_2 = 0.2407 \pm 0.0001$ stimmt sehr gut mit dem bereits in [28, 83] ermitteltem Übergang in die gegappte Grundzustandsphase bei $J_2 = 0.2411$ überein. Eine zusammenfassende Übersicht der Nullstellen aller dargestellten Extrapolation erfolgt in Tabelle 4.2.

Erwähnenswert ist auch, dass das Maximum des Dimer-Ordnungsparameters nicht genau am MG-Punkt liegt, sondern etwas nach rechts verschoben ist. Der Grund dafür ist, dass

Tabelle 4.2.: Nullstellen der extrapolierten Ordnungsparameter für das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell.

Resultat	J_2
Singulett $M_b(m)$: 5-9	0.2407
Singulett $M_b^*(m)$: 5-9	0.2490
Néel $M_a(m)$: 6-16	0.3973
Néel $M_b(m)$: 6-16	0.2630
DMRG [28, 83]	0.2411

der Singulett-Zustand kein Eigenzustand dieses Operators ist (siehe dazu Abschnitt 2.4.5). Die Lage des Maximums zeichnet sich dabei bereits in den Approximationen ab und liegt ab DLSUB5 durchgehend an der Stelle $J_2 = 0.578 \pm 0.001$ mit einem ab DLSUB7 nahezu gleichbleibenden Wert von $D_{\max} = 0.7906$. Unter der Extrapolation $O_{1,2}$ verschiebt sich dieses Resultat aber etwas auf die Werte: $J_2 = 0.577 \pm 0.001$ sowie $D_{\max} = 0.7909$. Dies ist auf die bereits sehr dicht liegenden Approximationen zurückzuführen, bei denen die höheren Nachkommastellen einen größeren Einfluss auf die Extrapolation haben, gleichzeitig aber deutlich fehlerbehafteter sind. Im Rahmen der durch die Parameterwahl bedingten Genauigkeit sind diese Ergebnisse durchaus vergleichbar mit den bereits bekannten DMRG Resultaten von $D_{\max} = 0.7906135$ bei $J_2 = 0.5781$ [28, 29].

Eignung der Extrapolationsansätze für den Dimer-Ordnungsparameter

Zur Überprüfung der Anwendbarkeit der in der CCM üblichen Extrapolationsschemata auf die Approximationen des Dimer-Ordnungsparameters für das J_1 - J_2 -Modell werden zunächst sämtliche in Betracht gezogenen Ansätze (die bereits im vorherigen Abschnitt genannten Formeln (4.8) und (4.9)) für alle Werte von J_2 im untersuchten Parameterbereich berechnet und grafisch dargestellt. Ein Gesamtüberblick aller berechneter Extrapolationen (siehe Abbildung 4.8) macht bereits deutlich, dass diese sich auch qualitativ teilweise recht deutlich voneinander unterscheiden. Es fällt zunächst auf, dass nur das $O_{1/2,3/2}$ -Schema (einschließlich $O_{1/2}$) überhaupt einen verschwindenden Ordnungsparameter beschreibt. Wobei der Ansatz mit einem freien Exponenten O_{ex} in der Nähe des $O_{1/2,3/2}$ Nullpunktes ebenfalls ein lokales Minimum aufweist (bei $J_2 = 0.254 \pm 0.005$), das mit einem Wert von $D \approx 0.014$ relativ klein ist und aufgrund der Konstruktion des Dimer-Ordnungsparameters durchaus auf Zustandsanteile zurückzuführen sein könnte, die völlig orthogonal zum Singulett-Produktzustand sind. Das heißt, dieser endliche Wert ist möglicherweise bereits ausreichend klein, um mit einem nicht (mehr) Vorhandensein einer Singulett- bzw. Dimerordnung verträglich zu sein.⁴ Sowohl $O_{1,2}$ - als auch das $O_{2,4}$ -Schema weisen wiederum

⁴Es ist generell noch zu klären, ob man erst bei einem Wert von $D = 0$ davon ausgehen kann, dass die dimerisierte Phase nicht mehr existent ist, oder ob dafür vielleicht schon geringe endliche Wer-

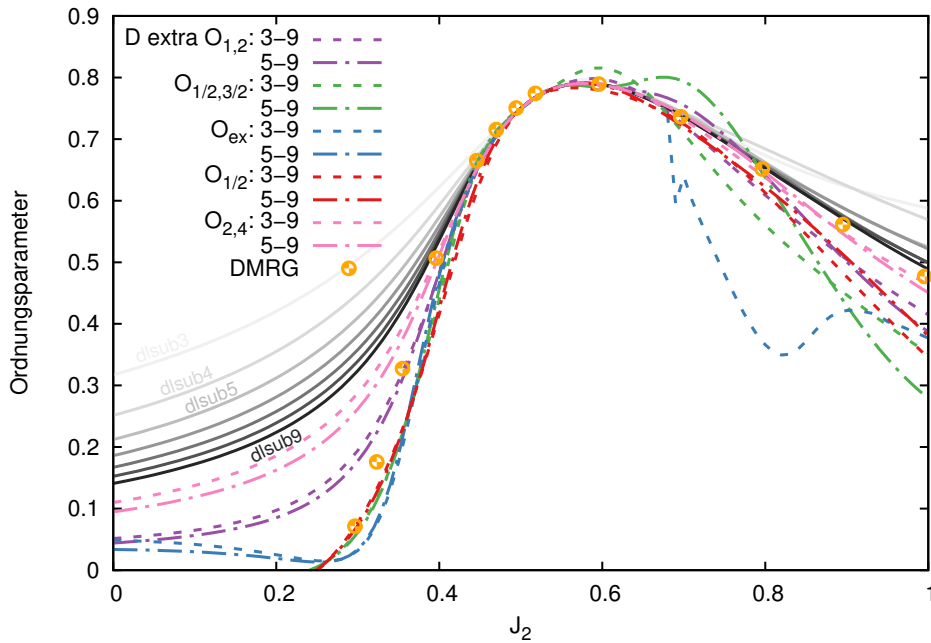


Abbildung 4.8.: Darstellung der berechneten Extrapolationen des Dimer-Ordnungsparameters für das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell, sowie der DMRG Daten aus [28].

weder einen Nullpunkt, noch ein Minimum auf und unterscheidet sich außerdem im Bereich $0.2 \lesssim J_2 \lesssim 0.3$ deutlich von den anderen Extrapolationen. Eine nähere Betrachtung einiger ausgewählter Datensätze links des Majumdar-Ghosh-Punktes ($J_2 < 0.5$) macht außerdem deutlich (siehe Abbildung 4.9, links), dass die Werte des approximierten Ordnungsparameters $D(m)$ eine nahezu perfekte $1/\sqrt{m}$ -Abhängigkeit aufweisen, dies ist sowohl die Ursache für abweichenden $O_{1,2}$ - und $O_{2,4}$ -Resultate (die Schemata sind schlichtweg nicht geeignet zur Beschreibung dieses Zusammenhangs), als auch der Grund dafür, weshalb das Nullsetzen und Fixieren des Koeffizienten b_2 im $O_{1/2,3/2}$ -Schema ebenfalls zu sehr guten und in manchen Bereichen besseren Resultaten führt.⁵

Rechts vom Majumdar-Ghosh-Punkt ($J_2 > 0.5$) ist die Situation deutlich komplexer, so weisen nun sowohl das O_{ex} - als auch das $O_{1/2,3/2}$ -Schema, die sich in der bisherigen Betrachtung als unproblematisch und geeignet erwiesen haben, Probleme auf, die ihre Anwendbarkeit in diesem Abschnitt des Parameterbereichs ausschließen. Der offene Ansatz O_{ex} weist hier ganz offensichtlich unphysikalische Unstetigkeiten und lokale Extrema auf und das $O_{1/2,3/2}$ -Schema, bzw. der verwendete Lösungsalgorithmus (siehe letzte Fußnote), überschätzt den Ordnungsparameter aufgrund der bereits sehr genauen und daher dicht beieinander liegenden Approximationen in der Nähe von $J_2 = 0.5$. Dies drückt sich

te ausreichen, wie dies beispielsweise auch beim magnetischen Ordnungsparameter in der CCCM vorkommt.

⁵Die Fits wurden alle mit dem frei verfügbarem Programm GNUplot berechnet. Der verwendete Algorithmus basiert auf der „Methode der kleinsten Quadrate“, die unter Umständen recht sensibel bezüglich der Wahl ihrer Startwerte sein kann. Das Fixieren eines ohnehin bekannten Koeffizienten kann daher durchaus zu besseren Resultaten führen.

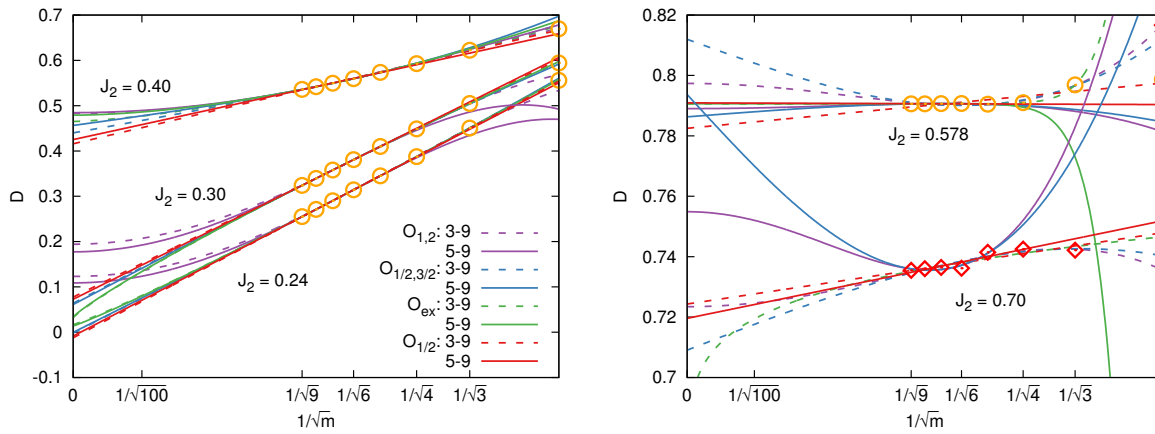


Abbildung 4.9.: Vergleich der Fitfunktionen für die approximierten Dimer-Ordnungsparameter des J_1 - J_2 -Modells, in Abhängigkeit von der Näherungsstufe $DLSUB_m$ und für verschiedene Werte von J_2 .

insbesondere darin aus, dass die Extrapolation in weiten Teilen über den Approximationen liegt, sowie in der Bildung von ungewöhnlichen lokalen Maxima. Mit zunehmendem Abstand von $J_2 = 0.5$ beginnen die Approximationen sich wieder stärker voneinander zu unterscheiden und die Extrapolationen nehmen nachvollziehbarere Werte an. Gleichzeitig kommt es aber auch zu Störungen in der vorher noch dominanten $1/\sqrt{m}$ -Abhängigkeit, insbesondere bei den niedrigsten Approximationsstufen (siehe Abbildung 4.9, rechts; man beachte aber die deutlich höhere Auflösung der y-Achse). Die Ursachen dafür sind vermutlich darauf zurückzuführen, dass der im Bereich $J_2 > 0.5$ zu erwartende Übergang von der dimerisierten Phase in die Spiralphase, über eine Region der Koexistenz beider Phasen erfolgt. Innerhalb solcher Koexistenzphasen ist die Wahl des Modellzustands nicht eindeutig und damit auch niemals ideal, weshalb niedrigere Näherungsstufen zwangsläufig weniger physikalisch relevant sind als dies in den angrenzenden Phasen der Fall ist. Dies zeigt sich auch daran, dass man durch das Weglassen der niedrigsten Approximationsstufen $DLSUB_3$ und $DLSUB_4$ ($DLSUB_2$ wurde von vornherein weggelassen) einen Teil der auftretenden Probleme kompensieren kann. Es zeigt sich aber hier wieder, dass das auf Null setzen des b_2 Koeffizienten im $O_{1/2,3/2}$ -Schema die Resultate deutlich verbessert. In der Region $J_2 \gtrsim 0.7$ gelingt die beste Annäherung an die DMRG Daten aus [28] allerdings durch den Einsatz des $O_{2,4}$ -Schemas.

Zumindest für dieses Modell kann man also festhalten, dass die Abhängigkeit des Dimer-Ordnungsparameters von seinen Approximationen $D(m)$ am besten durch den $O_{1/2}$ Ansatz (also bei ausschließlicher Berücksichtigung der $1/\sqrt{m}$ -Terme) beschrieben werden kann; da dieser als Einziger den Phasenübergang beschreiben und im restlichen Parameterbereich ebenfalls plausible Resultate liefern konnte. Das Problem der mit dem Parameter J_2 zunehmenden Abweichung von der $1/\sqrt{m}$ -Abhängigkeit, kann aufgrund der ausreichenden Menge verfügbarer Datenpunkte durch das Weglassen der Approximationsstufen $DLSUB_2$ - 4

teilweise kompensiert werden.

4.1.4. Zusammenfassung

Mit dem Ziel einer erstmaligen Überprüfung der im Rahmen dieser Arbeit entstandenen Implementierung einer neuen Variante der CCM wurde diese auf das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell angewendet. Die DCCM ähnelt dabei der in der wissenschaftlichen Praxis bereits etablierten CCCM, unterscheidet sich von dieser aber in wesentlichen Aspekten. Das betrachtete Modell zeichnet sich durch seine Einfachheit und der damit verbundenen großen Zahl bereits verfügbarer Resultate anderer Untersuchungen aus, die mit verschiedensten Methoden (einschließlich der CCCM) ermittelt wurden. Die entscheidende Neuerung der DCCM liegt in der Verwendbarkeit einer neuen Klasse von Modellzuständen, die eine bessere Untersuchbarkeit damit assoziierter Grundzustandsphasen erwarten lässt. Damit sind die sogenannten dimerisierten Phasen gemeint, die durch die Bildung von Singulettts auf Paaren benachbarter Gitterplätze auf dem gesamten Gitter charakterisiert sind. Vom eindimensionalen J_1 - J_2 -Modell ist bereits bekannt, dass es an der Stelle $J_2 = J_1/2$ im Grundzustand in genau so einem Zustand vorliegt, was die Anwendung der DCCM geradezu prädestiniert.

Im Zuge der durchgeführten Untersuchungen wurden zunächst verschiedene Approximationen der Grundzustandsenergie berechnet (die höchste erreichte Stufe war DLSUB9⁶) und aus diesen dann Näherungen für die exakten Energien extrapoliert. Von besonderer Bedeutung waren hierbei die Ergebnisse am MG-Punkt ($J_2 = J_1/2$), an dem die DCCM auch tatsächlich in allen Näherungsstufen das exakte Resultat von $E/N = -0.375$ reproduzieren konnte. Dies stellte ein entscheidendes Prüfkriterium für die Implementierung der DCCM dar, da die CCM schon rein konzeptionell exakte Resultate liefert, wenn der Modellzustand dem eigentlichen Grundzustand entspricht. Außerdem hervorzuheben sind die Resultate an der Stelle $J_2 = 0$, da das Modell an diesem Punkt ebenfalls exakt gelöst ist (über den bekannten Bethe-Ansatz); die Grundzustandsenergie hat hier den Wert $E/N = -0.44315$, der mit dem DCCM-Resultat von $E/N = -0.44317$ sehr gut reproduziert werden konnte. Ein qualitativer Vergleich mit bereits bekannten Resultaten der CCCM zeigt, dass beide Methoden im Bereich $0 \leq J_2/J_1 < 0.5$ nahezu gleichwertige und vor allem auch mit der Fachliteratur vergleichbare Resultate liefern. Die Unterschiede beider Methoden liegen hier in erster Linie auf der technischen Seite und führen am Beispiel dieses Modells noch zu keiner Bevorzugung einer der beiden Methoden; dies ist aber auch als Bestätigung der DCCM zu werten, da die CCCM-Resultate in diesem Bereich bekanntermaßen bereits sehr gut sind. Jenseits des MG-Punktes (für $0.5 < J_2/J_1 < 1$) ändert sich die Situation, während bei der CCCM technische Probleme auftreten, die auf die mangelnde Eignung der verwendeten (und auch verwendbaren) Modellzustände zurückzuführen sind und in

⁶DLSUB9 lässt sich in etwa mit der Näherungsstufe LSUB18 in der CCCM vergleichen.

der Folge zu unphysikalischen Ergebnissen führen, gibt es bei der DCCM prinzipiell keine Probleme. Das heißt, die Resultate sind durchgehend plausibel, die Approximationen bleiben monoton und vor allem konvergieren sie relativ schnell, was immer ein deutlicher Hinweis auf die gute Eignung des verwendeten Modellzustands (und damit auch der DCCM als Methode) ist.

Im nächsten Schritt wurde der sogenannte Dimer-Ordnungsparameter untersucht. Dabei wurden analog zum Vorgehen bei der Grundzustandsenergie zunächst alle möglichen Approximationen (ebenfalls bis zur Stufe DLSUB9) und daraus dann die Extrapolationen berechnet. Ein direkter Vergleich mit CCCM-Daten war hierbei allerdings nicht möglich, da der Dimer-Ordnungsparameter bei ihren typischen Anwendungsfällen, im Gegensatz zum dort verwendeten magnetischen Ordnungsparameter, keine Rolle spielt und daher auch bisher nicht berechnet wurde. Es zeigte sich aber, dass die ermittelte Nullstelle des Dimer-Ordnungsparameters bei $J_2 = 0.2407$ sehr gut mit den bekannten DMRG Daten für die Öffnung des Spingaps bei $J_2 = 0.2411$ übereinstimmt [28, 83]. Des Weiteren besitzt der Dimer-Ordnungsparameter ein charakteristisches Maximum in der Nähe des MG-Punktes (DMRG: $J_2 = 0.5781$, $D_{\max} = 0.7906135$), dass mit der DCCM bereits sehr gut durch die Approximationen beschrieben werden konnte (DCCM: $J_2 = 0.578 \pm 0.001$, $D_{\max} = 0.7906$).

Es lässt sich also festhalten, dass die DCCM in allen untersuchten Bereichen der CCCM gleichwertige Resultate liefert und für $J_2 \geq 0.25$ sogar besser geeignet ist. Dadurch und gerade auch durch die Reproduktion der exakten Resultate an den Stellen $J_2 = 0$ und $J_2 = 0.5$ sowie der mit der DMRG nahezu identischen Lage des Maximums des Ordnungsparameters und des Phasenübergangs in die dimerisierte Phase kann dieser erste Anwendungstest der DCCM als Erfolg gewertet werden.

4.2. J - J' -Modell

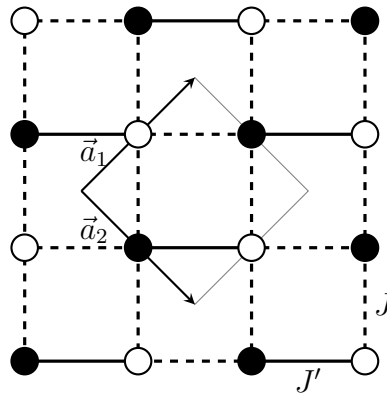


Abbildung 4.10.: Darstellung des J - J' -Modells mit seinen zwei Untergittern und zwei verschiedenen Austauschwechselwirkungen J und J' sowie der Elementarzelle.

Das J - J' -Modell ist eine Variante des Heisenberg-Modells auf dem Quadratgitter. Es beschreibt eine auf direkte Nachbarn beschränkte Wechselwirkung der Spinträger (hier mit $s = 1/2$), unterscheidet dabei aber zwischen zwei verschiedenen Bindungstypen J und J' . Der Hamiltonoperator dieses Modells sieht wie folgt aus:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle_1} \hat{S}_i \hat{S}_j + J' \sum_{\langle i,j \rangle_2} \hat{S}_i \hat{S}_j, \quad (4.10)$$

hierbei läuft die Summation über $\langle i,j \rangle_1$ über die in der Abbildung 4.10 gestrichelt eingezeichneten und die Summation über $\langle i,j \rangle_2$ über die mittels durchgezogener Linien gekennzeichneten Bindungen. Da für die physikalischen Eigenschaften dieses Modells wie immer nur die Verhältnisse der Bindungsstärken von Bedeutung sind, wird die Kopplung J im Folgenden auf 1 fixiert. Der verbliebene Parameter J' erlaubt nun insbesondere die Variation zwischen vier verschiedenen Spezialfällen des Modells. Die offensichtlichsten Fälle sind das isotrope Quadratgitter für $J' = 1$ und die Stelle $J' = 0$, an der dieselbe Topologie der Bindungen wie bei einem Honigwabengitter vorliegt. Von besonderem Interesse ist aber der Bereich $J' > 1$, in dem das Modell einen Übergang in eine dimerisierte Phase mit „versetzter Ordnung“ (siehe Abschnitt 2.4.5) vollzieht. Im Grenzfall $J' \rightarrow \infty$ entspricht der Grundzustand einem nicht entarteten Singulettproduktzustand. Im vierten Fall für $J' \rightarrow -\infty$ ist die ferromagnetische Bindung zwischen den jeweils zwei beteiligten Spins ($s = 1/2$) so stark, dass sie sich quasi wie ein einziges Spin-1-Teilchen verhalten. Die resultierende Topologie entspricht dann außerdem der eines Dreiecksgitters.

Von den erwähnten Spezialfällen einmal abgesehen wurden bereits eine ganze Reihe von Untersuchungen dieses Modells durchgeführt, die dabei verwendeten Methoden reichen von der Störungstheorie in sehr hohen Ordnungen (*High Order Series Expansion*) [91], *Quanten Monte Carlo Simulationen* [92, 93] sowie der *Spinwellentheorie* und *exakter Diagonal-*

sierung [94], bis hin zur CCM [95, 96], wobei letztere sich auf die Verwendung von nicht dimerisierten Modellzuständen beschränken (bzw. auf die CCCM). Von großem Interesse war dabei stets auch der Quantenphasenübergang in der Region $J' > 1$ zwischen der Néel-geordneten Phase und der magnetisch ungeordneten (dimerisierten) Phase. Für diesen ergab sich im Rahmen einer QMC-Untersuchung zunächst ein deutlich von der angenommenen Universalitätsklasse $O(3)$ (entspricht jener des klassischen dreidimensionalen Heisenberg-Modells) abweichendes kritisches Verhalten des magnetischen Ordnungsparameters, das mit der Existenz nichttrivialer Anregungen und sogenannter *Berryphasen* verknüpft ist [92]. In späteren Untersuchungen konnte allerdings gezeigt werden, dass diese von den Erwartungen abweichenden kritischen Exponenten auf die nicht adäquate Berücksichtigung ungewöhnlich großer Skalenkorrekturen zurückzuführen ist und bei korrekter Behandlung tatsächlich auf das ursprünglich angenommenen kritische Verhalten führen [97].

Das Ziel dieser Arbeit ist es nun, diesen Untersuchungen die neuen DCCM-Resultate gegenüberzustellen, wobei das hauptsächliche Augenmerk auf der dimerisierten Phase liegen soll.

4.2.1. Der klassische Grundzustand und die Auswahl der Modellzustände

In der klassischen Beschreibung des Modells ist der Grundzustand ein helixartiger Zustand, der an der Stelle $J' = -1/3$ stetig (ein Phasenübergang 2. Ordnung) in einen einfachen Néelzustand übergeht. Der Helixzustand lässt sich daher durch einen Kippwinkel Φ_{KI} charakterisieren (für eine Herleitung siehe [17]):

$$|\Phi_{\text{KI}}| = \begin{cases} 0 & , \text{ für } J' > -\frac{1}{3} \\ \arccos\left(\frac{1}{3}\sqrt{1 - \frac{1}{J'}}\right) & , \text{ für } J' \leq -\frac{1}{3} \end{cases} ,$$

der die Abweichung der einzelnen Spins von der Néelordnung beschreibt (siehe Abbildung 4.11) [95].

Die Existenz dieser klassischen Phasen liefert damit auch hier wieder Hinweise auf gleichartige Phasen im Quantenmodell. Im Allgemeinen müssen die klassischen Phasengrenzen allerdings nicht mit den Grenzen der mit ihnen assoziierten Quantenphasen übereinstimmen (oder überhaupt existieren). Auch in diesem Modell zeigen CCM-Untersuchungen auf der Basis eines helixartigen Modellzustands, dass die Néelphase im Quantenfall deutlich über den klassischen Übergangspunkt bei $J' = -\frac{1}{3}$ hinaus (die Grenze liegt ungefähr bei $J' \approx -1.35$) besteht [95, 96]. Da der Schwerpunkt dieser Arbeit ohnehin auf dem rein antiferromagnetischen Modell liegt, also auf dem Parameterbereich $J' > 0$, reicht es aus,

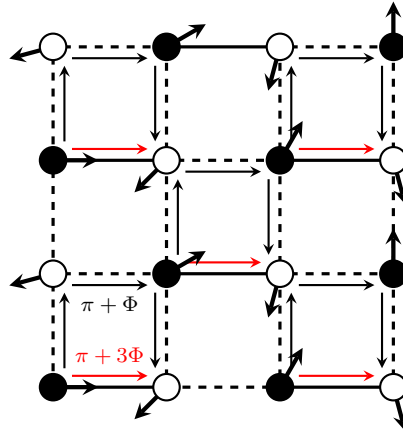


Abbildung 4.11.: Helixzustand auf dem Quadratgitter.

sich hier auf den deutlich einfacher handhabbaren Néel-Modellzustand:

$$|\Phi_0\rangle_{\text{Néel}} = |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\dots\rangle := |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\rangle \otimes \dots \quad (4.11)$$

zu beschränken, wobei dieser im Wesentlichen dafür gebraucht wird, um die in [95] vorgestellten CCCM-Resultate um die Daten der heutzutage erreichbaren LSUB10-Approximation zu ergänzen.⁷ Im Hinblick auf die Symmetrien des Grundzustandes sei allerdings auf die Tatsache hingewiesen, dass der Hamiltonoperator dieses Modells aufgrund der J' -Bindung nicht die volle Translationssymmetrie des Quadratgitters bzw. des hier verwendeten Néelzustands aufweist. Der hier angesetzte Grundzustand weist deshalb auch in der Néelphase die selben Translationssymmetrien wie in der dimerisierten Phase auf (alle gemeinsamen Symmetrien des Modellzustands und des Hamiltonoperators übertragen sich auch auf den eigentlichen Grundzustandsansatz, siehe dazu auch Abschnitt 2.2). Das eigentliche Hauptaugenmerk dieser Arbeit liegt allerdings auf der dimerisierten Phase, für die wieder ein Singulett-Modellzustand:

$$|\Phi_0\rangle_{\text{VB}} = |0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots; \quad |0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \quad (4.12)$$

gewählt wird, wobei die einzelnen Singulettts auf den durch die J' -Wechselwirkung verbundenen Gitterplatzpaaren lokalisiert werden (siehe Abbildung 4.12a).

4.2.2. Resultate

Unter Verwendung des bereits für das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell angewendeten neuen DCCM-Programms wurden im Parameterbereich $0 < J' \leq 8$ Approximationen für die Grundzustandsenergie und einen Dimer-Ordnungsparameter auf der Basis des Singulett-

⁷Im Juni 2000 lag die technische Höchstgrenze für die berechenbaren Approximationen dieses Modells noch bei LSUB8 [95].

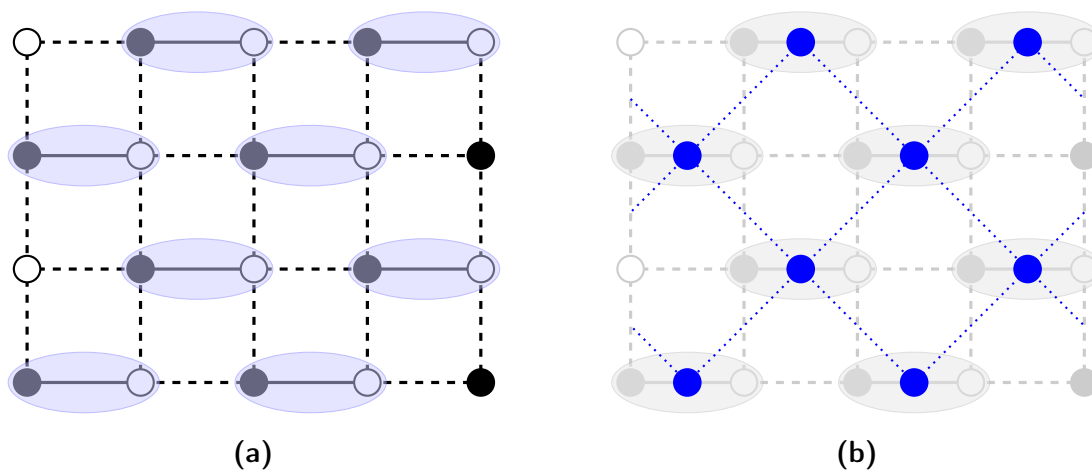


Abbildung 4.12.: (a) Darstellung der dimerisierten Phase des J - J' -Modells für $J' \rightarrow \infty$. (b) Die neue „Nächste-Nachbar“-Topologie, die sich bei der Interpretation eines Dimers als einzelnes im geometrischen Schwerpunkt der beteiligten Spinträger bzw. Gitterpunkte lokalisiertes Objekt ergibt.

Modellzustands ermittelt. Mit zunehmender Näherungsstufe wurde es allerdings schwieriger, Lösungen für niedrige Werte der Dimerkopplung J' zu finden, dies war insbesondere für den Bereich $J' \leq 1$ auch zu erwarten, da hier die reguläre Wechselwirkung J zwischen nächsten Nachbarn stärker und damit relevanter für die Grundzustandseigenschaften ist. Die konkreten Grenzen oder auch „Terminationspunkte“ der Lösungsalgorithmen lagen für DLSUB6 bei $J' = 2.36$ (bzw. $J' = 2.15$ mit dem *Newton-Raphson-Verfahren*) und für die höchste berechnete Näherungsstufe DLSUB7 bei $J' = 2.40$. Zur Einbeziehung der bereits erwähnten Néelphase wurde zusätzlich auf CCCM-Resultate aus [95] zurückgegriffen, wie bereits erwähnt, wurden diese allerdings um eigene Berechnungen der LSUB10-Approximationen ergänzt.

Eine Darstellung der berechneten Grundzustandsapproximationen sowie die nach dem $O_{2,4}$ -Schema ermittelten Extrapolationen erfolgt für beide Modellzustände in Abbildung 4.13. Es zeigt sich, dass die DLSUB n -Approximationen im gesamten Parameterbereich sehr schnell konvergieren und sich in den höheren Näherungsstufen kaum noch voneinander unterscheiden, weshalb die aus den DLSUB3 bis DLSUB7 Daten berechneten $O_{2,4}$ -Extrapolationen der Grundzustandsenergie als sehr zuverlässig angesehen werden können (siehe auch Abschnitt 4.2.3). Ein Vergleich mit der unter Einbeziehung der LSUB n -Näherungsstufen: 4, 6, 8, 10 berechneten $O_{2,4}$ -Extrapolation für den Néelzustands liefert praktisch übereinstimmende Resultate. Dies entspricht im Prinzip der Erfahrung mit der eindimensionalen J_1 - J_2 -Kette. Auch dort zeigte sich, dass die mit der CCCM berechnete Energie des auf dem Néelzustand basierenden Grundzustandsansatzes in bestimmten Bereichen sehr gut mit der des Singulett-Modellzustands übereinstimmt. Ein genauere Blick auf die Energiedifferenzen (Abb. 4.13 rechts) deutet zwar durchaus auf Abweichungen der Grundzustandsenergien hin, bei der hier auftretenden Größenordnung kann aber

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

nicht ausgeschlossen werden, dass diese auf die Unterschiede der verwendeten Methoden zurückzuführen sind. Bei den im vorherigen Abschnitt vorgestellten Untersuchungen am eindimensionalen J_1 - J_2 -Modell ergaben sich ja bereits Hinweise darauf, dass die CCCM die Grundzustandsenergie innerhalb dimerisierter Phasen, bei Verwendung eines Néel-Modellzustands, tendenziell geringfügig unterschätzt, dies könnte auch hier der Grund für die, den eigentlichen Erwartungen widersprechende, niedrigere Energie des Néelzustands für $J' > 4$ sein.⁸

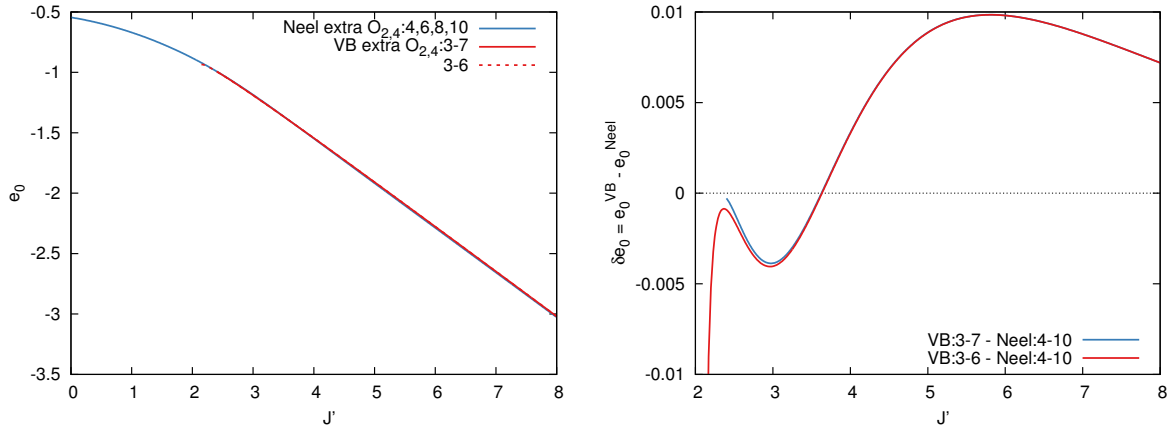


Abbildung 4.13.: (links) Darstellung extrapolierten Grundzustandsenergie über die Dimerkoppelung J' für den Singulett- und den Néel-Modellzustand. (rechts) Differenz der extrapolierten Grundzustandsenergien beider Modellzustände.

Zur Bestimmung der Phasengrenzen ist es daher aussagekräftiger, die Ordnungsparameter näher zu untersuchen. Im Abschnitt 2.4.5 über die Ordnungsparameter der dimerisierten Phasen wurde beschrieben, dass die Detektion von konkreten Dimeranordnungen in zwei Dimensionen (insbesondere auf einem Quadratgitter) durch die Berechnung eines zweikomponentigen Dimer-Ordnungsparameters möglich ist. Das hier untersuchte Modell ist allerdings gerade so konzipiert, dass für $J' \gg J$ eine „versetzte“ (bzw. „staggered“) Anordnung mit parallel zur x-Achse orientierten Dimeren vorliegt.⁹ Daher müssen alle Korrelationsfunktionen zwischen nächsten Nachbarn, die auf parallel zur y-Achse liegenden Gitterlinien lokalisiert sind, bereits aus Symmetriegründen identisch sein. Damit reicht es aus, sich auf den folgenden Dimer-Ordnungsparameter zu beschränken:

$$D_x = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|x_i|+|y_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i, y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_{i+1}, y_i)} \rangle. \quad (4.13)$$

⁸Im Kontrast dazu stehen beispielsweise die Energiedifferenzen, die für den Vergleich der beiden Modellzustände des Kagome HAFM berechnet wurden. Diese liegen zwar in einer vergleichbaren Größenordnung, sind aber mit derselben Methode ermittelt worden und weisen eine klare Tendenz auf.

⁹Hier ist die Orientierung im Ortsraum gemeint.

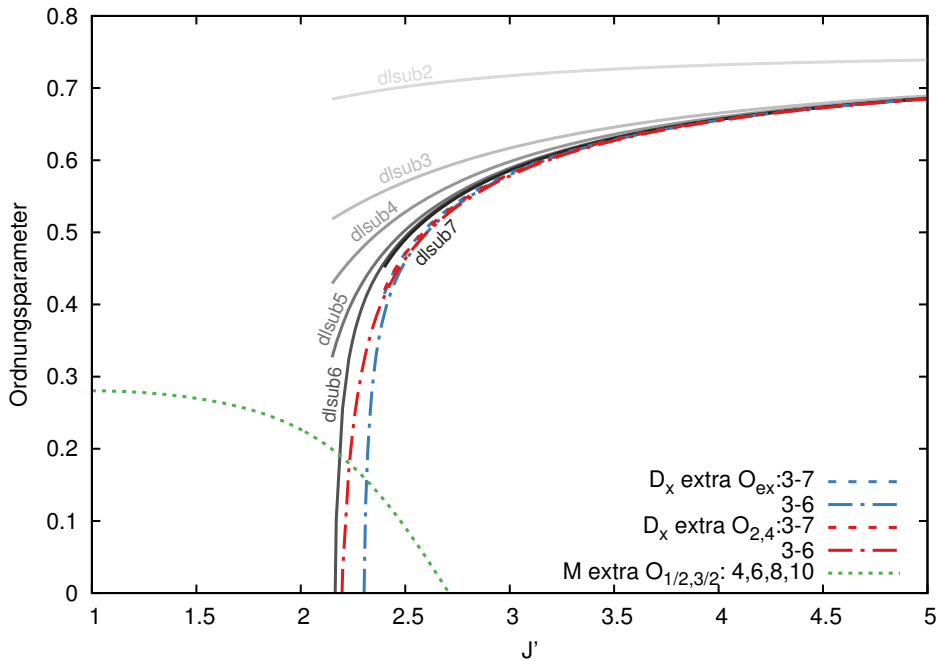


Abbildung 4.14.: Darstellung der Ordnungsparameter des J - J' -Modells, dabei ist M der magnetische Ordnungsparameter des néelartigen Modellzustands und D_x der Dimer-Ordnungsparameter des Singulett-Modellzustands.

Für den Néelzustand wurde wieder der magnetische Ordnungsparameter (2.67):

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal,}$$

berechnet.

Im nächsten Schritt wurden die üblichen Extrapolationen für den exakten Grenzfall durchgeführt, wobei für eine ausführliche Diskussion zur Identifikation des für den Dimer-Ordnungsparameter am geeignetsten Extrapolationsschemas zunächst auf den direkt nachfolgenden Abschnitt 4.2.3 verwiesen wird. Es kann aber bereits vorweggenommen werden, dass sich die Schemata O_{ex} und $O_{2,4}$ als gleichermaßen geeignet erwiesen, ganz im Gegensatz zu den Schemata $O_{1/2,3/2}$ und $O_{1,2}$, die daher auch nicht weiter berücksichtigt werden. Für den magnetischen Ordnungsparameter wurde das übliche $O_{1/2,3/2}$ -Schema gewählt.

Eine Darstellung der ermittelten Resultate beider Ordnungsparameter erfolgt in Abbildung 4.14. Hierbei wird ein wesentliches Problem offensichtlich, das den bereits angesprochenen Terminationspunkt des verwendeten Algorithmus zur Lösung des CCM-Gleichungssystems (das Standardverfahren ist auch hier die *Direkte Iteration*) betrifft. Damit sind die Punkte oder Grenzen des Modellparameterraums gemeint, ab denen keine Lösungen mehr gefunden und damit auch keine Systemobservablen mehr berechnet werden können. Gewöhnlich ist es so, dass diese Punkte bei guter Eignung des verwendeten Modellzustands jenseits der

Grenzen der zugehörigen Grundzustandsphase liegen. Im vorliegenden Modell zeigt sich nun aber, dass die berechneten Extrapolationen unter Einbeziehung der DLSUB7-Approximation bis zum Terminationspunkt bei $J'_{\text{TP}} = 2.4$ endlich bleiben ($D_x(J' \geq 2.4) \geq 0.4$). Dies ist insofern problematisch, da das Verschwinden des Ordnungsparameters ($D_x \rightarrow 0$) hier als Kriterium für einen Phasenübergang dienen soll, dessen Existenz für niedrige Werte von J' zu erwarten ist.

Da es bisher keine Hinweise dafür gibt, dass die *Direkte Iteration* per se als Lösungsverfahren innerhalb der DCCM ungeeignet ist, kann zunächst nur davon ausgegangen werden, dass der Modellzustand trotz endlichem Ordnungsparameter spätestens ab dem Terminationspunkt einfach nicht mehr gut geeignet ist. Gerade aber weil der Ordnungsparameter endlich bleibt, liegt die Vermutung nahe, dass sich zunächst eine Phase der Koexistenz anschließt, in der sowohl ein dimerisierter als auch ein néelartiger Zustand vorliegt; so eine Phase wird beispielsweise auch für das J_1 - J'_1 - J_2 -Modell diskutiert [98]. Es ist durchaus denkbar, dass es im Zuge der numerischen Lösungsfindung aufgrund der Verschiedenheit der Phasen zu Konflikten bei der eindeutigen Selektion eines Lösungspfad kommt, die dann zu einem Abbruch führen.¹⁰ Mit dieser Erklärung ist insbesondere auch die Tatsache verträglich, dass der magnetische Ordnungsparameter M des Néelzustands erst deutlich im Konvergenzbereich des Singulett-Modellzustands verschwindet.

Um ein klareres Bild dieses Sachverhaltes zu gewinnen, wurde im Folgenden versucht, die Terminationspunkte durch die Verwendung des erfahrungsgemäß „robusteren“ aber auch aufwendigeren *Newton-Raphson-Verfahrens* etwas weiter in den Nichtkonvergenzbereich zu verschieben. Dafür war es nötig, dieses Verfahren zunächst in einer „parallelisierten“ Variante zu entwickeln¹¹, was es schlussendlich erlaubte, deutlich weiter in die angenommene Koexistenzphase „hineinzurechnen“. Aufgrund des im Vergleich mit der *Direkten Iteration* deutlich höheren technischen Aufwandes gelang damit zwar nur eine Berechnung der Approximationen bis zur Stufe DLSUB6, dafür war es aber möglich, innerhalb des zusätzlich erschlossenen Konvergenzbereiches, den Nulldurchgang des extrapolierten Dimer-Ordnungsparameters zu finden. Unter Verwendung des O_{ex} -Schemas lässt sich der Phasenübergang zwischen der hypothetischen Koexistenz- und der Néelphase damit an

¹⁰Aus technischen Gründen, die damit zusammenhängen, dass der Singulettzustand nicht auf einen vollsymmetrischen Produktzustand koordinatentransformiert werden kann, kann für das Singulett-Gleichungssystem nur eine echte Teilmenge der Symmetrien des Néelansatzes (es fehlen die Rotationsymmetrien sowie die Spiegelsymmetrien an der y-Achse) berücksichtigt bzw. gefordert werden, mit dem Eintritt in die Koexistenzphase kann es nun passieren, dass die Numerik auf eine Lösung stößt, die mit den fehlenden Symmetrien verträglich ist. Es besteht nun die Möglichkeit, dass sie im Zuge einer Übernahme der Lösung für den nächsten Parameterwert in diesen höhersymmetrischen Lösungen solange verhaftet bleibt, bis diese nicht mehr mit dem zu beschreibenden Zustand verträglich ist und gleichzeitig so weit von einer geeigneten Lösung entfernt ist, dass das Verfahren abbricht.

¹¹Das Newton-Raphson-Verfahren stand schon in der CCCM zur Verfügung, allerdings nur in einer Variante für Einprozessorsysteme. Um es sinnvoll auf zweidimensionale Modelle anwenden zu können, musste es für die DCCM in einer Variante für Mehrprozessorsysteme neu entwickelt und für die Nutzung des auf typischen Großrechnern häufig nur in verteilter Form vorliegenden Gesamtspeichers angepasst werden.

der Stelle $J'_c = 2.31$ und bei Verwendung des $O_{2,4}$ -Schemas bei $J'_c = 2.20$ lokalisieren.

Die zusätzliche Einbeziehung der LSUB10-Approximation in die Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters M , konnte den in [95] mit dem $O_{1,2}$ -Schema bestimmten Wert für die Phasengrenze bei $J'_s = 3.16$, zu niedrigeren Werten von J' verschieben, er liegt jetzt bei $J'_s = 2.71$ (hierbei wurde allerdings auch das deutlich besser geeignete $O_{1/2,3/2}$ -Schema verwendet). Dieser neue Wert liegt damit nun auch näher an dem in [91] bestimmten Wert von $J'_s = 2.56 \pm 0.07$.

Zusammengefasst ergibt sich damit die Übersicht über die Grundzustandsphasen in Tabelle 4.3.

Tabelle 4.3.: Grundzustandsphasen des J - J' -Modells für $J = 1$ und $J' \geq 0$.

Néelphase	$0 \leq J' < 2.20$ (2.31)
Koexistenzphase	2.20 (2.31) $\leq J' \leq 2.71$
VBS-Phase	$2.71 < J'$

4.2.3. Extrapolationsschemata für die Grundzustandsenergie und den Dimer-Ordnungsparameter

Wie bereits in Abschnitt 2.4.7 bzw. 2.3.6 erläutert, erfordert die mangelnde Erfahrung mit der DCCM vor der Verwendung eines Extrapolationsschemas eine gründlichere Eignungsprüfung, als dies bei der CCCM nötig ist. Da die Untersuchungen am eindimensionalen J_1 - J_2 -Modell bereits gezeigt haben, dass sowohl der Standardansatz (2.88):

$$O_{\alpha,\beta}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right)^\alpha + a_2 \left(\frac{1}{m}\right)^\beta$$

als auch der Ansatz mit offenem Exponenten (2.92):

$$O_{\text{ex}}(m) = a_0 + a_1 \left(\frac{1}{m}\right)^{a_2}$$

prinzipiell geeignet sind, wird im Folgenden ebenfalls auf diese Ansätze zurückgegriffen.

Grundzustandsenergie

Zur Feststellung der für die Grundzustandsenergie am besten geeigneten Fitfunktion, wurde für alle ermittelten Datensätze eine Extrapolation basierend auf den Ansätzen $O_{2,4}$ sowie mit offenem Exponenten O_{ex} durchgeführt. Dabei wurden jeweils einmal alle berechneten Näherungsstufen ab DLSUB2 und einmal ab DLSUB3 berücksichtigt. Eine Auswahl der ermittelten Extrapolationen ist in Abbildung 4.15 dargestellt.

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

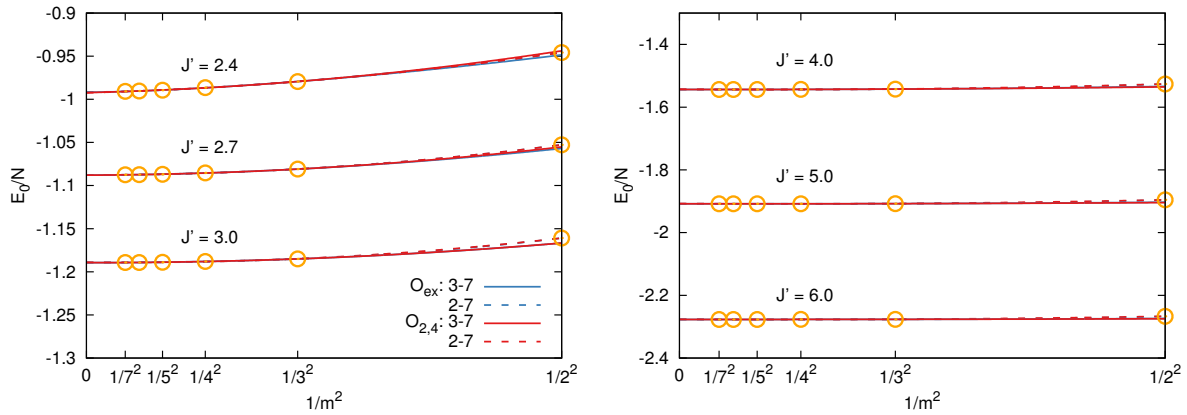


Abbildung 4.15.: Vergleich der Extrapolationsvorschriften für die Grundzustandsenergie des J - J' -Modells, für verschiedene Werte von J' .

Auffällig ist zunächst, dass sämtliche dargestellten Extrapolationen eines gewählten Datensatzes nahezu identische Kurven ergeben, die offensichtlichsten, aber dennoch minimalen, Abweichungen zeigen sich im Prinzip ausschließlich in der Nähe des DLSUB2-Datenpunktes und dort auch nur zwischen den Extrapolationen, die diesen explizit mit einschließen und jenen, bei denen er ausgelassen wird. Ein quantitativer Vergleich des ermittelten konstanten Terms $O(m \rightarrow \infty)$ ergibt, dass sich erste Abweichungen in allen Extrapolationen erst ab der vierten und für die Datensätze, in denen die Approximationen schon fast identisch sind (ab ungefähr $J' \gtrsim 3$), sogar erst ab der fünften Nachkommastelle ergeben.

Es zeigt sich also, dass das Standardextrapolationsschema für die Grundzustandsenergie der CCCM auch für die DCCM und das J - J' -Modell geeignet ist, auch um diese Kontinuität aufrechtzuerhalten liegt es nahe, das $O_{2,4}$ -Schema der Extrapolation mit offenem Exponenten hier vorzuziehen.

Ordnungsparameter

Das Vorgehen zur Bestimmung des geeignetsten Extrapolationsschemas für den Dimer-Ordnungsparameter läuft im Prinzip analog zu jenem bei der Grundzustandsenergie ab. Zusätzlich zu den dort getesteten Schemata O_{ex} und $O_{2,4}$ werden hier aber außerdem die bei der Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters in der CCCM verwendeten Schemata $O_{1/2,3/2}$ und $O_{1,2}$ geprüft. Für eine Auswahl repräsentativer Datensätze wurden die Extrapolationen in jeweils drei verschiedenen Darstellungen abgebildet (siehe Abbildung 4.16).

Hierbei fällt sofort auf, dass das $O_{1/2,3/2}$ -Schema im gesamten Parameterbereich ungeeignet ist, insbesondere die Berücksichtigung des DLSUB2-Datenpunktes führt auf eine deutliche Verschlechterung der Extrapolation für $O(m \rightarrow \infty)$. Auch das $O_{1,2}$ -Schema zeigt ähnliche Tendenzen, die aber bei der Nichtberücksichtigung der DLSUB2-Daten deutlich

weniger stark ausgeprägt sind. Im Bereich niedriger Parameterwerte $J' \lesssim 2.5$ kann man sogar von einer qualitativ guten Eignung ausgehen. Geeignete Extrapolationsschemata sollten eine zumindest gleichbleibende Monotonie der Fitfunktion aufweisen, die für das $O_{1,2}$ -Schema ungefähr ab $J' \gtrsim 3$ nicht mehr gegeben ist. Überraschend gut geeignet zeigt sich neben dem O_{ex} -Schema insbesondere auch das $O_{2,4}$ -Schema. Dieser Kontrast zum magnetischen Ordnungsparameter der CCCM, bei dem das $O_{2,4}$ -Schema in allen untersuchten Fällen ungeeignet ist, ist vermutlich auf Analogien zur Grundzustandsenergie zurückzuführen, die genau wie der Dimer-Ordnungsparameter im Prinzip als Summe von Korrelationsfunktionen von einfachen Produkten von Spinoperatorkomponenten konstruiert ist. Im direkten Vergleich des $O_{2,4}$ - und des O_{ex} -Fits ergeben sich aber dennoch gewisse Unterschiede, für $J' = 2.4$ weichen die Extrapolation bereits in der zweiten, ab $J' = 2.5$ in der dritten, aber spätestens für $J' > 4.0$ nur noch in der vierten Nachkommastelle voneinander ab. Eine klare Bevorzugung eines der beiden Extrapolationsschemata lässt sich nicht rechtfertigen, aufgrund der ausreichenden Datenbasis kann aber in beiden Fällen auf die Berücksichtigung der DLSUB2-Daten verzichtet werden.

4.2.4. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde das J - J' -Modell mit dem Ziel untersucht, durch Anwendung der DCCM bzw. eines dimerisierten Grundzustandsansatzes im Rahmen der CCM, dem gegenwärtigen Stand der Forschung neue Erkenntnisse über die Grundzustandsphasen des Modells hinzuzufügen. Neben Resultaten anderer Methoden existierten auch bereits mit der CCCM auf der Basis eines Néelzustands bis zur Approximationsstufe LSUB8 berechnete Resultate für die Grundzustandsenergie und den magnetischen Ordnungsparameter. Diesen Daten könnten im Zuge der hier vorgestellten Untersuchungen zusätzliche LSUB10-Approximationen hinzugefügt werden.

Neben der grundsätzlichen Bestätigung der Existenz einer Néel- sowie einer dimerisierten Phase (bzw. VBS-Phase) im Grundzustand und der näheren Bestimmung ihrer Phasengrenzen, konnten außerdem Hinweise auf die Existenz einer Koexistenzphase gefunden werden, deren Grenzen ebenfalls bestimmt werden konnten.

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

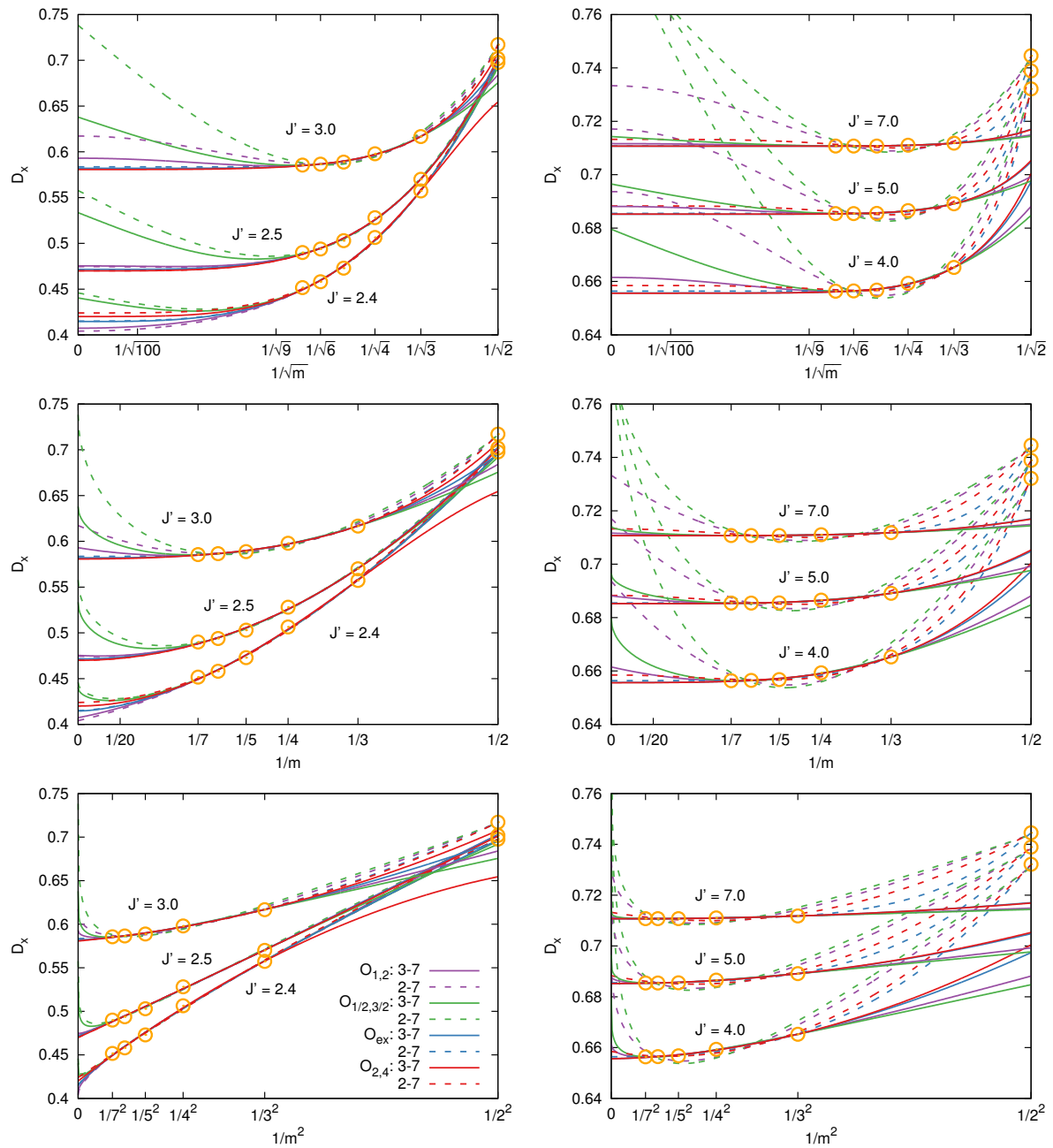


Abbildung 4.16.: Vergleich der Extrapolationsvorschriften für den Dimer-Ordnungsparameter des J - J' -Modells, für verschiedene Werte von J' .

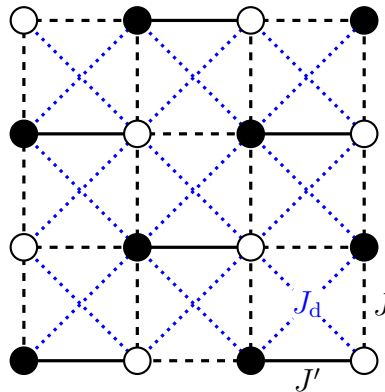
4.3. J - J' - J_d -Modell

Abbildung 4.17.: Darstellung des J - J' - J_d -Modells auf dem Quadratgitter.

Eine interessante Erweiterung des im letzten Abschnitt behandelten J - J' -Modells ergibt sich durch die Hinzunahme antiferromagnetischer Wechselwirkungen zwischen übernächsten Nachbarn $J_d \geq 0$ entlang der Diagonalen des Quadratgitters (siehe Abbildung 4.17), was auf den folgenden Hamiltonoperator führt:

$$\hat{H} = J \sum_{\langle i,j \rangle_1} \hat{S}_i \hat{S}_j + J' \sum_{\langle i,j \rangle_2} \hat{S}_i \hat{S}_j + J_d \sum_{[i,j]} \hat{S}_i \hat{S}_j. \quad (4.14)$$

Hier laufen die Summationen des Typs $\langle i,j \rangle_1$ wieder über alle durch eine gestrichelte Linie gekennzeichneten und die des Typs $\langle i,j \rangle_2$ über die durchgezogenen Bindungen zwischen nächsten Nachbarn auf dem Gitter. Die zusätzliche Summation über $[i,j]$ läuft über alle übernächsten Nachbarn (blaue gepunktete Linien).

Die Besonderheit der zusätzlichen Bindung liegt dabei nicht nur in der Erweiterung des Parameterraums an sich, sondern darin, dass diese das Modell frustriert; diese Art der Frustration wird, im Kontrast zur unter anderem beim Kagome-HAFM auftretenden „Geometrischen Frustration“, auch „Bindungsfrustration“ genannt. Frustration ist aber in jedem Fall mit dem Auftreten „exotischer“ Grundzustandsphasen (Spinflüssigkeiten, nematische Phasen etc.), erhöhter klassischer Grundzustandsentartung und Phänomenen wie der Plateaubildung in Magnetisierungskurven verknüpft. Beim eindimensionalen J_1 - J_2 -Modell beispielsweise konnte durch die gleichartige frustrierende J_2 -Wechselwirkung zwischen übernächsten Nachbarn eine Singulett-Phase stabilisiert werden (am *Majumdar-Ghosh*-Punkt bei $J_2 = J_1/2$ ist sie sogar exakt identisch mit dem Grundzustand); es ist also durchaus denkbar, dass die J_d Bindung einen ähnlichen Effekt auf die Dimerisierung im zweidimensionalen Modell hat. Das Auftreten von frustrierenden Bindungen hat aber auch zur Folge, dass mit der *Quanten-Monte-Carlo-Methode* (QMC) eine der genauesten Methoden zur Untersuchung von zweidimensionalen Modellen nicht anwendbar ist und das Modell daher, vom Spezialfall $J = J'$ abgesehen, bisher praktisch nicht untersucht wurde.

Der angesprochene Spezialfall, der in der Regel als zweidimensionales J_1 - J_2 -Modell ($J' = J \rightarrow J_1, J_d \rightarrow J_2$) bezeichnet wird, ist allerdings ein recht gut untersuchtes Modell, für das es bereits eine Vielzahl an Veröffentlichungen gibt [98–121]. Damit bietet das J - J' - J_d -Modell nicht nur die Möglichkeit eine neue Fragestellung zu untersuchen, sondern auch die Option die DCCM im erwähnten Spezialfall zu testen und mit anderen Methoden zu vergleichen.

4.3.1. Modellzustandswahl

Die zusätzliche frustrierende Bindung macht die Bestimmung des klassischen Grundzustandes allerdings deutlich aufwendiger, als dies beim J - J' -Modell der Fall war. Da das eigentliche Interesse aber wieder in erster Linie auf der dimerisierten Phase liegt, ist eine solche Untersuchung hier aber auch nicht unbedingt nötig. Denn es ist klar, dass eine zusätzliche Kopplung, wenn sie wie hier auf den Bereich $0 \leq J_d \leq 1$ beschränkt wird, im Grenzfall großer J' irrelevant für die Existenz der Singulett-Phase wird. Es ist allerdings zu erwarten, dass die Kopplungsstärke einen deutlichen Effekt auf die Lage der kritischen Punkte J'_c hat, an denen die dimerisierte Phase in eine semiklassische Phase übergeht.

Untersuchungen des bereits erwähnten isotropen zweidimensionalen J_1 - J_2 -HAFM auf dem Quadratgitter (entspricht dem Spezialfall $J = J'$), liefern deutliche Hinweise auf die Existenz einer ungeordneten Phase (manchmal wird sie auch „quantenparamagnetische Phase“ kurz QPM-Phase genannt), die für kleine Werte von J_2 durch eine néelgeordnete Phase (NAF) und für große Werte von J_2 von einer kollinear gestreiften Phase (CAF) begrenzt wird (siehe Abb. 4.18a und 4.18b) [52, 117, 120]. Konkrete Werte für diese

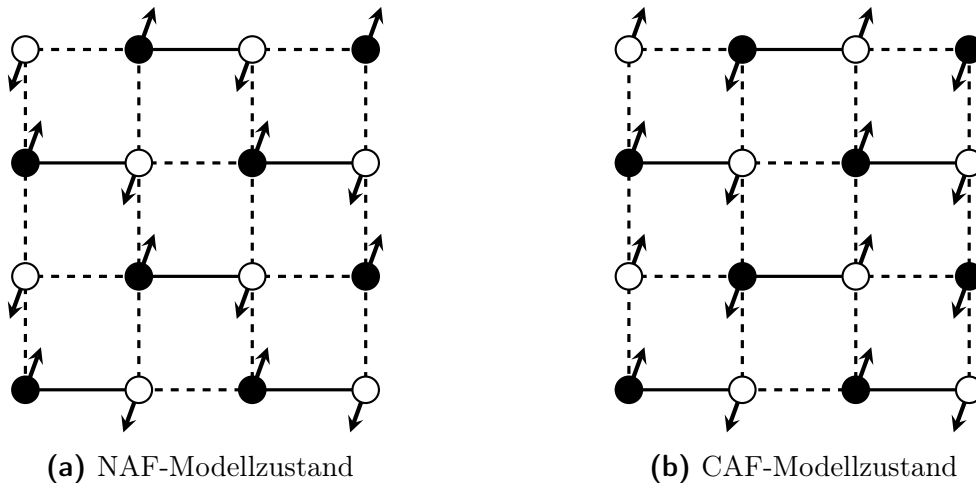


Abbildung 4.18.: Darstellung möglicher semiklassischer Phasen bzw. der aus ihnen abgeleiteten Modellzustände des J - J' - J_d Modells.

kritischen Punkte (an denen die magnetischen Ordnungsparameter der NAF- und der CAF-Phase verschwinden) konnten mittels der CCM auf $J_2^{c1} = 0.447J_1$ und $J_2^{c2} = 0.586J_1$

bestimmt werden [52, 113]. Ob es sich bei der QPM-Phase bereits um eine dimerisierte Phase handelt, ist fraglich, es ist aber davon auszugehen, dass die beiden semiklassischen Phasen mit zunehmender J' -Kopplung, zumindest in einer Umgebung um $J' = J$ bzw. $J' = 1$, weiterhin bestehen bleiben. Für das **klassische Modell** lässt sich zumindest recht einfach zeigen, dass sich der NAF- und der CAF-Zustand gerade bei $J_d = 1/2$ (unabhängig von J') ablösen:

$$\left. \begin{aligned} E_{\text{NAF}} &= s^2(-J' + 4J_d - 3) \\ E_{\text{CAF}} &= s^2(-J' - 4J_d + 1) \end{aligned} \right\} E_{\text{NAF}} = E_{\text{CAF}} \Leftrightarrow J_d = \frac{1}{2}.$$

Eine Helixphase wie sie im klassischen J - J' -Modell (also bei $J_d = 0$) auftritt, ist natürlich auch für größere Werte der Diagonalkopplung denkbar. Die konkrete Bestimmung der J_d -Abhängigkeit des Helixzustands ist allerdings nicht trivial und für eine erste Anwendung der CCM auch nicht unbedingt nötig, weshalb im Folgenden auch darauf verzichtet wird. Die aufgeführten Hinweise auf die Existenz entsprechender Phasen legen es aber zumindest nahe, neben dem obligatorischen Singulettproduktzustand zusätzlich einen Néelzustand und einen kollinear gestreiften Zustand als alternative Modellzustände zu verwenden und damit ein vollständigeres Bild über die im untersuchten Parameterbereich auftretenden Grundzustandsphasen zu erhalten.

4.3.2. Resultate

Unter Verwendung des Singulett-Modellzustands wurden mit der DCCM verschiedene Näherungen der Grundzustandsenergie E_0/N und des Dimer-Ordnungsparameters D_x berechnet. Die höchste dabei erreichte Approximationsstufe war DLSUB7. Zur Kontrastierung der DCCM-Resultate wurden mittels der CCCM außerdem Approximationen der Grundzustandsenergie und der magnetischen Ordnungsparameter für den NAF- und den CAF-Modellzustand ermittelt. Hierbei wurde in beiden Fällen die Näherungsstufe LSUB10 erreicht, außerdem wurde zur Kompensation des *Odd-Even-Effektes* (siehe Abschnitt 2.3.6) auf die Berechnung der ungeraden Approximationen verzichtet bzw. wurden sie bei der Extrapolation nicht berücksichtigt.

Grundzustandsenergie

Die Bestimmung der Grundzustandsenergie erwies sich, wie auch in den vorherigen Kapiteln, als relativ unproblematisch. In den Regionen, in denen die angesetzten Modellzustände besonders geeignet schienen, dies betrifft für die semiklassischen Regionen insbesondere die Bereiche:

$$\begin{aligned} \text{NAF: } & 0.0 \leq J_d < 0.5, \\ \text{CAF: } & 0.5 < J_d < 1.0, \end{aligned}$$

bis maximal $J' = 2.6$, konvergierten die Approximationen sehr schnell und beschrieben, im Rahmen der angestrebten Genauigkeit von mindestens zwei Nachkommastellen, eine nahezu exakte quadratische Abhängigkeit von der Näherungsstufe (siehe die am Ende dieses Absatzes genannten Referenzen auf den Anhang). Der Gültigkeitsbereich des Singulett-Modellzustands, wie sich im nächsten Abschnitt zeigen wird, ist in der Nähe von $J_d = 0.5$ am größten und deckt dort im Wesentlichen die Region $1 < J' < \infty$ ab. Mit zunehmendem Abstand (aber beschränkt auf: $0 < J_d < 1$) reduziert er sich auf $2.5 < J' < \infty$. Hier gilt im Prinzip das Gleiche wie für die NAF- und die CAF-Phase mit dem wesentlichen Unterschied, dass die Approximationen hier bereits ab DLSUB3 nahezu identisch sind. Es ist also davon auszugehen, dass die unter diesen Umständen ermittelte Grundzustandsenergie eine sehr hohe Genauigkeit besitzt. Aufgrund der prinzipiell identischen Ausgangslage mit den in den vorherigen Abschnitten bereits besprochenen Modellen kann an dieser Stelle ohne eine erneute Diskussion direkt das quadratische Extrapolationsschema $O_{2,4}$:

$$\frac{E_0}{N}(m) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^2 + c \left(\frac{1}{m}\right)^4,$$

gewählt werden. Bei der Extrapolation der Resultate der semiklassischen Modellzustände werden alle geraden Approximationsstufen ab LSUB4 und für den Singulettzustand sowohl die geraden als auch die ungeraden Approximationsstufen ab DLSUB3 berücksichtigt. Ein repräsentativer Überblick über die für den gesamten Datensatz ermittelten Fitfunktionen ist dem Anhang dieser Arbeit hinzugefügt (siehe insbesondere die Abbildungen A.16, A.17, A.18 und A.19).

Die Auswertung der extrapolierten Grundzustandsenergien zeigt auch hier wieder, dass die mit unterschiedlichen Modellzuständen gewonnenen Werte, selbst in Regionen nicht optimaler Eignung (gekennzeichnet durch einen verschwindenden Ordnungsparameter), nahezu identisch sind. Dies bedeutet ganz konkret, dass die Grundzustandsenergienäherung des Singulett-Modellzustands im Bereich $J_d \leq 0.5$ mit der des NAF- und im Bereich $J_d > 0.5$ mit der des CAF-Modellzustands übereinstimmt (siehe Abb. 4.19). Ganz grundsätzlich und unabhängig von den Modellzuständen lässt sich festhalten, dass der Einfluss der frustrierenden Diagonalkopplung ungefähr in dem Bereich $0.5 \lesssim J_d \lesssim 0.6$ am größten ist, was sich darin ausdrückt, dass dort auch die Grundzustandsenergie maximal ist und in beide Richtungen, also sowohl für niedrigere als auch für höhere Kopplungsstärken, monoton abnimmt.

Ordnungsparameter

Belastbare Aussagen über die Grundzustandsphasen lassen sich aber auch hier erst durch die Betrachtung der verschiedenen Ordnungsparameter des Modells treffen. Für die beiden mit den semiklassischen NAF- und CAF-Phasen verknüpften Modellzustände sind dabei

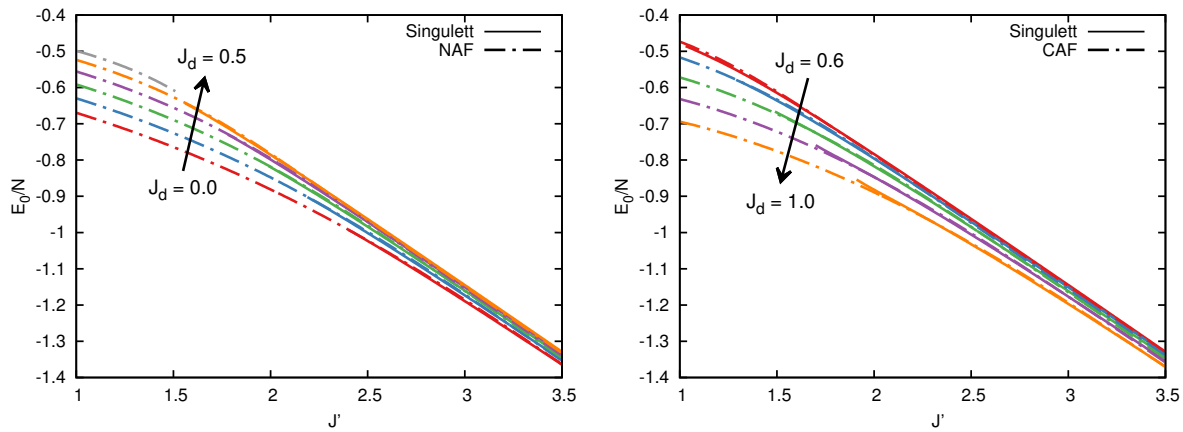


Abbildung 4.19.: Extrapolierte Grundzustandsenergien dargestellt über die Dimerkopplung J' für verschiedene Werte der Diagonalkopplung $0 \leq J_d \leq 1$ (Schrittweite: $\Delta J_d = 0.1$) basierend auf dem NAF-, dem CAF- und dem Singulett-Modellzustand.

wieder die entsprechenden magnetischen Ordnungsparameter (2.67):

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal,}$$

auszuwerten. Da ein solcher magnetischer Ordnungsparameter für den Singulett-Modellzustand (bzw. den daraus abgeleiteten Grundzustandsansatz) immer identisch Null ist (siehe Abschnitt 2.4.5), wird hier wieder der schon beim J - J' -Modell berechnete, auf den Spin-Spin-Korrelationsfunktionen benachbarter Gitterplätze basierende Dimer-Ordnungsparameter (2.137):

$$D_x = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (-1)^{|x_i|+|y_i|} \langle \hat{\mathbf{S}}_{(x_i, y_i)} \hat{\mathbf{S}}_{(x_{i+1}, y_i)} \rangle$$

bestimmt. Beiden Ordnungsparametertypen gemein ist, dass sie deutlich „langsamer“ als die Grundzustandsenergieapproximationen konvergieren. Für die Bestimmung guter Näherungen für die Phasenübergangspunkte ($M \rightarrow 0$, $D_x \rightarrow 0$) spielt die verwendete Extrapolationsformel also eine noch größere Rolle. Als Extrapolationsschema für die semiklassischen Phasen wird wieder die Variante:

$$M(m) = O_{1/2,3/2} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{3}{2}},$$

gewählt, die sich als sehr gut zur Bestimmung von Phasengrenzen erwiesen hat (eine Darstellung der ermittelten Fitfunktionen erfolgt im Anhang in den Abbildungen A.20 und A.21).

Bei der Extrapolation des Dimer-Ordnungsparameters D_x ergeben sich im direkten Vergleich mit dem J - J' -Modell durch die Einführung der zusätzlichen Wechselwirkungen zwischen übernächsten Nachbarn auf dem Gitter zunächst keine Unterschiede. Es zeigt

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

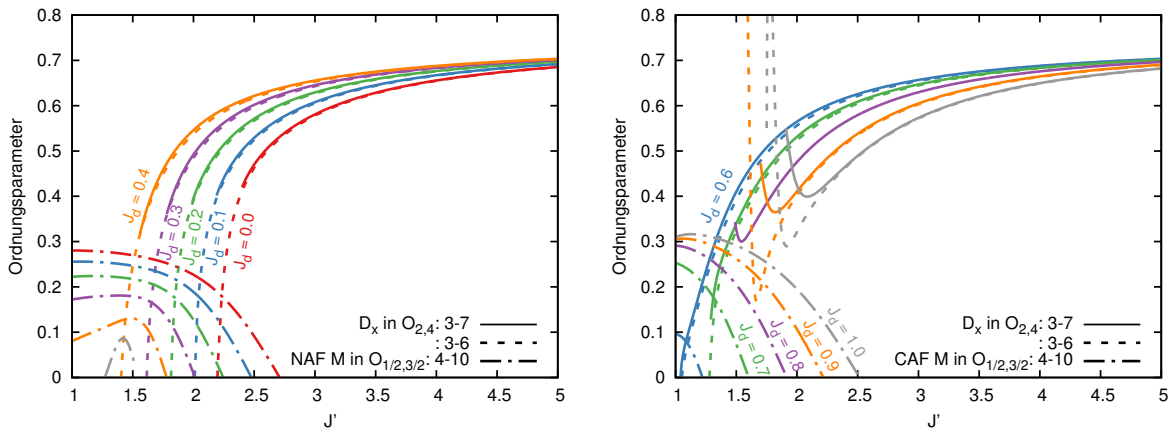


Abbildung 4.20.: Extrapolierte Ordnungsparameter D_x und M über die Dimerkopplung J' für verschiedene Werte der Diagonalkopplung J_d basierend auf dem NAF-, dem CAF- und dem Singulett-Modellzustand.

sich insbesondere, dass das $O_{2,4}$ -Schema weiterhin sehr gut geeignet ist. Mit zunehmendem J_d wird aber immer deutlicher, dass das O_{ex} -Schema zumindest in der Nähe der Phasenübergänge ($D_x \rightarrow 0$) und der Terminationspunkte der Lösungsalgorithmen deutlich stärker von der anschaulichen Idealkurve abweicht, weshalb das $O_{2,4}$ -Schema:

$$D_x(m) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4,$$

im Folgenden bevorzugt wird (siehe dazu die Abbildungen A.22 und A.23 im Anhang). Wie schon beim J - J' -Modell zeigt sich auch hier, dass der extrapolierte Ordnungsparameter bis zum Terminationspunkt der *Direkten Iteration* in der DLSUB7-Approximation endlich bleibt. Dieses Phänomen betrifft, mit Ausnahme der Region $0.5 < J_d \leq 0.6$, den gesamten Parameterbereich der Diagonalkopplung. Da das J - J' -Modell einen Spezialfall des J - J' - J_d -Modells (für $J_d = 0$) darstellt, scheint auch hier die mögliche Existenz einer Zwischenphase plausibel, in der sich die Ausläufer der dimerisierten Phase mit den in diesem verallgemeinerten Modell auftretenden semiklassischen Phasen überlagern.

Zur Bestimmung der unteren Grenzen dieser hypothetischen Koexistenzphasen wird daher wieder auf die Vergrößerung der Lösungsmenge des Singulett-Gleichungssystems durch die Verwendung des *Newton-Raphson-Verfahrens* zurückgegriffen. Dies gelang auch hier wieder nur bis zur Näherungsstufe DLSUB6. Eine gemeinsame Darstellung der extrapolierten Ordnungsparameter aller verwendeten Modellzustände erfolgt in den Abbildungen 4.20.

Hier wird deutlich, dass der Dimer-Ordnungsparameter für $J_d > 0.7$ nach oben ausbricht, das heißt, dass sich in der Nähe des Terminationspunkts ab DLSUB6 deutliche Abweichungen vom Monotonieverhalten der Approximationen zeigen, die sich in DLSUB7 nochmals verstärken. Eine Darstellung der Korrelationsfunktionen am Beispiel $J_d = 1$

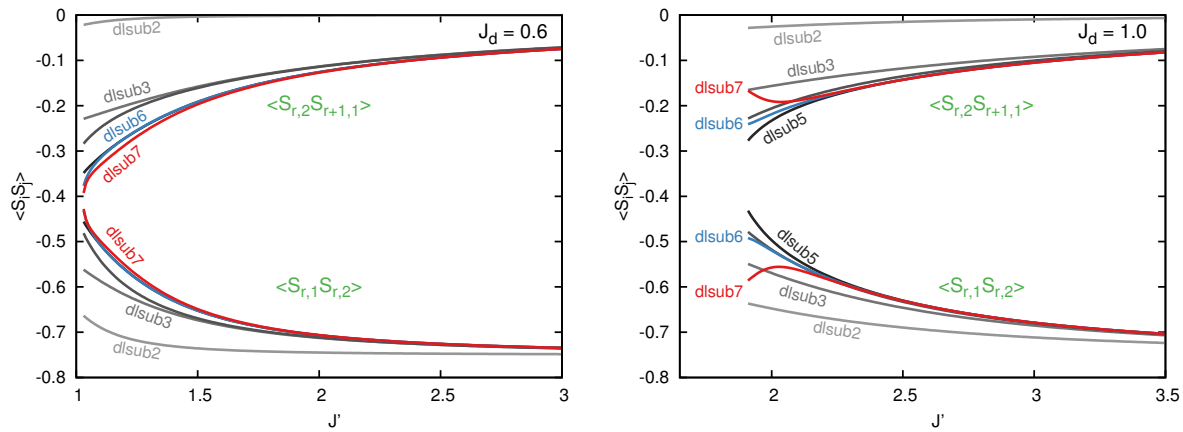


Abbildung 4.21.: Korrelationsfunktionen dargestellt über die Dimerkopplung J' . Die linke Abbildung zeigt die „normale“ Entwicklung (am Beispiel $J_d = 0.6$) einer Angleichung der Dimer- und der Zwischendimerkorrelationen bei Annäherung an den isotropen Grenzfall. Die rechte Abbildung verdeutlicht das abweichende Verhalten ab $J_d > 0.7$ (am Beispiel $J_d = 1$).

verdeutlicht, dass dies sowohl auf den Anstieg des Betrages der reinen Dimerkorrelationen $\langle S_{r,1} S_{r,2} \rangle$, als auch den Abfall des Betrages der Zwischendimerkorrelationen $\langle S_{r,2} S_{r+1,1} \rangle$ in x -Richtung ab DLSUB6 zurückzuführen ist (siehe Abbildung 4.21). Über die Ursachen lässt sich nur spekulieren. Eine mögliche Erklärung ergibt sich aus der bereits im Abschnitt 2.4.5, in dem der Dimer-Ordnungsparameter eingeführt wurde, beschriebenen Tatsache, dass der Singulettzustand kein Eigenzustand des Dimeroperators ist. Es ist also durchaus denkbar, dass hier ein Übergang in eine alternative dimerisierte Phase stattfindet, die aber gerade nicht mehr so gut durch den Singulett-Modellzustand beschrieben werden kann. Ein weiterer Punkt betrifft die Tatsache, dass das hier betrachtete Regime ($J_d > 0.7$) durch verhältnismäßig große Übernächste-Nachbar-Wechselwirkungen gekennzeichnet ist und die in den Dimer-Ordnungsparameter eingehenden Nächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen für $J' \rightarrow J$ immer kleiner werden.¹²

Eine genauere Betrachtung der Approximationen (siehe Abb. 4.22) macht zumindest deutlich, dass eine Extrapolation des Ordnungsparameters spätestens ab $J_d = 0.9$ keine sinnvollen Aussagen über den Phasenübergang mehr ermöglicht. Es ist allerdings auffällig, dass die ab $J_d = 0.5$ bzw. 0.6 ermittelten Übergänge ($D_x = 0$) zur kollinear gestreiften Phase deutlich dichter an den Terminationspunkten liegen (siehe Tabelle 4.4), so dass eine Fortsetzung der $D_x = 0$ Linie unter Verwendung der Terminationspunkte auf eine plausible vorläufige Phasengrenze führt. Ein unter Einbeziehung sämtlicher Ordnungsparameter ermitteltes, vollständiges Phasendiagramm ist in Abbildung 4.23 dargestellt.

¹²Im klassischen J_1 - J_2 -Modell ergibt sich bereits ab $\frac{J_2}{J_1} > 0.5$ eine völlige Entkoppelung der beiden Untergitter.

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

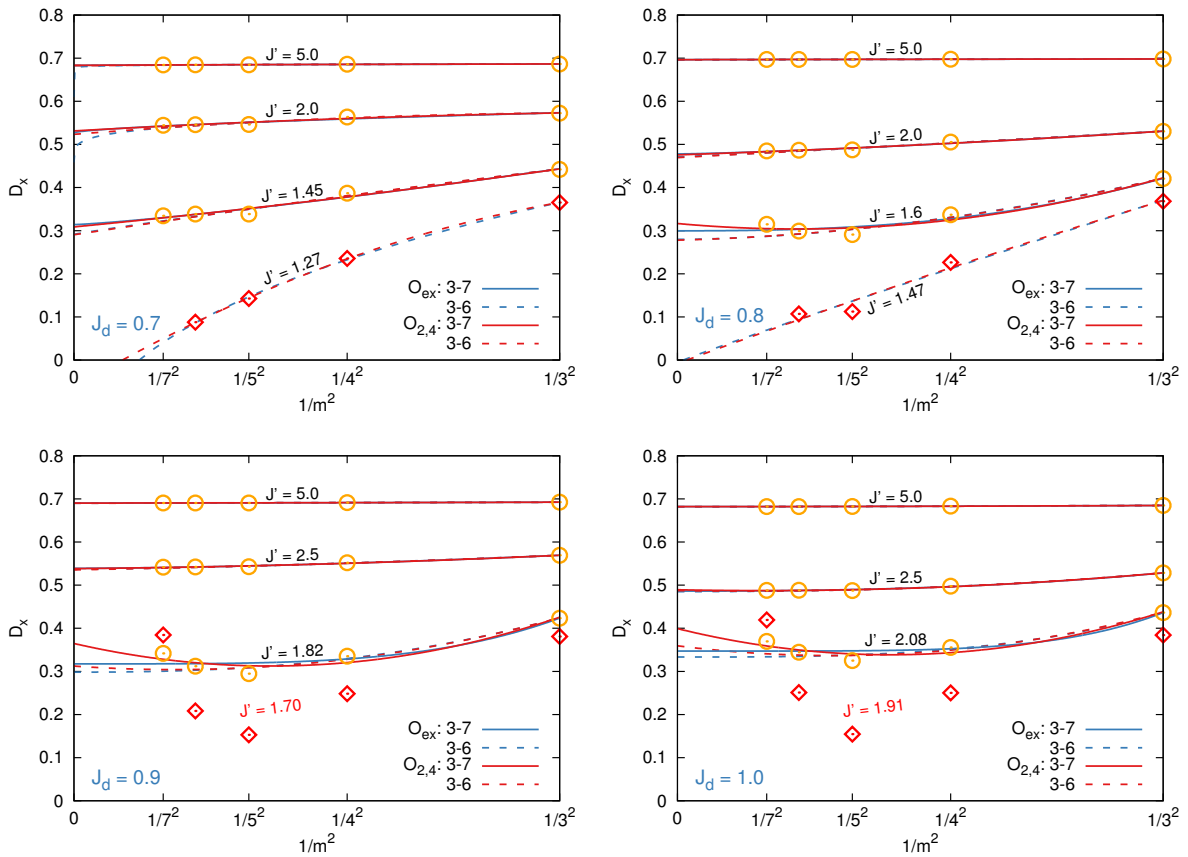


Abbildung 4.22.: Darstellung der DLSUB3 bis DLSUB7 Approximationen und Extrapolationen des Dimer-Ordnungsparameters ab $J_d = 0.7$.

Der Grenzfall $J' \rightarrow J = 1$

Eine weitere Besonderheit ergibt sich beim Übergang $J' \rightarrow 1$ (zum isotropen J_1 - J_2 -Modell), für den das Verschwinden sämtlicher Ordnungsparameter in der Umgebung von $J_d \approx 0.5$ Hinweise auf die Existenz einer zusätzlichen, vermutlich magnetisch ungeordneten Phase liefert. Es ist zunächst festzuhalten, dass Untersuchungen des J_1 - J_2 -Modells mittels variationeller Monte-Carlo-Methoden, der SWT und der DMRG, bereits deutliche Hinweise auf eine Spinflüssigkeit für $0.41 \lesssim J_2/J_1 \lesssim 0.62$ liefern konnten [99, 119, 120]. Eine solche Phase ist sehr gut mit den in dieser Arbeit mit der CCCM ermittelten Nullstellen der extrapolierten magnetischen Ordnungsparameter vereinbar, da sich aus diesen eine nicht magnetisch geordnete Region im Bereich $0.447 \leq J_d \leq 0.586$ (für $J' = J = 1$) ableitet. Bemerkenswert ist allerdings, dass der Dimer-Ordnungsparameter für $J' = 1$ nicht vollständig verschwindet. Es zeigt sich, dass dieser innerhalb des Teilabschnitts $0.543 \leq J_d \leq 0.55$ endlich bleibt, allerdings mit einem relativ geringen Maximum von $9 \cdot 10^{-4}$ (siehe Abb. 4.23 rechts). Dies ist möglicherweise ein Hinweis auf eine dimerisierte Phase, unter Umständen sogar auf eine Koexistenz mit einer Spinflüssigkeit mit Anregungslücke.

Eine Erhöhung der Dimerkopplung $J' > 1$ führt schließlich zu der bereits angesprochenen

Tabelle 4.4.: Kritische Punkte des J - J' -Modells: Terminationspunkte des Singulett-Ansatzes (J'_{TP}), Nullpunkte von D_x (J'_c) und die Nullpunkte der magnetischen Ordnungsparameter M (J'_s).

J_d	0.0	0.1	0.2	0.3	0.4	0.5	0.6	0.7	0.8	0.9	1.0
J'_{TP}	2.39	2.18	1.98	1.78	1.56	1.29	1.03	1.29	1.49	1.70	1.91
J'_c	2.18	2.01	1.81	1.61	1.41	1.16	1.05	1.27	1.47	—	—
$J'_{s,\text{NAF}}$	2.71	2.48	2.25	2.01	1.78	—	—	—	—	—	—
$J'_{s,\text{CAF}}$	—	—	—	—	—	—	1.20	1.61	1.94	2.26	2.57

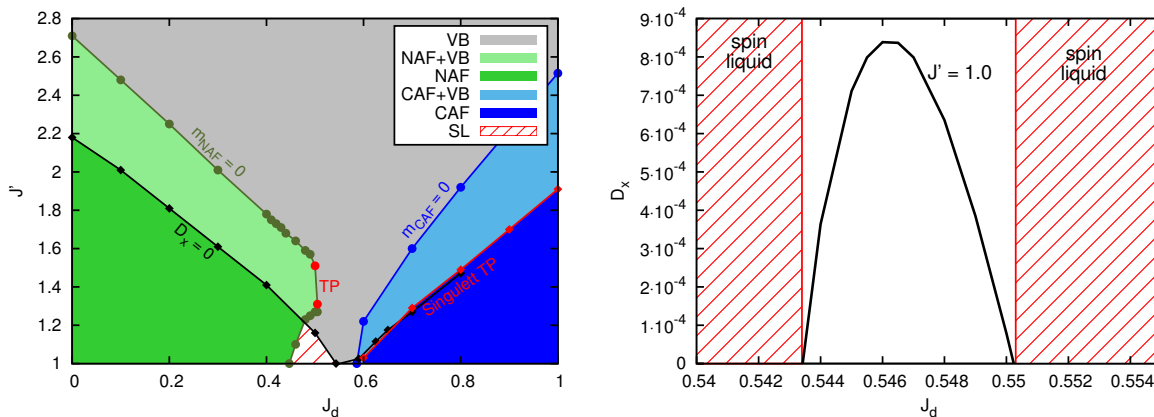


Abbildung 4.23.: Die linke Abbildung zeigt das ermittelte Phasendiagramm des J - J' - J_d -Modells. Die rechte Abbildung zeigt den Dimer-Ordnungsparameter für den isotropen Fall ($J' = J$).

Vergrößerung der dimerisierten Region. Es zeigt sich aber auch, dass sich die Region, in der es weder Hinweise auf eine semiklassische magnetische Fernordnung noch auf eine dimerisierte Phase gibt, nicht sofort schließt. Es ist also denkbar, dass die bei $J' = 1$ gefundene Spinflüssigkeitsphase noch bis $J' \approx 1.22$ weiter besteht.

4.3.3. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der Einfluss einer frustrierenden antiferromagnetischen Wechselwirkung J_d auf den Grundzustand des bereits behandelten J - J' -Modells untersucht. Mittels der etablierten Standardimplementierung der CCM (der sogenannten CCCM) und eines im Zuge der vorliegenden Arbeit zusätzlich entwickelten Programms (hier DCCM genannt), wurden unter Verwendung dreier verschiedener Modellzustände die Energie sowie die kritischen Austauschparameter der zugänglichen Grundzustandsphasen ermittelt. Neben der dimerisierten Phase (bzw. der VBS-Phase), der Néelphase sowie der kollinear gestreiften Phase, deren Grenzen hinreichend genau bestimmt werden konnten, ergaben sich außerdem Hinweise auf die Existenz zweier zusätzlicher Koexistenzphasen, in denen jeweils neben der dimerisierten Phase eine der beiden semiklassischen Phasen vorzuliegen scheint.

4. Modelle mit „Valence-Bond Solid“-Phasen

Außerdem konnte die bereits in anderen Untersuchungen zum J_1 - J_2 -Modell beschriebene Spinflüssigkeitsphase auch im hier untersuchten allgemeineren Modell im Rahmen der CCM bis ungefähr $J' \approx 1.22$ indirekt nachgewiesen werden. Weiterhin ergaben sich auch direkt bei $J' = J = 1$ noch Hinweise auf die Existenz der versetzten Dimerphase. Der entsprechende Ordnungsparameter ist allerdings relativ klein, so dass für belastbarere Aussagen weitere Untersuchungen nötig sind.

4.4. Der Spin-1/2-HAFM auf dem Star-Gitter

Dieser letzte Abschnitt zu den Modellen mit VBS-Phasen behandelt den Spin-1/2-HAFM auf dem Star-Gitter (siehe Abbildung 4.24). Dieses Modell wurde in erster Linie deshalb ausgewählt, weil die von den bisherigen Gittern abweichende Topologie des Star-Gitters interessante technische und physikalische Unterschiede bei der Anwendung der DCCM erwarten lässt. Der HAFM auf dem Star-Gitter ermöglicht deshalb, neben der Untersuchung neuer physikalischer Fragestellungen, insbesondere die Demonstration weiterer Anwendungsmöglichkeiten der DCCM.

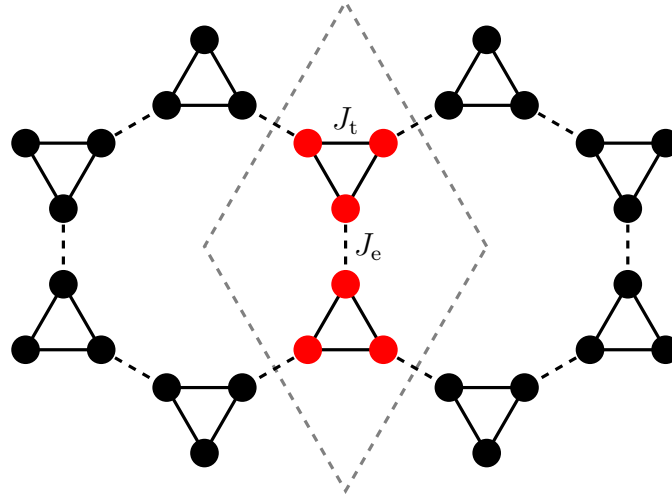


Abbildung 4.24.: Star-Gitter mit 6 Gitterplätzen pro Elementarzelle.

Das Star-Gitter ist in gewisser Weise mit dem im zweiten Kapitel dieser Arbeit untersuchten Kagome-Gitter verwandt, so lässt es sich durch die Aufspaltung bzw. Verdoppelung der vorhandenen Gitterplätze und die Hinzunahme einer neuen Bindungsart (den sogenannten *erweiterten Bindungen* oder auch „*Extended Bonds*“) zwischen den dabei voneinander getrennten Dreiecksstrukturen aus diesem erzeugen. Diese neuen Zwischenbindungen unterscheiden sich topologisch von den ursprünglichen Kagomebindungen (jetzt *Dreiecksbindungen* oder „*Triangle Bonds*“ genannt) in der Form, dass sie immer isoliert auftreten. Werden die erweiterten Bindungen nun noch durch eine eigenständige antiferromagnetische Austauschwechselwirkungsstärke $J_e > 0$ im Hamiltonoperator des HAFM berücksichtigt:

$$\hat{H} = J_t \sum_{\langle i,j \rangle_1} \hat{S}_i \hat{S}_j + J_e \sum_{\langle i,j \rangle_2} \hat{S}_i \hat{S}_j \quad \text{mit} \quad J_e, J_t > 0, \quad (4.15)$$

wird das Modell auch als: „eindeutig bezüglich J_e dimerisierbar“ bezeichnet [122]. Die spitzen Klammern stehen hierbei wieder für eine Summation nur über nächste Nachbarn, wobei allerdings zwischen Gitterplätzen mit J_t -Kopplung (Index 1) und J_e -Kopplung (Index 2) unterschieden wird. Bei einem entsprechend großen Verhältnis der beiden Nächsten-Nachbar-Kopplungen ($J_e \gg J_t$) liegt in so einem Fall immer ein dimerisierter Grundzustand

vor, der durch die Bildung von Singulettts auf den J_e -Bindungen charakterisiert ist (siehe Abbildung 4.25).

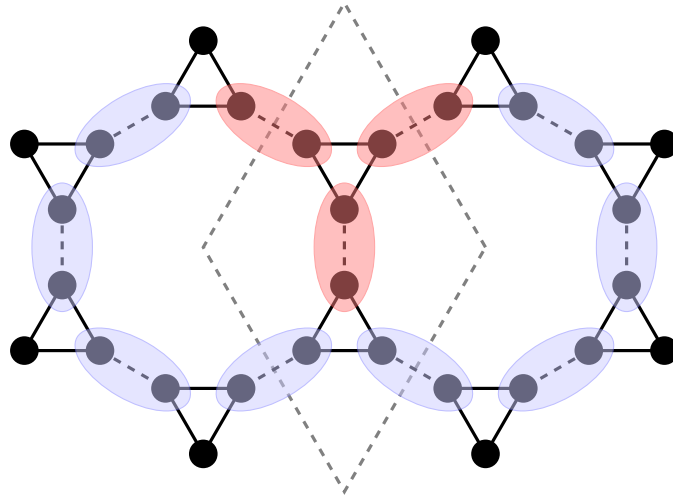


Abbildung 4.25.: J_e -VBS-Zustand auf dem Stargitter für $J_e \gg J_t$ mit 3 Dimeren pro Elementarzelle.

Untersuchungen mittels *Exakter Diagonalisierung* konnten belegen, dass ein solcher J_e -dimerisierter oder auch VBS-Zustand (J_e -VBS) mindestens bis $J_e = J_t$ bestand hat und dass der Grundzustand auch darüber hinaus keine magnetische Fernordnung aufweist [123, 124]. Weitere Veröffentlichungen der letzten Jahre zeigten schließlich, dass es sich bei der verbliebenen quantenparamagnetischen Phase (QPM) im Regime $J_t \gg J_e > 0$ mit hoher Sicherheit um eine weitere VBS-Phase handelt, genauer um einen dimerisierten Zustand mit einer aus 18 Gitterplätzen bestehenden Elementarzelle (siehe Abb. 4.26) [125, 126].

Charakteristisch für diese zusätzliche VBS-Phase ist eine Dimerbildung auf Gitterplatzpaaren beider Kopplungstypen, die sich aus der nicht eindeutigen Dimerisierbarkeit bezüglich der J_t -Bindungen ergibt. Die hierbei entstehende Dimeranordnung bzw. Symmetriebrechung entspricht jener des bereits für das Kagome-Gitter eingeführten semi-klassischen „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustandes (siehe Kapitel 3.1), weshalb dieser Zustand auch als „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-VBS bezeichnet wird. Die Phasengrenze zwischen diesem Zustand und dem J_e -VBS konnte durch die neueren Untersuchungen konkretisiert und dabei auf einen deutlich niedrigeren Wert bei $J_t/J_e = 2 - 2.5$ bzw. für $J_t = 1$ auf $J_e = 0.4 - 0.5$ verschoben werden [126].

4.4.1. Modellzustandsauswahl

Für die nähere Bestimmung dieses kritischen Übergangspunkts zwischen den beiden VBS-Phasen ist die DCCM offensichtlich ideal geeignet, da sich die beiden dimerisierten Zustände theoretisch problemlos als Modellzustände darstellen lassen. Dies ist zumindest für den J_e -VBS auch korrekt, es stellte sich allerdings heraus, dass die hohe Zahl von 18

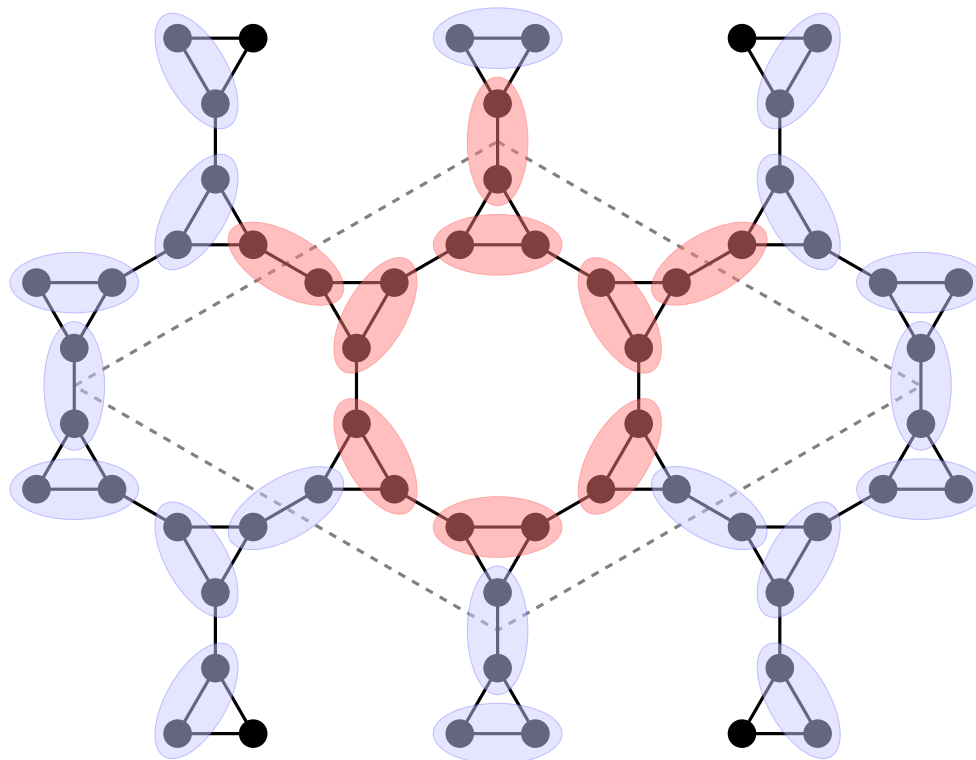


Abbildung 4.26.: „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-VBS mit 18 Gitterplätzen bzw. 9 Dimeren pro Elementarzelle.

Gitterplätzen (dies entspricht neun Dimeren) in der Elementarzelle des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-VBS mit der gegenwärtigen Implementation der DCCM noch zu ineffizient erfolgt und daher nur mit einem nicht vertretbar hohen Zeit- und Ressourcenbedarf möglich ist.¹³ Die Ursachen dafür lassen sich prinzipiell beheben, die dafür nötigen Arbeitsschritte sind allerdings aufwendig und konnten daher im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt bzw. abgeschlossen werden. Es zeigte sich allerdings, dass eine Beschreibung des Phasenübergangs mit der DCCM auch mit der Beschränkung auf den J_e -VBS-Modellzustand möglich war.

Im Zuge einer Arbeit zu den sogenannten *Archimedischen Gittertypen* wurde auch die CCCM bereits einmal zur Untersuchung des isotropen HAFM auf dem Star-Gitter (im Spezialfall $J_e = J_t = 1$) angewendet [51]. Wie bereits beim HAFM auf dem Kagome-Gitter wurde sich auch hier bei der Auswahl der Modellzustände auf das klassische Modell bezogen. Im Prinzip ist die Situation in beiden Fällen praktisch identisch, so gilt auch für das Star-Gitter, dass die energetisch günstigste Spinorientierung auf den auftretenden Dreiecksbindungen bei einer Winkeldifferenz von 120° erreicht ist. Da die J_e -Bindungen unfrustriert sind, ist eine parallele bzw. antiparallele Orientierung entsprechend gekoppelter Spins ohne Einschränkung mit den Spinorientierungen auf den Dreiecken verträglich. Die Grundzustandsentartung des klassischen HAFM auf dem Star-Gitter ist damit also

¹³Der verwendete Algorithmus zur Erzeugung des CCM-Gleichungssystems skaliert nicht sehr gut mit der Zahl der Gitterplätze pro Elementarzelle und benötigt daher bereits bei der DLSUB3-Approximation auf einem normalen Rechner mit einfachem Mehrkernprozessor so lange, dass die Rechnung nach einigen Tagen abgebrochen werden musste (normalerweise dauert sie nur wenige Sekunden).

völlig analog zu jener auf dem Kagome-Gitter (siehe dazu Kapitel 3.1) und ist damit auch hier die Grundlage für die Verwendung der angepassten Versionen des „ $q = 0$ “- und des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustands auf dem Star-Gitter. In der genannten Arbeit konnten allerdings erwartungsgemäß keine Hinweise auf entsprechende magnetische Fernordnungen gefunden werden, dennoch gelten die ermittelten Grundzustandsenergien als sehr genau. Es bietet sich also an, den in dieser Arbeit vorgestellten DCCM-Resultaten entsprechende CCCM-Vergleichsdaten gegenüberzustellen und dafür neue Berechnungen basierend auf den genannten semiklassischen Modellzuständen für den gesamten untersuchten J_e -Parameterbereich durchzuführen.

4.4.2. Resultate

Auf der Basis aller genannter Modellzustände wurden zunächst sämtliche bestimmbar Approximationen für die Grundzustandsenergie und die jeweiligen Ordnungsparameter für verschiedene Werte der Kopplungsstärke J_e berechnet. Die höchsten erreichten Approximationsstufen lagen für den VBS-Modellzustand bei DLSUB5 und für die beiden semiklassischen „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustände jeweils bei LSUB10.

Grundzustandsenergie

Zur Auswertung und zum Vergleich der berechneten Grundzustandsenergiesresultate mussten aus den ermittelten Rohdaten bzw. Approximationen wieder Extrapolationen berechnet werden. Wie auch in den vorangegangenen Kapiteln immer wieder gezeigt wurde, gibt es für die Grundzustandsenergie im Prinzip nur das gut funktionierende vom Modellzustand unabhängige $O_{2,4}$ -Schema:

$$E/N(m) = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4, \quad a = E/N(m \rightarrow \infty),$$

das auch in [51] für den Spezialfall $J_e = J_t = 1$ verwendet wurde. Für den hier betrachteten erweiterten Parameterbereich der Kopplungsstärken: $0 < J_e < 10$ bei $J_t = 1$, erwies sich das Schema erneut als durchgehend sehr gut geeignet. Eine Übersicht der ermittelten Extrapolationsfunktionen für einige ausgewählte Kopplungsstärken sowie eine Darstellung sämtlicher extrapolierten Grundzustandsenergien ist in den Abbildungen 4.27 zu finden.

Im direkten Vergleich zeigt sich, dass die unter Verwendung verschiedener Modellzustände berechneten Grundzustandsenergien praktisch identisch sind. Auch für das hier untersuchte Modell ist dies wieder nicht weiter verwunderlich, da die Grundzustandsenergie, im Gegensatz zu allen anderen Systemobservablen, in der CCM am schnellsten konvergiert und dabei weniger stark von den Modellzuständen abhängt.¹⁴ Die Übereinstimmung mit den

¹⁴Hierbei gibt es zwei Anmerkungen: 1.) Ursächlich für die schnelle Konvergenz ist die Tatsache, dass für

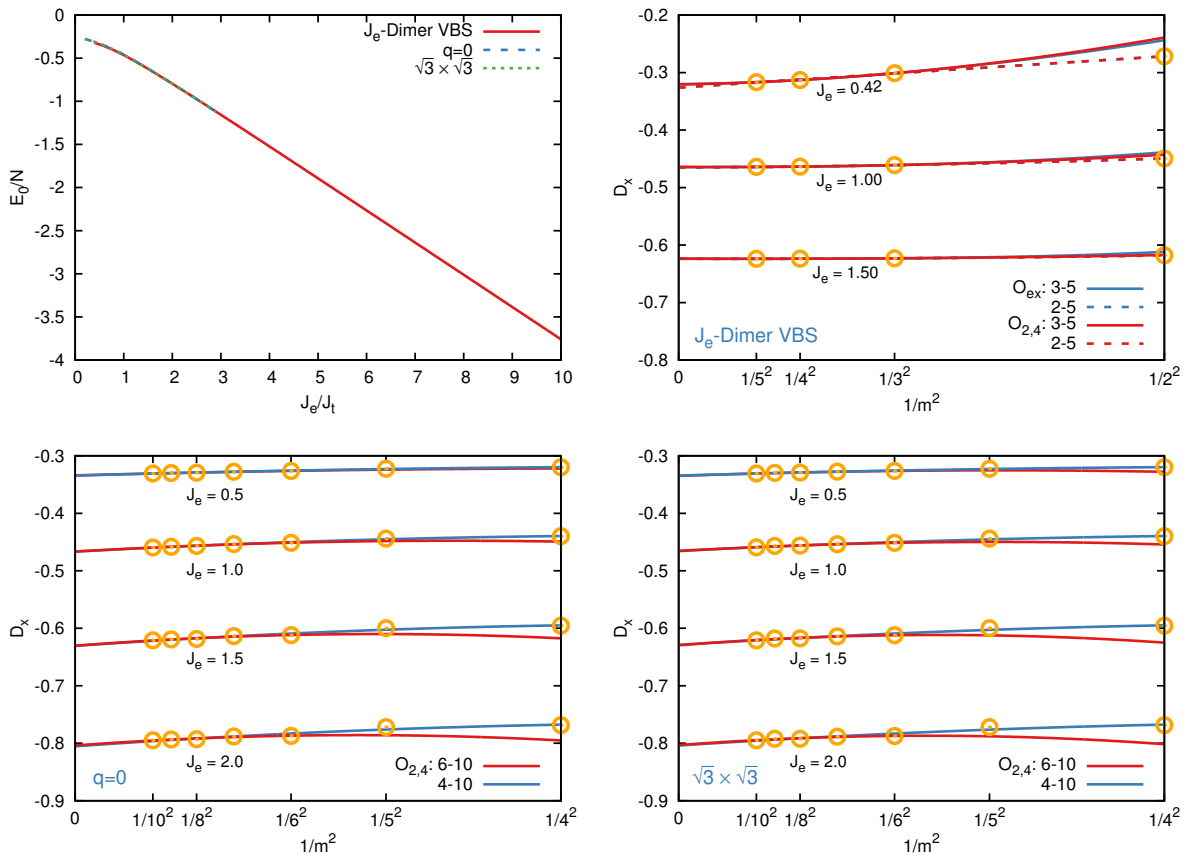


Abbildung 4.27.: (oben links) Grundzustandsenergien für alle drei verwendeten Modellzustände. (rest) Fitfunktionen für die Extrapolation der Grundzustandsenergie für verschiedene Werte der J_e -Wechselwirkung, nach verwendetem Modellzustand getrennt.

CCCM-Resultaten ist daher als eine erneute Bestätigung der „korrekten“ Implementierung der DCCM anzusehen. Der wesentliche Unterschied zwischen den beiden Resultaten betrifft das Konvergenzverhalten, so zeigt sich erwartungsgemäß, dass der J_e -VBS-Modellzustand im gesamten Bereich $J_e > J_t$ (insbesondere für $J_e \gg J_t$) geeignet ist, während die beiden semiklassischen Modellzustände in der LSUB10-Approximation ab $J_e \approx 2.9$ keine Resultate mehr liefern können (mit höheren Näherungsstufen sollte sich diese Grenze zu noch niedrigeren Werten verschieben).

die Berechnung einer Approximation der Grundzustandsenergie nur der exponentielle und in der Praxis erwiesenermaßen genauere „Ket“- nicht aber der nur lineare „Bra“-Grundzustandsansatz benötigt wird. 2.) Die Grundzustandsenergie zeigt natürlich auch Unterschiede bei der Verwendung verschiedener Modellzustände. Dies gilt auch für wirklich gleichartig geeignete Modellzustände, wie beispielsweise bei den sowohl beim Kagome-Gitter als auch hier beim Star-Gitter verwendeten semiklassischen „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzuständen (bei ersterem ist sie sogar entscheidend für die Grundzustandsselektion), diese Unterschiede zeigen sich allerdings frühestens ab der dritten (im Normalfall eher vierten) Nachkommastelle.

Grundzustandsselektion möglicher semiklassischer Phasen

Ein weiterer interessanter Aspekt dieses Modells betrifft die Vermutung, die Selektion möglicher semiklassischer Phasen des HAFM auf dem Star-Gitter könnte ähnlich zu jener des Kagome-HAFM verlaufen. Aufgrund der eindeutigen Resultate lässt sich an dieser Stelle aber bereits vorwegnehmen, dass dies für das hier untersuchte Modell mit Spinquantenzahl $s = 1/2$ und die verwendeten „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustände nicht bestätigt werden konnte.

Man kann zunächst festhalten, dass die Approximationen der Grundzustandsenergien bis einschließlich der Stufe LSUB5 für beide Modellzustände über den gesamten untersuchten Bereich der Kopplungsstärke J_e absolut identisch sind. In den höheren Näherungsstufen treten zwar durchaus Energiedifferenzen auf, diese folgen aber keinem erkennbaren Schema, d.h. ihre Beträge zeigen kein von der Wechselwirkungsstärke oder der Approximationsstufe abhängiges klares Monotonieverhalten, wie es beim Kagome-HAFM der Fall ist (siehe Abbildung 4.28).

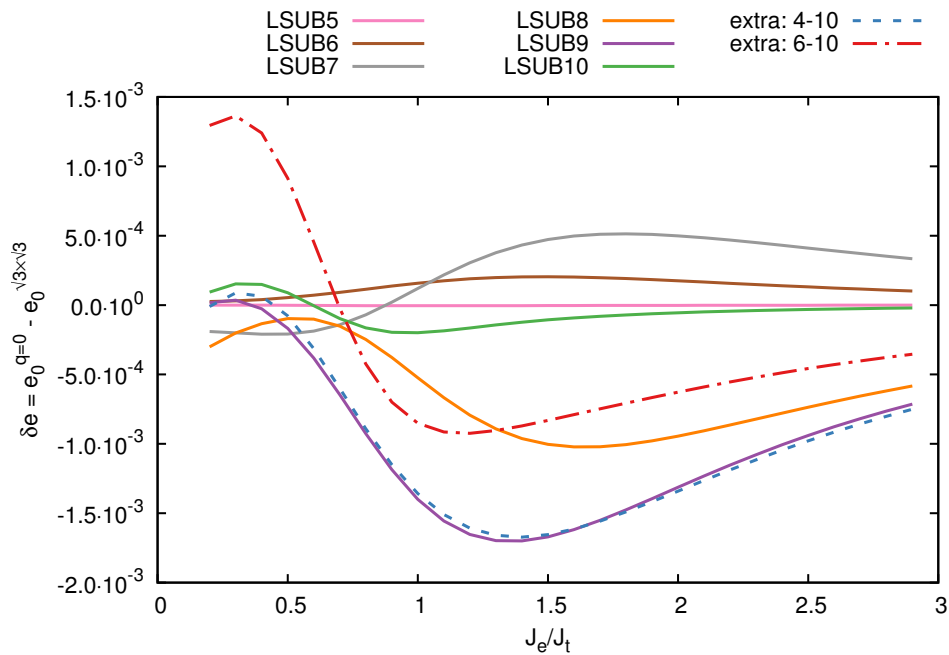


Abbildung 4.28.: Darstellung Energiedifferenzen der semiklassischen Modellzustände.

Die einzige erkennbare Tendenz, zeigt sich in der Abnahme des Betrages der Energiedifferenzen aller Approximationsstufen und Extrapolationen mit der Zunahme der Kopplungsstärke. Dies hängt vermutlich damit zusammen, dass die physikalischen Eigenschaften im Bereich $J_e > J_t$ zunehmend durch die nicht frustrierten J_e -Bindungen bestimmt werden, während die Unterschiede zwischen den verwendeten Modellzuständen praktisch ausschließlich durch die vom Kagome-Gitter „geerbten“ frustrierten Dreiecksbindungen bestimmt werden. Man muss an dieser Stelle aber auch deutlich machen, dass

die Energiedifferenzen des „ $q = 0$ “- und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustands, verglichen mit ihren Gegenstücken beim KHAFM (von einer Ausnahme bei LSUB9 abgesehen) mindestens eine Zehnerpotenz geringer sind und damit nicht zwangsläufig physikalischen Ursprungs sein müssen. Es ist durchaus denkbar, dass die fehlende klare Systematik der Energiedifferenzen ausschließlich auf die Nichtvariationalität der CCM bzw. auf die Vielfalt möglicher weiterer Lösungen des nichtlinearen Ket-Gleichungssystems zurückzuführen ist. Insofern wäre das hier dargestellte Resultat eher als Hinweis auf darauf zu verstehen, dass hier keine eindeutig „ $q = 0$ “ oder „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “ lokal semiklassisch geordneten Grundzustandsphasen existieren (zumindest nicht für $s = 1/2$). Ein anderes Ergebnis wäre aber streng genommen auch nicht mit der angenommenen vollständigen Dimerisierung des Grundzustands vereinbar.

Ordnungsparameter

Bereits in [51] wurde gezeigt, dass der magnetische Ordnungsparameter (2.67):

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal,}$$

für die beiden semiklassischen Modellzustände im Spezialfall $J_e = J_t = 1$ negativ bzw. nicht endlich ist. Dies änderte sich auch nicht für den hier untersuchten erweiterten Parameterbereich der J_e -Kopplung. Das bedeutet, dass sich auch mit der CCM keine Hinweise auf eine mögliche magnetische Fernordnung finden ließen und deshalb auf eine weitere ausführliche Auswertung an dieser Stelle verzichtet werden kann.

Angelehnt an die Dimer-Ordnungsparameter für das eindimensionale J_1 - J_2 -Modell und das J - J' -Modell auf dem Quadratgitter, wurde für das Star-Gitter der folgende Dimer-Ordnungsparameter definiert:

$$D = \frac{2}{N} \left(\frac{1}{2} \sum_{\langle J_{ij}=J_t \rangle} \langle \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j \rangle - \sum_{\langle J_{ij}=J_e \rangle} \langle \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_j \rangle \right). \quad (4.16)$$

Für diesen werden im Wesentlichen die Differenzen sämtlicher J_e - und J_t -Korrelationsfunktionen aufsummiert, wobei die letzteren doppelt so häufig auftreten aber aus Symmetriegründen identisch sein müssen und daher zur Kompensation mit dem Vorfaktor 1/2 versehen werden. Eine solche Konstruktion besitzt die gleichen Eigenschaften wie die bisher verwendeten Dimer-Ordnungsparameter; zum einen nimmt sie innerhalb der auftretenden Singulettphase (für $J_e \gg J_t$ bzw. $J_e \rightarrow \infty$), in welcher die J_t -Korrelationsfunktionen verschwinden, den Wert $D = 0.75$ an und zum anderen ist sie Null, wenn alle Nächsten-Nachbar-Korrelationsfunktionen gleich sind. Für die Bestimmung des geeignetsten Extrapolationsschemas wurden zunächst wieder alle bisher verwendeten Varianten geprüft. Es zeigte sich aber auch hier wieder, dass die beiden üblicherweise für den magnetischen

Ordnungsparameter M verwendeten Schemata:

$$O_{1,2}(m) = a + b \left(\frac{1}{m} \right) + c \left(\frac{1}{m} \right)^2, \quad (4.17)$$

$$O_{\frac{1}{2}, \frac{3}{2}}(m) = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m} \right)^{\frac{3}{2}}, \quad (4.18)$$

am wenigsten geeignet sind, da diese zwar bestenfalls durchaus mit den anderen Fitfunktionen übereinstimmen, aber gerade im Grenzfall $m \rightarrow \infty$ teilweise recht stark von der Idealkurve abweichen. Die beiden Schemata:

$$O_{2,4}(m) = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4, \quad (4.19)$$

$$O_{\text{ex}}(m) = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^c, \quad (4.20)$$

können auch bei diesem Modell wieder durch eine in allen Bereichen plausible Beschreibung der Abhängigkeit des Dimer-Ordnungsparameters von der Approximationsstufe überzeugen (siehe Abbildung 4.29 rechts). Aufgrund der relativ geringen Anzahl von nur vier berechneten Approximationsstufen müssen die beiden Extrapolationen allerdings als etwas ungenauer als in den vorherigen Kapiteln angesehen werden, dies gilt insbesondere in der Nähe des Phasenübergangspunkts ($D = 0$). Eine Darstellung der Extrapolationen über das Verhältnis der beiden Kopplungsstärken erfolgt ebenfalls in Abbildung 4.29 (links).

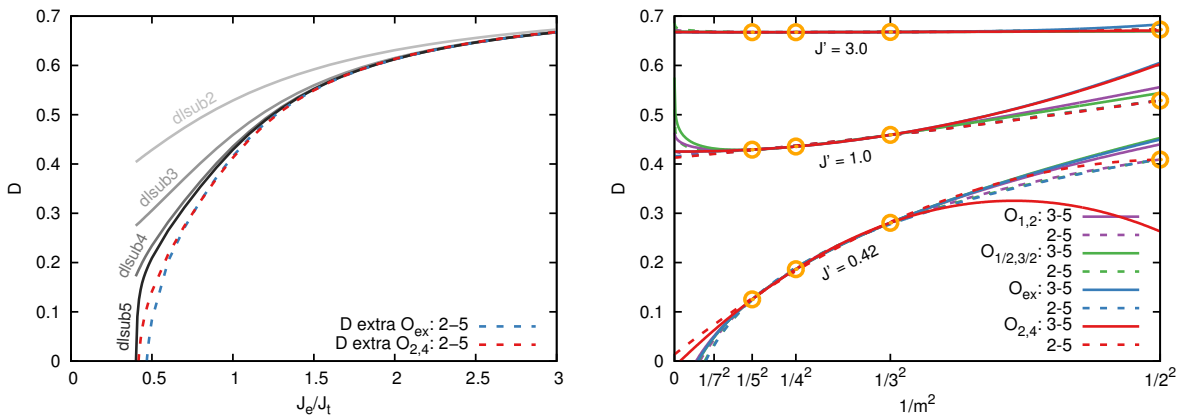


Abbildung 4.29.: (links) Approximationen des Dimer-Ordnungsparameters D und die daraus ermittelten Extrapolationen aufgetragen über die Stärke der Nächsten-Nachbar-Wechselwirkungen. (rechts) Darstellung der verschiedenen ermittelten Fitfunktionen für repräsentative Werte der J_e -Kopplung (bei $J_t = 1$).

Die Darstellung macht deutlich, dass nicht nur die Extrapolationen des Ordnungsparameters D , sondern auch bereits seine DLSUB5-Approximation Nullstellen innerhalb der in [126] gefundenen Region: $J_e = 0.4 - 0.5$ besitzen (eine Übersicht findet sich in Tabelle 4.5).

Tabelle 4.5.: Nullstellen des Dimer-Ordnungsparameters $D(J_e/J_t) = 0$.

Resultat	J_e/J_t
DLSUB5	0.402
Extra O_{ex} : 2-5	0.468
Extra O_{ex} : 3-5	0.429
Extra $O_{2,4}$: 2-5	0.418
Extra $O_{2,4}$: 3-5	0.422
ED [126]	0.4-0.5

4.4.3. Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurden die Ergebnisse einer im Rahmen der vorliegenden Arbeit durchgeführten Anwendung der CCM auf den Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Star-Gitter vorgestellt. Durch die Verwendung der neuen DCCM-Implementierung der CCM gelang es erstmals, den im Regime starker *erweiterter Bindungen* ($J_e \gg J_t$) vorliegenden J_e -VBS-Zustand als Modellzustand einzusetzen. Auf der Basis eines angepassten Dimer-Ordnungsparameters gelang es dabei, den bereits in anderen Veröffentlichungen beschriebenen Übergang in eine weitere, bei $J_t \gg J_e$ angenommene, VBS-Phase zu beschreiben. Der dabei ermittelte Phasenübergangspunkt bei $J_e/J_t \approx 0.42$ stimmt sehr gut mit der in der Fachliteratur dafür angenommenen Region: $J_e/J_t = 0.4 - 0.5$ überein.

Im direkten Vergleich der mit der DCCM bestimmten Grundzustandsenergie mit zusätzlichen, auf der Basis zweier semiklassisch magnetisch geordneter Modellzustände berechneten CCCM-Resultaten, zeigten sich praktisch keine Abweichungen. Dies ist als erneute Bestätigung dafür zu werten, dass die grundsätzliche Konzeption der DCCM korrekt und ihre Realisierung als systematisch anwendbares Werkzeug zur Untersuchung verschiedenster Modelle gelungen ist.

In diesem Zusammenhang konnte auch gezeigt werden, dass die Energien der beiden getesteten CCCM-Modellzustände auch keinen eindeutigen Hinweis auf die systematische Selektion einer kurzreichweitigen magnetischen Ordnung im Grundzustand liefern (zumindest keine „ $q = 0$ “- oder „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung wie sie beim KHAFM im Fall $s = 1/2$ diskutiert wird).

A. Anhang

A.1. Lösungsalgorithmen für das CCM-Gleichungssystem

Die Anwendung der CCM auf Quantenspinsysteme besteht im Wesentlichen aus zwei Schritten, zum einen in der Verarbeitung der physikalischen Eigenschaften des untersuchten Systems, die schließlich in der Aufstellung der CCM-Gleichungssysteme münden, und zum anderen in der (numerischen) Lösung dieser Gleichungssysteme und damit der Bestimmung der für die Berechnung sämtlicher Systemobservablen benötigten Korrelationskoeffizienten $\{s_I, \tilde{s}_I\}$.

Die Bearbeitung des ersten Schritts wurde bereits in Kapitel 2 dieser Arbeit ausführlich beschrieben, daher beschäftigt sich dieser Abschnitt nun mit einigen technischen Details, die im Zusammenhang mit der Bestimmung der Korrelationskoeffizienten von hervorgehobener Bedeutung sind.

A.1.1. Struktur des Ket-Gleichungssystems

Die größte technische Hürde bei der Anwendung der CCM liegt in der Lösung des Ket-Gleichungssystems (2.13):

$$\langle \Phi_0 | \hat{C}_I e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} | \Phi_0 \rangle = 0; \quad \forall I \neq 0.$$

Dieses Gleichungssystem besteht aus N_f nichtlinearen Gleichungen (eine für jede *fundamentale Konfiguration* des Modells), d.h. abhängig vom Modell und der gewählten Approximationsstufe aus mehreren hunderttausend bis zu über einer Million Gleichungen bei den aufwendigsten bisher untersuchten Modellen.

Im Abschnitt 2.1.5 wurde gezeigt, dass die Ähnlichkeitstransformation des Hamiltonoperators (2.27):

$$\bar{H} = e^{-\hat{S}} \hat{H} e^{\hat{S}} = \hat{H} + [\hat{H}, \hat{S}] + \frac{1}{2} [[\hat{H}, \hat{S}], \hat{S}] + \dots,$$

nach maximal vier verschachtelten Kommutatoren abbricht und das unabhängig von der Näherung des Korrelationsoperators \hat{S} . Der Hamiltonoperator \hat{H} enthält selbst keine

Korrelationskoeffizienten und im Korrelationsoperator (2.3):

$$\hat{\mathcal{S}} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger,$$

treten diese nur isoliert als Vorfaktoren vor den zugehörigen Clusteroperatoren $\{\hat{C}_I^\dagger\}$ auf. Das bedeutet aber, dass jeder Summand des Ähnlichkeitstransformierten Hamiltonoperators \bar{H} und insbesondere auch jeder Summand in den Ket-Gleichungen höchstens vier Korrelationskoeffizienten enthalten kann.¹ Die Ket-Gleichungen sind also Polynome mehrerer Veränderlicher (den durchnummerierten Korrelationskoeffizienten s_1, \dots, s_{N_f}) folgender Form:

$$\begin{aligned} 0 = f_n(s_1, \dots, s_{N_f}) &= \sum_{i=0}^4 \sum_{j_i=1}^{N_f} A_{n,I} \prod_{k=0}^i s_k \quad \text{mit Abk.: } I := (j_1, \dots, j_4) \\ &= A_{n,0} + A_{n,1}s_1 + \dots + A_{n,N_f}s_{N_f} + \dots + A_{n,(N_f,N_f,N_f,N_f)}s_{n,N_f}s_{n,N_f}s_{n,N_f}s_{n,N_f}. \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

Die hierbei auftretenden Koeffizienten $A_{n,I}$ sind abhängig vom Modell und der Approximationsstufe und an dieser Stelle bereits bekannt, müssen aber nicht zwangsläufig ungleich Null sein. Das heißt, es kann durchaus auch Kombinationen von Korrelationskoeffizienten geben, die nicht in allen oder in gar keiner Ket-Gleichung(en) auftreten. Für Hamiltonoperatoren, die $\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z$ -Terme enthalten (was fast immer der Fall ist), lässt sich allerdings relativ leicht zeigen, dass die zugehörigen Ket-Gleichungen jeden Korrelationskoeffizienten $s_{i=1, \dots, N_f}$ einmal als eigenständigen Summanden enthalten. Die Grundlage dafür ist, dass der $\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z$ -Term bei einer Ähnlichkeitstransformation nach der Ausführung des ersten Kommutators mit dem Korrelationsoperator in einen $S_i^+ S_j^-$ -Term übergeht.

Für die Ähnlichkeitstransformation von $\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z$ gilt ganz allgemein:

$$e^{-\hat{\mathcal{S}}} \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z e^{\hat{\mathcal{S}}} = \hat{S}_i^z \hat{S}_j^z + [\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z, \hat{\mathcal{S}}] + \frac{1}{2} [[\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z, \hat{\mathcal{S}}], \hat{\mathcal{S}}] + \dots$$

¹Dies gilt sowohl für die aus \hat{S}^+ -Operatoren als auch für die aus den Dimeroperatoren $\hat{A}_{n,0}$ mit $n \in \{1, 2, 3\}$ konstruierten Cluster- und Korrelationsoperatoren.

Wegen

$$\begin{aligned}
[\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z, \hat{S}] &= \sum_{I \neq 0} s_I [\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z, \hat{C}_I^\dagger]_- = \sum_{I \neq 0} s_I [\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z, \prod_{k=I_1, \dots, I_{|I|}} S_k^+] \\
&= \sum_{I \neq 0} s_I \left(\hat{S}_i^z [\hat{S}_j^z, \prod_{k=I_1, \dots, I_{|I|}} S_k^+] + [\hat{S}_i^z, \prod_{k=I_1, \dots, I_{|I|}} S_k^+] \hat{S}_j^z \right) \\
&= \sum_{I \neq 0} s_I \left([\dots] + a_{i,I} \hat{C}_I^\dagger \hat{S}_j^z \right),
\end{aligned}$$

verbleibt in der Ähnlichkeitstransformation von $\hat{S}_i^z \hat{S}_j^z$ bzw. des Hamiltonoperators für jeden Korrelationskoeffizienten mindestens ein Summand der proportional zu $s_I \hat{C}_I^\dagger$ ist. Der zusätzliche \hat{S}_j^z -Operator spielt keine Rolle, da diese in den Ket-Gleichungen, wegen

$$\hat{S}_i^z |\Phi_0\rangle = -\frac{\hbar}{2} |\Phi_0\rangle, \quad \forall i \in 1, \dots, N, \quad |\Phi_0\rangle \text{ ist der Modellzustand,}$$

nur einen zusätzlichen Vorfaktor beitragen. Der auftretende Koeffizient $a_{i,I}$ ergibt sich aus der Vertauschungsrelation

$$[S_i^z, S_j^+] = \hbar S_i^+ \delta_{ij}$$

und daraus folgt wie viele S_i^+ -Operatoren der Clusteroperator \hat{C}_I^\dagger enthält.^a In der obigen Rechnung wurde außerdem vorausgesetzt, dass der Gitterplatz i im Cluster enthalten ist, also dass gilt: $i \in \{I_1, \dots, I_{|I|}\}$, da im Hamiltonoperator üblicherweise über sämtliche Gitterplätze summiert wird, stellt dies aber keine Einschränkung dar.

^aFür Spinsysteme mit $s > 1/2$ sind mehrere Spinflips pro Cluster möglich.

Unter dieser Voraussetzung, lässt sich das Ket-Gleichungssystem einfach nach diesen Korrelationskoeffizienten umstellen:

$$\begin{aligned}
s_1 &= \tilde{f}_1(s_1, \dots, s_{N_f}), \\
&\vdots \\
s_{N_f} &= \tilde{f}_{N_f}(s_1, \dots, s_{N_f}).
\end{aligned} \tag{A.2}$$

Für die auf den Dimeroperatoren basierende DCCM gelten die gleichen Überlegungen (ohne Beweis).

A.1.2. Numerische Lösung mittels „Direkter Iteration“

Die Darstellung (A.2) des Ket-Gleichungssystems, eignet sich sehr gut für ein einfaches iteratives Lösungsverfahren, das häufig als „Direkte Iteration“ bezeichnet und im Folgenden beschrieben wird.

Zunächst wird eine erste Näherung für die gesuchten Korrelationskoeffizienten $\{s_I\}$ gewählt, in der Regel gibt es hierfür keine besonderen Präferenzen, weshalb man im Standardfall zunächst jeden Koeffizienten sehr klein wählt (typischerweise $\{s_I\} = 10^{-6}$). Im Fall von Modellen die einen Laufparameter besitzen, wie zum Beispiel eine zweite Kopplungsstärke oder einen Anisotropieparameter, kann man bei entsprechend kleinen Veränderungen dieses Parameters in der Regel davon ausgehen, dass sich auch die Lösung des Gleichungssystems nur minimal verändert. Deshalb ist es hier möglich, den für einen Vorgängerwert bereits ermittelten Satz von Korrelationskoeffizienten für die Startwerte der neuen Iteration wiederzuverwenden. Eine solche Wahl ist häufig sehr viel besser als der Standardansatz. Werden diese Startwerte nun in die Gleichungen \tilde{f} eingesetzt, erhält man auf der linken Seite eine (in der Regel) verbesserte Näherung der Korrelationskoeffizienten. Diese setzt man nun sukzessive immer wieder in die Gleichungen ein, bis die Differenzen zwischen der eingesetzten und der verbesserten Näherung unterhalb einer vorher festgelegten Genauigkeitsschwelle liegen:

$$\sum_i^{N_f} |s_{i,\text{alt}} - s_{i,\text{neu}}| \begin{cases} < \text{Schwellwert} \Rightarrow \text{abbruch,} \\ \geq \text{Schwellwert} \Rightarrow \text{erneut einsetzen.} \end{cases}$$

Die Erfahrung mit der CCCM zeigt, dass der im Normalfall verwendete Schwellwert von 10^{-10} zu einer hinreichenden numerischen Genauigkeit der Grundzustandsenergie, von mindestens zehn Nachkommastellen führt. Der Schwellwert wird allerdings nicht deshalb so klein gewählt, um die Grundzustandsenergie in der genannten Genauigkeit zu bestimmen (hier reichen in der Regel drei oder vier Nachkommastellen aus), sondern weil die Ket-Korrelationskoeffizienten auch noch in das für die Berechnung anderer Systemobservablen benötigte lineare Bra-Gleichungssystem eingehen (siehe Abschnitt 2.1.3).

Vor- und Nachteile des Verfahrens

Der wesentlichste Vorteil der *Direkten Iteration* liegt in ihrer Einfachheit. Insbesondere müssen die Ket-Gleichungen zur Anwendung des Verfahrens nicht weiter manipuliert werden. Das Umstellen der Gleichungen nach den Korrelationskoeffizienten (A.2), muss nur einmal erfolgen und der dafür benötigte Aufwand ist vernachlässigbar. Die Laufzeit des Algorithmus wird neben der Dauer des Einsetzvorgangs (ein solcher ist aber in allen numerischen Verfahren notwendig und kann in diesen praktisch auch nicht schneller ablaufen) im Wesentlichen von der Anzahl der benötigten Iterationsschritte bestimmt. Hier

liegt auch der erste Nachteil der Methode, im Vergleich mit dem nachfolgend betrachteten *Newton-Raphson-Verfahren*. Abhängig von der Anzahl der *fundamentalen Konfigurationen* des Modells (diese ist stark abhängig von der Höhe der verwendeten Approximationsstufe) benötigt die *Direkte Iteration* bis zu mehreren hundert und bei besonders aufwendigen Modellen sogar mehrere tausend Iterationsschritte. Die Rechenzeit für einen einzelnen Iterationsschritt lässt sich nicht so ohne weiteres angeben, da diese nicht nur ebenfalls sehr stark von der Anzahl der Korrelationskoeffizienten bzw. fundamentalen Konfigurationen abhängt, sondern auch von der verwendeten Computerhardware. Man kann aber festhalten, dass sie in praktikablen Fällen zwischen einigen Millisekunden bis hin zu mehreren Minuten schwankt. Entscheidend hierbei ist, wie schnell die eingesetzten Prozessoren sind und vor allem wie viele man davon einsetzt.²

Die Möglichkeit der effizienten „Parallelisierung“ (d.h. die Verteilung des Algorithmus und damit der Arbeitslast auf mehrere gleichzeitig arbeitende Prozessoren), stellt eine weitere Stärke der Direkten Iteration dar. Dadurch, dass das Durchführen eines Iterationsschritts nur einen einzigen und für jeden Korrelationskoeffizienten unabhängigen Einsetzvorgang erfordert, kann dieser von beliebig vielen Prozessoren gleichzeitig durchgeführt werden. Dabei beschränkt sich jeder Prozessor auf eine Teilmenge des Ket-Gleichungssystems (typischerweise $N_f/$ „Prozessoranzahl“) und kann damit unabhängig eine Teilmenge der verbesserten Näherungen ausrechnen. Nach jedem Schritt müssen die Prozessoren nur einmal ihre berechneten Koeffizienten miteinander austauschen, dieser Vorgang kann aber gegenüber dem Zeitgewinn bei der parallelen Iteration vernachlässigt werden. An dieser Stelle kann man sogar festhalten, dass praktisch alle in den letzten Jahren veröffentlichten CCM-Resultate, die auf sehr hohen Näherungsstufen basieren (LSUB8 und höher), ohne die parallelisierte *Direkte Iteration* nicht möglich gewesen wären.

A.1.3. Numerische Lösung mit dem Newton-Raphson-Verfahren

Ein weiteres Verfahren, das sich zur näherungsweisen Lösung des Ket-Gleichungssystems eignet, ist das bekannte *Newton-Raphson-Verfahren*. Es ist ebenfalls ein iteratives Fixpunktverfahren und basiert darauf, das Ket-Gleichungssystem zu linearisieren.

Mit $f(\mathbf{s}) = (f_1(\mathbf{s}), \dots, f_{N_f}(\mathbf{s}))^T$ und $\mathbf{s} = (s_1, \dots, s_{N_f})^T$ lässt sich zunächst die Linearisierung des Gleichungssystems (A.1) an der Stelle \mathbf{s}_n formulieren:

$$f(\mathbf{s}_n + h) \approx f(\mathbf{s}_n) + J(\mathbf{s}_n)h \quad \text{mit} \quad h := \mathbf{s}_{n+1} - \mathbf{s}_n, \quad (\text{A.3})$$

²Noch viel entscheidender ist allerdings, wie effizient die Implementierung des Algorithmus ist, hier lassen sich eine Menge typischer Fehler machen, die dazu führen, dass die Rechenzeit um einen Faktor 1000 oder mehr über der Erreichbaren liegt (Stichwort: „Cache Misses“). Da Implementierungen von numerischen Algorithmen heutzutage allerdings, aufgrund vielfach verfügbarer effizienter Vorlagen, nicht mehr selber von Nutzer entwickelt werden müssen, kann dieses Problem hier vernachlässigt werden.

wobei $J(\mathbf{s})$ die Jacobi-Matrix an der Stelle \mathbf{s} ist:

$$J(\mathbf{s}) = \begin{pmatrix} \frac{\partial f_1}{\partial s_1}(\mathbf{s}) & \frac{\partial f_1}{\partial s_2}(\mathbf{s}) & \cdots & \frac{\partial f_1}{\partial s_{N_f}}(\mathbf{s}) \\ \frac{\partial f_2}{\partial s_1}(\mathbf{s}) & \frac{\partial f_2}{\partial s_2}(\mathbf{s}) & \cdots & \frac{\partial f_2}{\partial s_{N_f}}(\mathbf{s}) \\ \vdots & \vdots & \ddots & \vdots \\ \frac{\partial f_{N_f}}{\partial s_1}(\mathbf{s}) & \frac{\partial f_{N_f}}{\partial s_2}(\mathbf{s}) & \cdots & \frac{\partial f_{N_f}}{\partial s_{N_f}}(\mathbf{s}) \end{pmatrix}. \quad (\text{A.4})$$

Unter gewissen Voraussetzungen, die für die CCM-Gleichungen erfüllt sind, garantiert der *Banachsche Fixpunktsatz* nun, dass die Nullstelle dieser Linearisierung $f(\mathbf{s}_n + h) = f(\mathbf{s}_{n+1}) = 0$ näher an einer Nullstelle des nichtlinearen Gleichungssystems $f(\mathbf{s}) = 0$ liegt, als \mathbf{s}_n . Dies ist die Voraussetzung für dafür, durch sukzessives Weiterverwenden der Nullstellen als Ausgangspunkte für nachfolgende Linearisierungen, schließlich eine sehr genaue Näherungslösung des Ket-Gleichungssystems zu erhalten. Die konkrete Iterationsvorschrift ergibt sich dafür einfach zu:

$$\mathbf{s}_{n+1} = \mathbf{s}_n - J^{-1}(\mathbf{s}_n)f(\mathbf{s}_n). \quad (\text{A.5})$$

Um den zusätzlichen Aufwand der Invertierung der Jacobi-Matrix zu vermeiden, wird in der Praxis im allgemeinen und bei der Anwendung der CCM im speziellen, nicht direkt \mathbf{s}_{n+1} sondern zunächst h über das lineare Gleichungssystem:

$$J(\mathbf{s}_n)h = -f(\mathbf{s}_n), \quad (\text{A.6})$$

bestimmt. Da \mathbf{s}_n an diesem Punkt bekannt ist, folgt daraus dann direkt $\mathbf{s}_{n+1} = \mathbf{s}_n + h$. Zur exakten³ Lösung des Gleichungssystems (A.6) wird in der CCM die sogenannte LR-Zerlegung verwendet. Dafür wird die Gleichungsmatrix des Gleichungssystems (in diesem Fall die Jacobi-Matrix) in ein Produkt aus einer oberen und einer unteren Dreiecksmatrix zerlegt, aus diesem dann zwei, im Prinzip bereits gelöste, Gleichungssysteme folgen:

$$y = Ax = LRx \Rightarrow a = Rx, y = La.$$

Auf die technischen Details dieses bekannten Verfahrens soll an dieser Stelle aber nicht weiter eingegangen werden.

Die genannten Schritte werden nun solange wiederholt, bis die gewünschte numerische Genauigkeit erreicht ist. Da hier nach einer Nullstelle von f gesucht wird, ist dies dann

³Im Rahmen von Rundungsfehlern und den Grenzen der gewählten Datentypen.

der Fall wenn die Funktionswerte $f(\mathbf{s}_n)$ klein genug sind:

$$\sum_i^{N_f} |f_i(\mathbf{s}_n)| \begin{cases} < \text{Schwellwert} \Rightarrow \text{abbruch,} \\ \geq \text{Schwellwert} \Rightarrow \text{erneut einsetzen.} \end{cases}$$

Der hierbei angesetzte Schwellwert liegt in der Regel ebenfalls bei 10^{-10} .

Vor- und Nachteile des Verfahrens

Das *Newton-Raphson-Verfahren* ist offensichtlich deutlich aufwendiger als die *Direkte Iteration*. Dies liegt hauptsächlich daran, dass in jedem Iterationsschritt die Jacobi-Matrix erneut berechnet werden muss.⁴ Da das Ket-Gleichungssystem aus Polynomen mit maximal vier Koeffizienten pro Summand besteht, können die partiellen Ableitungen nicht nur exakt sondern auch, bei einer effizienten Implementierung, relativ schnell berechnet werden. Klar ist aber auch, dass die zusätzliche Speicherung der Terme der Jacobi-Matrix einen erhöhten Speicherbedarf zur Folge hat, bei mehreren hunderttausend Korrelationskoeffizienten von bis zu mehreren hundert Gigabyte im Arbeitsspeicher, was in der Praxis durchaus eine Einschränkung darstellt.

Ein wesentlicher Vorteil des *Newton-Raphson-Verfahrens* ist allerdings, dass es sehr schnell konvergiert (d.h. eine Lösung findet), so sind in der Regel weniger als zehn Iterationsschritte nötig um die geforderte Genauigkeit zu erreichen (die einzelnen Iterationsschritte benötigen aber sehr viel mehr Zeit als bei der *Direkten Iteration*). Die bessere numerische „Stabilität“ des Verfahrens drückt sich auch darin aus, dass es in vielen Fällen auch dann noch konvergiert wenn die *Direkte Iteration* keine Lösungen mehr findet. Das Hauptproblem des Verfahrens liegt aber darin, dass eine effiziente Parallelisierung des Verfahrens sehr schwierig ist. Ursächlich dafür ist, dass das verteilte, numerisch exakte Lösen eines linearen Gleichungssystems, die, zumindest abschnittsweise, vollständige Kenntnis des gesamten Gleichungssystems, in diesem Fall der gesamten Jacobi-Matrix und nicht nur die von jedem Prozess einzeln gespeicherten Zeilen, erfordert. Das bedeutet, dass man bei einer Parallelisierung vor der Entscheidung steht, einen deutlich erhöhten Arbeitsspeicherbedarf (durch vollständiges Speichern der Jacobi-Matrix auf allen unabhängigen Rechenknoten) zugunsten einer verringerten Laufzeit oder aber eine durch zusätzliche Prozesskommunikation und dadurch implizierte Wartephase, deutlich erhöhte Laufzeit zugunsten eines minimalen Speicherverbrauchs in Kauf zu nehmen.

In der CCCM wurde daher, auch aufgrund der zufriedenstellenden Resultate der *Direkten Iteration*, bisher kein parallelisiertes *Newton-Raphson-Verfahren* implementiert. Was die Methode dort nur bei eindimensionalen Modellen, in denen eine verteilte Lösung kaum

⁴Es gibt allerdings auch Varianten des Verfahrens bei denen dies nicht nach jedem Iterationsschritt sondern nach einer festgelegten Anzahl von Iterationsschritten erfolgt. Dies hat allerdings negative Konsequenzen für die Konvergenzeigenschaften und wird in der CCM üblicherweise nicht angewendet.

Vorteile bringt, einsetzbar macht. Da sich allerdings bei einigen in dieser Arbeit untersuchten Modellen mit dimerisierten Modellzuständen, die Notwendigkeit für eine solche parallelisierte Version des *Newton-Raphson-Verfahrens* ergab, wurde eine solche für die DCCM (und bisher auch nur auf diese beschränkt) schließlich implementiert und erfolgreich angewendet (näheres dazu erfolgt in den diesen Modellen zugeordneten Abschnitten dieser Arbeit).

A.2. Eigensystem des Dimeroperators

Der im Abschnitt 2.4.5 als Maß für die Dimerisierung eingeführte Ordnungsparameter (bzw. Dimer-Ordnungsparameter oder auch nur Dimeroperator) ist im Fall einer vollständigen Singulett-Paarbildung auf dem Gitter (darstellbar als Singulett-Produktzustand) nicht maximal, da ein solcher Zustand kein Eigenzustand dieses Operators ist. Die Bestimmung des Zustands maximaler Dimerisierung auf dem unendlich ausgedehnten Gitter, ist von gleicher Schwierigkeit wie die Bestimmung des Grundzustandes eines solchen Systems. Für eine qualitative Beschreibung wird daher im Folgenden das Eigensystem des Dimeroperators für ein 4-Spin-System (eine Kette ohne periodische Randbedingungen) berechnet. Das

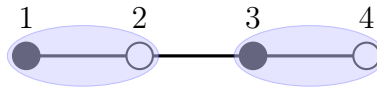


Abbildung A.1.: Offenes Vier-Spin-System mit Singulett-Paarbildung.

System ist 16-dimensional und legt daher die Verwendung der folgenden Basis nahe:

$$\begin{aligned}
 |1\rangle &= |\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, & |2\rangle &= |\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle, & |3\rangle &= |\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle, & |4\rangle &= |\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
 |5\rangle &= |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle, & |6\rangle &= |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle, & |7\rangle &= |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle, & |8\rangle &= |\uparrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
 |9\rangle &= |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, & |10\rangle &= |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle, & |11\rangle &= |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle, & |12\rangle &= |\downarrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
 |13\rangle &= |\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle, & |14\rangle &= |\downarrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle, & |15\rangle &= |\downarrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle, & |16\rangle &= |\downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle.
 \end{aligned} \tag{A.7}$$

Im Weiteren wird außerdem folgende Abkürzung für den Singulett-Produktzustand verwendet:

$$|\mathbf{S}\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle). \tag{A.8}$$

Im Dimeroperator werden nun die Korrelationsfunktionen $\langle \hat{S}_i \hat{S}_j \rangle$ zwischen benachbarten Gitterplätzen aufsummiert, wobei die Dimerpaare mit einem negativen Vorzeichen versehen werden. Für das 4-Spin-System werden nun zwei Varianten des Dimeroperators betrachtet.

A.2.1. Dimeroperator mit offenen Randbedingungen

Wenn die Kette als offen angenommen wird (siehe Abb. A.1), gibt es bei der angenommenen Dimerisierung nur eine sinnvolle Definition des Dimeroperators, sie lautet:

$$\hat{D} = -\hat{S}_1\hat{S}_2 + \hat{S}_2\hat{S}_3, \quad (\text{A.9})$$

Die Matrixdarstellung dieses Operators in der Basis (A.7):

$$D_{ij} = \langle i | \hat{D} | j \rangle, \quad (\text{A.10})$$

führt auf die folgende 16×16 Matrix:

$$(D_{ij}) = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (\text{A.11})$$

Die weiteren Rechenschritte zur Bestimmung des Eigensystems sind zwar nicht kompliziert auszuführen aber aufwendig, sie lassen sich aber problemlos mit den üblichen Computeralgebrasystemen (Maple, Mathematica, etc.) durchführen, weshalb die Ergebnisse im Folgenden direkt ausgewertet werden. Der Dimeroperator hat drei mehrfach entartete Eigenwerte. Zum einen den Eigenwert:

$$-\frac{\sqrt{3}}{2} \simeq -0.866025, \quad (\text{A.12})$$

er ist vierfach entartet mit den zugehörigen Eigenzuständen:

$$\begin{aligned} |D_1\rangle &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |8\rangle + \left(1 - \sqrt{3}\right) |12\rangle + |14\rangle \\ &= -\left(1 - \sqrt{3}\right) (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

$$\begin{aligned} |D_2\rangle &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |7\rangle + \left(1 - \sqrt{3}\right) |11\rangle + |13\rangle \\ &= -\left(1 - \sqrt{3}\right) (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.14})$$

$$\begin{aligned} |D_3\rangle &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |4\rangle + \left(1 + \sqrt{3}\right) |6\rangle + |10\rangle \\ &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.15})$$

$$\begin{aligned} |D_4\rangle &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |3\rangle + \left(1 + \sqrt{3}\right) |5\rangle + |9\rangle \\ &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + \sqrt{3} |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.16})$$

außerdem den Eigenwert

$$\frac{\sqrt{3}}{2} \simeq 0.866025, \quad (\text{A.17})$$

er ist ebenfalls vierfach entartet mit den zugehörigen Eigenzuständen:

$$\begin{aligned} |D_5\rangle &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |8\rangle + \left(1 + \sqrt{3}\right) |12\rangle + |14\rangle \\ &= -\left(1 + \sqrt{3}\right) (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

$$\begin{aligned} |D_6\rangle &= -\left(2 + \sqrt{3}\right) |7\rangle + \left(1 + \sqrt{3}\right) |11\rangle + |13\rangle \\ &= -\left(1 + \sqrt{3}\right) (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

$$\begin{aligned} |D_7\rangle &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |4\rangle + \left(1 - \sqrt{3}\right) |6\rangle + |10\rangle \\ &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle - \sqrt{3} |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\downarrow\rangle \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

$$\begin{aligned} |D_8\rangle &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |3\rangle + \left(1 - \sqrt{3}\right) |5\rangle + |9\rangle \\ &= -\left(2 - \sqrt{3}\right) |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle - \sqrt{3} |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

und schlussendlich der achtfach entartete Eigenwert

$$0, \quad (\text{A.22})$$

mit den Eigenvektoren:

$$|D_9\rangle = |1\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.23})$$

$$|D_{10}\rangle = |2\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle, \quad (\text{A.24})$$

$$|D_{11}\rangle = |3\rangle + |5\rangle + |9\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.25})$$

$$|D_{12}\rangle = |4\rangle + |6\rangle + |10\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\downarrow\rangle, \quad (\text{A.26})$$

$$|D_{13}\rangle = |7\rangle + |11\rangle + |13\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.27})$$

$$|D_{14}\rangle = |8\rangle + |12\rangle + |14\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\downarrow\rangle, \quad (\text{A.28})$$

$$|D_{15}\rangle = |15\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.29})$$

$$|D_{16}\rangle = |16\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle. \quad (\text{A.30})$$

A.2.2. Dimeroperator mit periodischen Randbedingungen

Geht man von einer geschlossenen Kette aus (bzw. von periodischen Randbedingungen), kann man den Dimer-Ordnungsparameter um zwei weitere Terme erweitern:

$$\hat{D}^p = -\frac{1}{2} \left(\hat{S}_1 \hat{S}_2 - \hat{S}_2 \hat{S}_3 + \hat{S}_3 \hat{S}_4 - \hat{S}_4 \hat{S}_1 \right). \quad (\text{A.31})$$

Es ergibt sich folgende Matrixdarstellung:

$$(D_{ij}^p) = \frac{1}{4} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & -2 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 2 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 2 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & -2 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & -1 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (\text{A.32})$$

Der Dimeroperator für die geschlossene Kette hat fünf verschiedene Eigenwerte, der erste

A. Anhang

Eigenwert:

$$-\frac{\sqrt{3}}{2}, \quad (\text{A.33})$$

ist nicht entartet, der zugehörige Eigenzustand lautet:

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_1 &= |4\rangle + (1 - \sqrt{3})(|6\rangle + |11\rangle) - (2 - \sqrt{3})(|7\rangle + |10\rangle) + |13\rangle \\ &= (1 - \sqrt{3})|\mathbf{S}\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.34})$$

der zweiten Eigenwert:

$$\frac{\sqrt{3}}{2}, \quad (\text{A.35})$$

ist ebenfalls nicht entartet und hat den folgenden Eigenzustand:

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_2 &= |4\rangle + (1 + \sqrt{3})(|6\rangle + |11\rangle) - (2 + \sqrt{3})(|7\rangle + |10\rangle) + |13\rangle \\ &= (1 + \sqrt{3})|\mathbf{S}\rangle + |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.36})$$

der dritte Eigenwert:

$$-\frac{1}{2}, \quad (\text{A.37})$$

ist dreifach entartet, die Eigenvektoren lauten:

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_3 &= -|8\rangle - |12\rangle + |14\rangle + |15\rangle \\ &= -(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle), \end{aligned} \quad (\text{A.38})$$

$$|D^p\rangle_4 = -|4\rangle + |13\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle - |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle,$$

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_5 &= -|2\rangle - |3\rangle + |5\rangle + |9\rangle \\ &= -|\uparrow\uparrow\rangle \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\uparrow\rangle. \end{aligned} \quad (\text{A.39})$$

der vierte Eigenwert:

$$\frac{1}{2}, \quad (\text{A.40})$$

ist dreifach entartet, die Eigenvektoren lauten:

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_6 &= |8\rangle - |12\rangle - |14\rangle + |15\rangle \\ &= (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\downarrow\downarrow\rangle - |\downarrow\downarrow\rangle \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \end{aligned} \quad (\text{A.41})$$

$$|D^p\rangle_7 = -|7\rangle + |10\rangle = |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle,$$

$$\begin{aligned} |D^p\rangle_8 &= |2\rangle - |3\rangle - |5\rangle + |9\rangle \\ &= |\uparrow\uparrow\rangle \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) - (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \end{aligned} \quad (\text{A.42})$$

der letzte Eigenwert

$$0, \quad (\text{A.43})$$

ist achtfach entartet, die Eigenvektoren lauten:

$$|D_9^p\rangle = |1\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.44})$$

$$|D_{10}^p\rangle = |2\rangle + |5\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.45})$$

$$|D_{11}^p\rangle = |3\rangle + |9\rangle = |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.46})$$

$$|D_{12}^p\rangle = -|6\rangle + |11\rangle = -|\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.47})$$

$$|D_{13}^p\rangle = |4\rangle + 2|6\rangle + |7\rangle + |10\rangle + |13\rangle \\ = |\uparrow\downarrow\rangle \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) + (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes |\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.48})$$

$$|D_{14}^p\rangle = |8\rangle + |14\rangle = |\uparrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\uparrow\downarrow\rangle, \quad (\text{A.49})$$

$$|D_{15}^p\rangle = |12\rangle + |15\rangle = |\downarrow\uparrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.50})$$

$$|D_{16}^p\rangle = |16\rangle = |\downarrow\downarrow\rangle \otimes |\downarrow\downarrow\rangle. \quad (\text{A.51})$$

A.2.3. Auswertung

Da der Singulett-Produktzustand selbst kein Eigenzustand von einem dieser Operatoren ist, ist klar, dass eine maximale Dimerisierung nicht mit einer vollständigen Singulettbildung auf dem gesamten Gitter gleichzusetzen ist. Eine Betrachtung der quadrierten Projektionen auf den Singulett-Produktzustand (des Wahrscheinlichkeitsanteils des Singulett):

$$P_{\text{Singulett}}(D_i) = \frac{1}{\langle D_i | D_i \rangle} (\langle \mathbf{S} | D_i \rangle)^2; \quad |\mathbf{S}\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{A.52})$$

ermöglicht es, die Aussagekraft der Dimerisierung bezüglich der Singulett-Paarbildung zu untersuchen.

Es zeigt sich (siehe Tabelle A.1), dass der Singulett-Produktzustand nahezu vollständig im durch die Eigenvektoren zum jeweils größten Eigenwert aufgespannten Eigenraum liegt. Dies bedeutet, dass eine Singulett-Paarbildung tatsächlich immer in der Nähe des Maximums der Dimerisierung zu finden ist. Es gibt aber auch Eigenvektoren mit positiven Eigenwerten, die orthogonal zum Singulett-Produktzustand sind, weshalb es möglich ist positive Dimerisierungen zu messen, in Bereichen in denen keine Singulettbildung auftritt. Dies bedeutet aber nicht unbedingt, dass diese Modelle nicht dimerisiert sind, sondern nur, dass es sich bei den auftretenden Dimeren nicht oder nicht ausschließlich um Singulett handelt.

A.3. Darstellung alternativer Dimerzustände

Der Übergang von Die Clusteroperatoren der DCCM werden als Produkte der drei Dimeroperatoren \hat{A}_{10} , \hat{A}_{20} und \hat{A}_{30} konstruiert, ihre Anwendung auf den Singulett-Pro-

D_i	$P_{\text{Singulett}}(D_i)$	EW	D_i^p	$P_{\text{Singulett}}(D_i^p)$	EW
1	0.0		1	0.0669873	$-\frac{\sqrt{3}}{2}$
2	0.0334936		2	0.933013	$+\frac{\sqrt{3}}{2}$
3	0.0334936	$-\frac{\sqrt{3}}{2}$	3	0.0	
4	0.0		4	0.0	$-\frac{1}{2}$
5	0.0		5	0.0	
6	0.466506		6	0.0	
7	0.466506	$\frac{\sqrt{3}}{2}$	7	0.0	$\frac{1}{2}$
8	0.0		8	0.0	
9	0.0		9	0.0	
10	0.0		10	0.0	
11	0.0		11	0.0	
12	0.0		12	0.0	
13	0.0	0	13	0.0	
14	0.0		14	0.0	
15	0.0		15	0.0	
16	0.0		16	0.0	

Tabelle A.1.: Singulettanteile der Eigenzustände von \hat{D} (links) und \hat{D}^p (rechts).

duktzustand

$$|0\rangle \otimes |0\rangle \otimes \dots = \frac{1}{2^{N/4}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes \dots$$

ermöglicht schließlich die Konstruktion aller möglichen Dimer-Produktzustände und damit einer Basis des Hilbertraumes des betrachteten Modells. Dies ist die Grundlage dafür, dass mit einem entsprechend gewählten Korrelationsoperator \hat{S} und bei ausreichend hoher Näherungsstufe jeder beliebige Zustand erzeugt werden kann:

$$|\Psi_0\rangle = e^{\hat{S}} |\Phi_0\rangle; \quad \hat{S} = \sum_{I \neq 0} s_I \hat{C}_I^\dagger.$$

Es lassen sich dabei insbesondere auch solche Zustände erzeugen, die keine Produktzustände sind. Ein einfaches Beispiel dafür ist die Konstruktion eines um 90° im Ortsraum gedrehten Doppelsingulettzustands eines Vier-Spin-Systems. Möchte man einen konkreten Singulettzustand auf einem solchen Gitter beschreiben, bietet sich je nach der Orientierung des Zustandes eine andere Basis an. Wählt man eine eindeutige Nummerierung der vier Gitterplätze, können die Dimere beispielsweise entweder die Plätze 1 und 2 sowie 3 und 4 umfassen oder aber die Plätze 1 und 3 sowie 2 und 4 (siehe Abbildung A.2).

Für die konkrete Darstellung des zweiten Zustandes in der dem ersten Zustand ange-

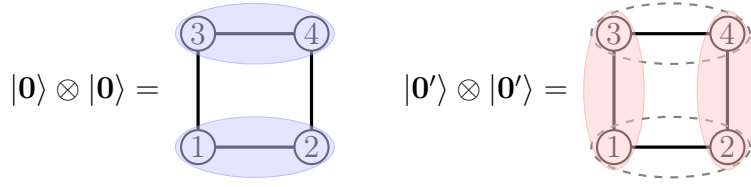


Abbildung A.2.: Darstellung eines alternativen Singulettzustands (rote Ovale) mit einer unangepassten Zweiteilchenbasis (gestrichelte Ovale).

passten Basis ist es hilfreich sowohl die Basis:

$$|0\rangle \otimes |0\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{A.53})$$

$$|0\rangle \otimes |2\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{A.54})$$

$$|2\rangle \otimes |0\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{A.55})$$

$$|2\rangle \otimes |2\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \otimes (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) = \frac{1}{2} (|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle), \quad (\text{A.56})$$

$$|1\rangle \otimes |3\rangle = |\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle, \quad (\text{A.57})$$

$$|3\rangle \otimes |1\rangle = |\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle, \quad (\text{A.58})$$

als auch den gedrehten Singulettzustand in der kanonischen Einteilchen-Produktbasis darzustellen:

$$|0'\rangle \otimes |0'\rangle = \frac{1}{2} (|\uparrow_1\downarrow_3\rangle - |\downarrow_1\uparrow_3\rangle) \otimes (|\uparrow_2\downarrow_4\rangle - |\downarrow_2\uparrow_4\rangle) = \frac{1}{2} (|\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle). \quad (\text{A.59})$$

Spätestens an dieser Stelle wird offensichtlich, dass sowohl der ursprüngliche Singulettzustand (A.53) als auch der gedrehte Zustand (A.59) vollständig im sechs-dimensionalen Unterraum der Zustände mit $s_z = 0$ liegen; für die Darstellung reicht es also aus, sich auf die entsprechenden sechs kanonischen Basiszustände zu beschränken:

$$\begin{aligned} (1, 0, 0, 0, 0, 0)^T &:= |\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle, \\ (0, 1, 0, 0, 0, 0)^T &:= |\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle, \\ (0, 0, 1, 0, 0, 0)^T &:= |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle, \\ (0, 0, 0, 1, 0, 0)^T &:= |\uparrow\downarrow\downarrow\uparrow\rangle, \\ (0, 0, 0, 0, 1, 0)^T &:= |\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle, \\ (0, 0, 0, 0, 0, 1)^T &:= |\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle. \end{aligned}$$

Für die obigen Zustände lässt sich damit nun direkt die folgende Komponentenvektordarstellung ablesen:

$$|0\rangle \otimes |0\rangle = \frac{1}{2}(1, 1, -1, -1, 0, 0)^T, \quad (\text{A.60})$$

$$|0\rangle \otimes |2\rangle = \frac{1}{2}(1, -1, -1, 1, 0, 0)^T, \quad (\text{A.61})$$

$$|2\rangle \otimes |0\rangle = \frac{1}{2}(1, -1, 1, -1, 0, 0)^T, \quad (\text{A.62})$$

$$|2\rangle \otimes |2\rangle = \frac{1}{2}(1, 1, 1, 1, 0, 0)^T, \quad (\text{A.63})$$

$$|1\rangle \otimes |3\rangle = \frac{1}{2}(0, 0, 0, 0, 1, 0)^T, \quad (\text{A.64})$$

$$|3\rangle \otimes |1\rangle = \frac{1}{2}(0, 0, 0, 0, 0, 1)^T, \quad (\text{A.65})$$

$$|0'\rangle \otimes |0'\rangle = \frac{1}{2}(0, 0, -1, -1, 1, 1)^T. \quad (\text{A.66})$$

Damit lässt sich nun ein einfaches Gleichungssystem zur Bestimmung der Darstellung von $|0'\rangle \otimes |0'\rangle$ aufstellen, wobei allerdings nur noch die ersten vier Vektoren relevant sind, da die restlichen Gleichungen von vornherein entkoppeln. Schlussendlich ergibt sich für die Darstellung des gedrehten Singulettzustands in der aufgeführten Basis das folgende Resultat:

$$|0'\rangle \otimes |0'\rangle = \frac{1}{2}(|0\rangle \otimes |0\rangle - |2\rangle \otimes |2\rangle + |1\rangle \otimes |3\rangle + |3\rangle \otimes |1\rangle). \quad (\text{A.67})$$

Mit Hilfe der Dimeroperatoren lässt sich dies auch folgendermaßen schreiben:

$$|0'\rangle \otimes |0'\rangle = \frac{1}{2} \left(1 - \hat{A}_{20}^1 \hat{A}_{20}^2 + \hat{A}_{10}^1 \hat{A}_{30}^2 + \hat{A}_{30}^1 \hat{A}_{10}^2 \right) |0\rangle \otimes |0\rangle. \quad (\text{A.68})$$

A.4. Fitfunktionen für die Extrapolation der CCM-Rohdaten

In der CCM ist es üblich, aus den mit der Methode berechneten approximierten Resultaten für die untersuchten Systemobservablen eine Extrapolation in den exakten Grenzfall zu ermitteln. Dies geschieht (wie bereits im Hauptteil dieser Arbeit beschrieben) mittels der Berechnung einer so genannten Fitfunktion (Regressionsanalyse), welche die Lage der approximierten Resultate möglichst gut beschreibt. Die Auswahl und Eignung der verwendeten Fitfunktionen wurde ebenfalls im Hauptteil dieser Arbeit bei einigen ausgewählten Beispielen diskutiert. Die dabei nicht im Hauptteil gezeigten zusätzlichen Darstellungen anderer Modellzustände und Modellparameter sind in diesem Abschnitt der Arbeit aufgeführt. Der Zweck dieser Auflistung soll in erster Linie der Vervollständigung der im Hauptteil dieser Arbeit exemplarisch bereits angeführten und auch diskutierten Darstellungen dienen.

A.4.1. Isotroper Heisenberg-Antiferromagnet auf dem Kagomegitter

Für den im Abschnitt 3.1 untersuchten, isotropen HAFM auf dem Kagomegitter, wurde die Energie auf der Basis der Fitfunktion (3.8):

$$E_N(m) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4$$

unter Einbeziehung der Näherungsstufen SUB4-4 bis SUB10-10 (für $s \geq 1$ nur bis SUB8-8) extrapoliert (siehe Abschnitt 3.1.2). Die folgenden Abbildungen A.3 und A.4 stellen die berechneten Fitfunktionen sowie die verwendeten Rohdaten für sämtliche Modellzustände und Spinquantenzahlen dar.

Die Abbildungen machen deutlich, dass das gewählte Approximationsschema die Abhängigkeit der approximierten Grundzustandsenergie von der Näherungsstufe m für alle Spinquantenzahlen und dargestellten Werte des Parameters λ sehr gut beschreibt und in der Folge eine sehr gute Extrapolation des exakten Grenzfalles $m \rightarrow \infty$ erlaubt.

Bei der Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters (2.67):

$$M = -\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \langle \tilde{\Psi}_0 | \hat{S}_i^{z'} | \Psi_0 \rangle, \quad \hat{S}^{z'} \text{ ist lokal,}$$

haben sich in der CCM die beiden Schemata

$$M_1(m) = O_{1/2,3/2} = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{m}\right)^{\frac{3}{2}},$$

$$M_2(m) = O_{1,2} = a + b \left(\frac{1}{m}\right)^1 + c \left(\frac{1}{m}\right)^2.$$

etabliert. Wie auch im Abschnitt 2.3.6 beschrieben, eignet sich das Schema M_1 insbesondere zur Beschreibung von Phasenübergängen, d.h. zur Beschreibung des magnetischen Ordnungsparameters in der Nähe seiner Nullstellen, während das M_2 Schema dann besser geeignet ist, wenn es keinen Phasenübergang gibt. Für den Kagome-HAFM wurden beide Schemata angewendet und die dabei ermittelten Fitfunktionen für den „ $q = 0$ “- und den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand getrennt für verschiedene Werte des Modellparameters λ und Spinquantenzahlen im Bereich $s = 1/2, \dots, 3$ in den Abbildungen A.5, A.6, A.7 und A.8 dargestellt.

Hierbei zeigt sich, dass die beiden Extrapolationsansätze die Abhängigkeit des approximierten magnetischen Ordnungsparameters von seiner Näherungsstufe m grundsätzlich gut beschreibt. Es wird aber auch deutlich, dass beide Extrapolation mit steigenden Spinquantenzahlen, insbesondere bei $\lambda = 1$, für beide Modellzustände gleichermaßen, ungenauer werden. Der Einfluss der Spinquantenzahl s ist auf das verwendete SUB m - m Approximationsschema zurückzuführen, das mit steigendem s einen immer geringeren Anteil aller möglichen LSUB m -Konfigurationen berücksichtigt. Mit der Zunahme der Quantenfluktuationen $\lambda \rightarrow 1$, werden die Modellzustände nachvollziehbarer Weise schlechter und weshalb eine gute Beschreibung des Grundzustandes, die Berücksichtigung zusätzlicher Cluster bzw. Konfigurationen erfordert. Deshalb machen sich die Nachteile des SUB m - m Schemas gegenüber dem LSUB m -Schema gerade für $\lambda = 1$ besonders bemerkbar. Eine quantitative Fehlerabschätzung kann aufgrund fehlender Vergleichsdaten (das LSUB m -Schema war aufgrund des Zeit- und Ressourcenbedarfs nicht anwendbar) hier zwar nicht erfolgen, für die in dieser Arbeit formulierten qualitativen Überlegungen sind die Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters für höhere Spinquantenzahlen aber durchaus geeignet.

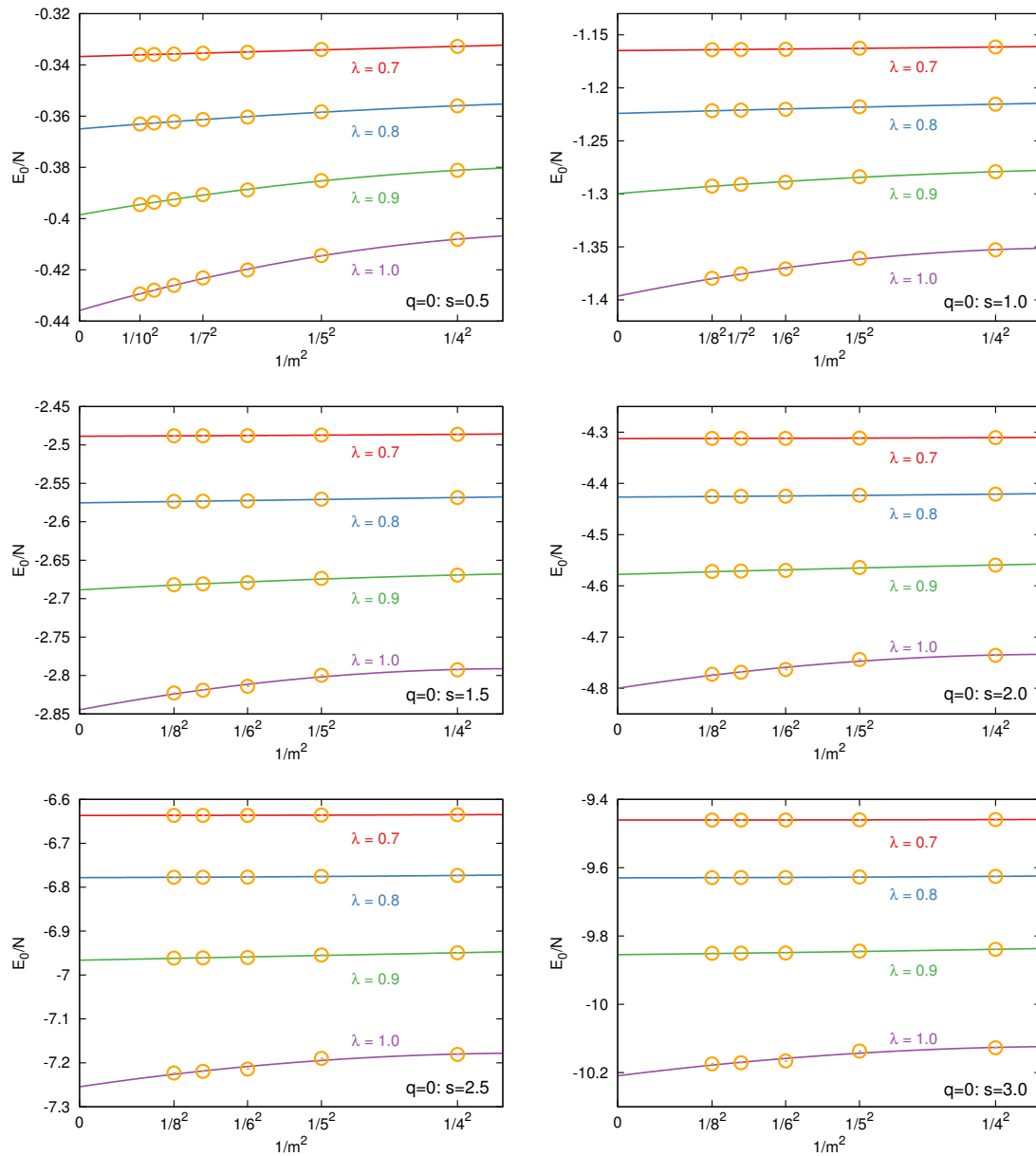


Abbildung A.3.: Darstellung der Fitfunktionen $E_N(n) = O_{2,4}$ und der approximierten CCM-Grundzustandsenergien für den „ $q = 0$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

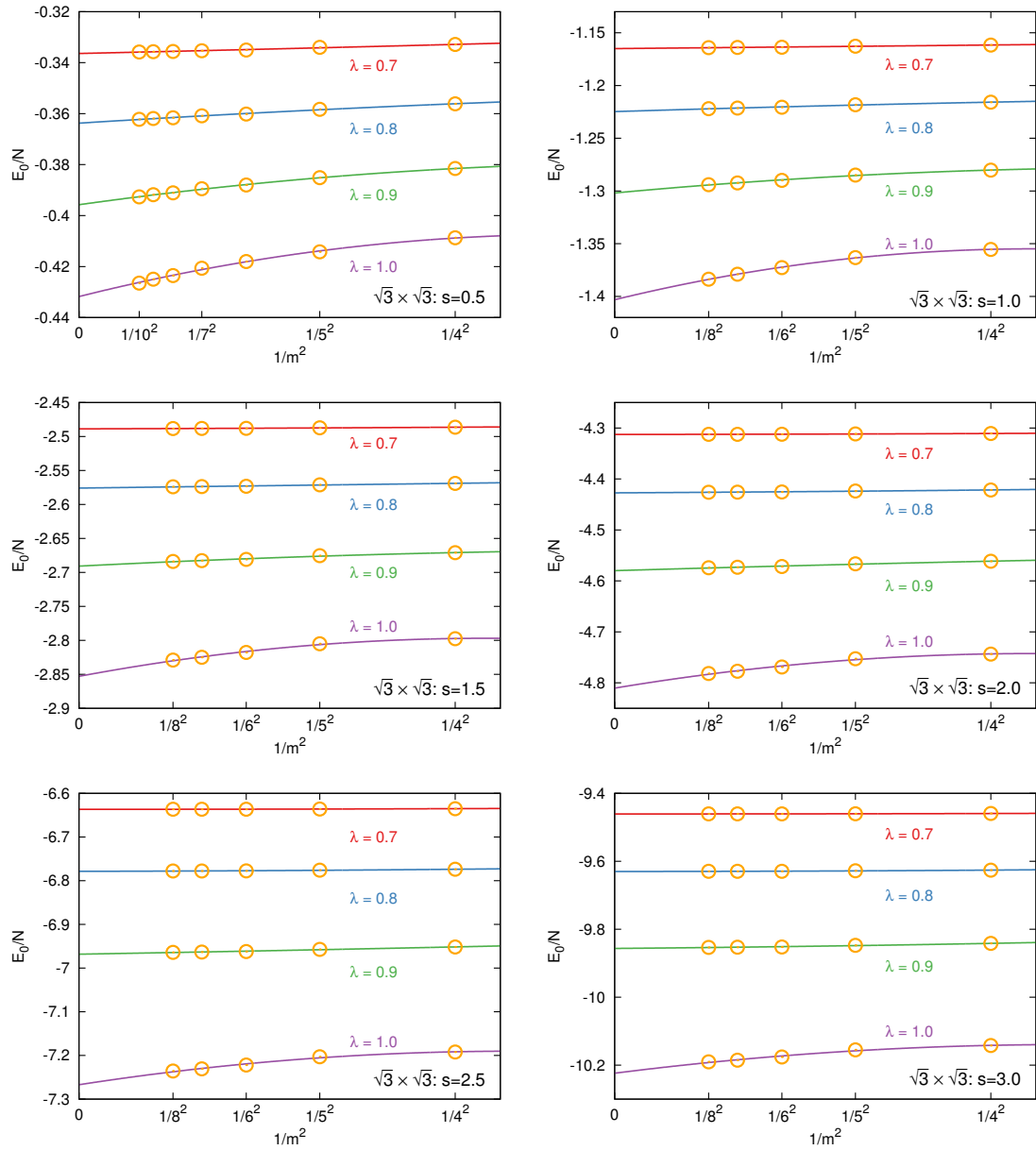


Abbildung A.4.: Darstellung der Fitfunktionen $E_N(n) = O_{2,4}$ und der approximierten CCM-Grundzustandsenergien für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

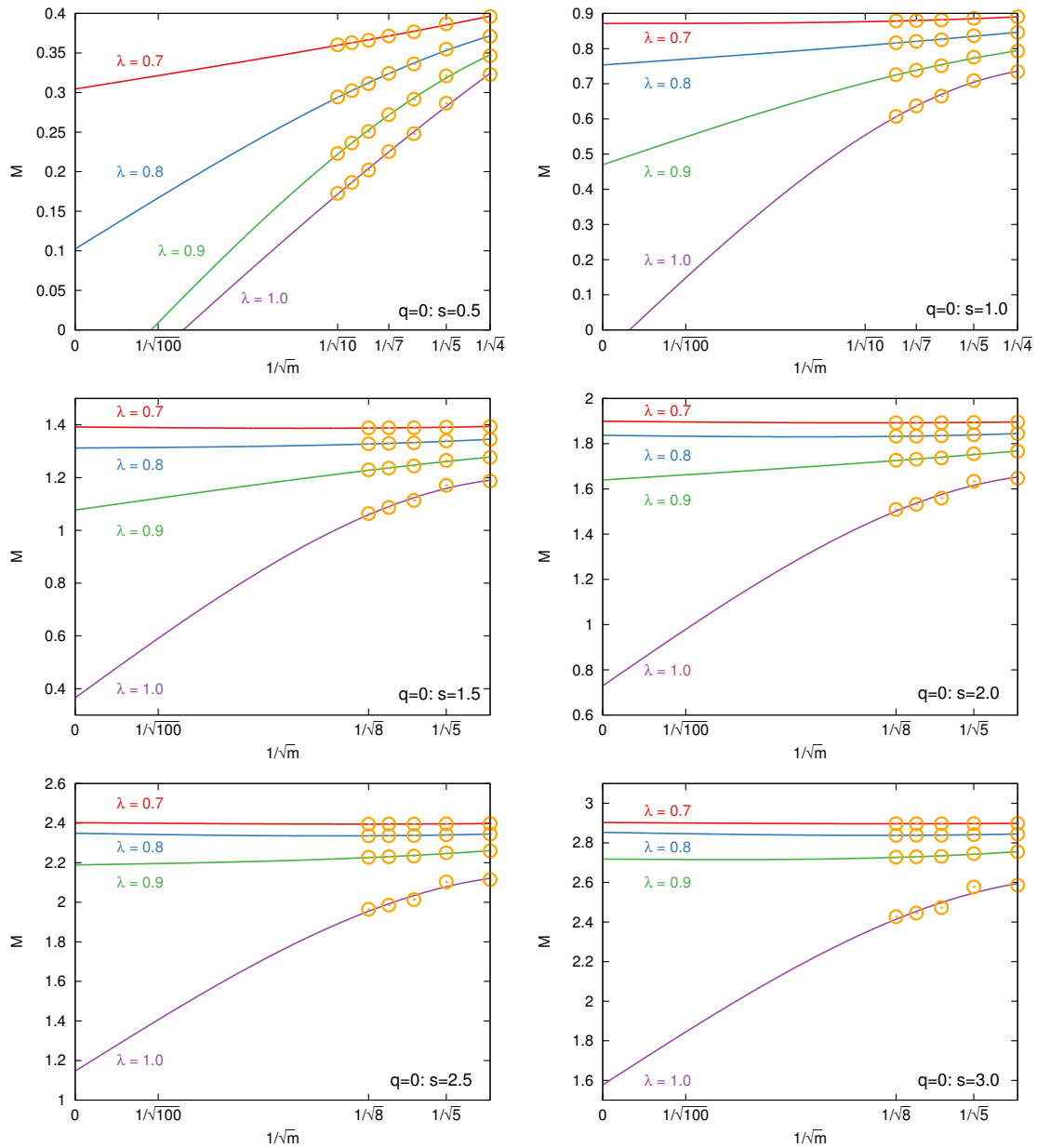


Abbildung A.5.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1/2,3/2}$ und der approximierten CCM-Ordnungsparameter für den „ $q = 0$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

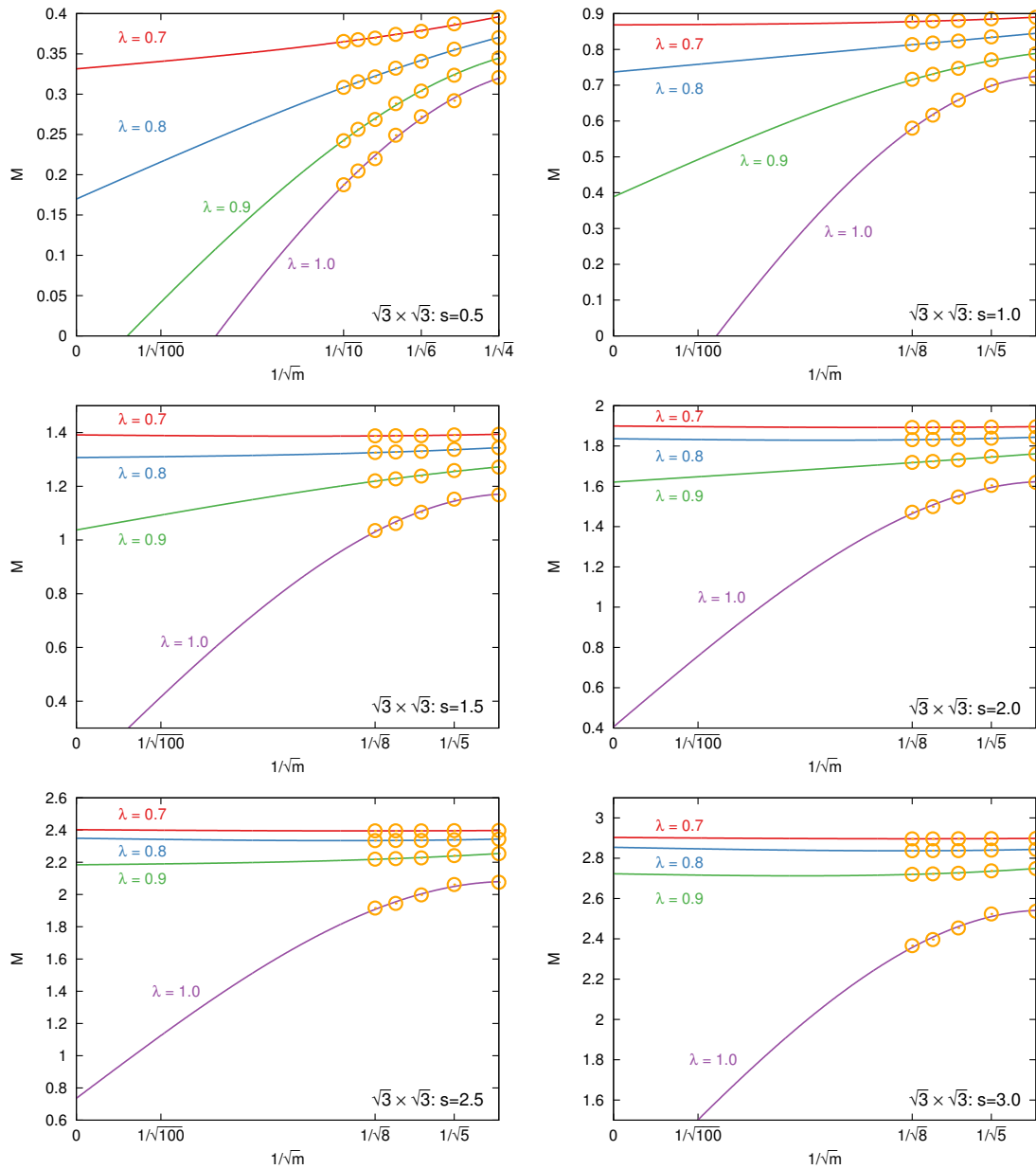


Abbildung A.6.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1/2,3/2}$ und der approximierten CCM-Ordnungsparameter für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

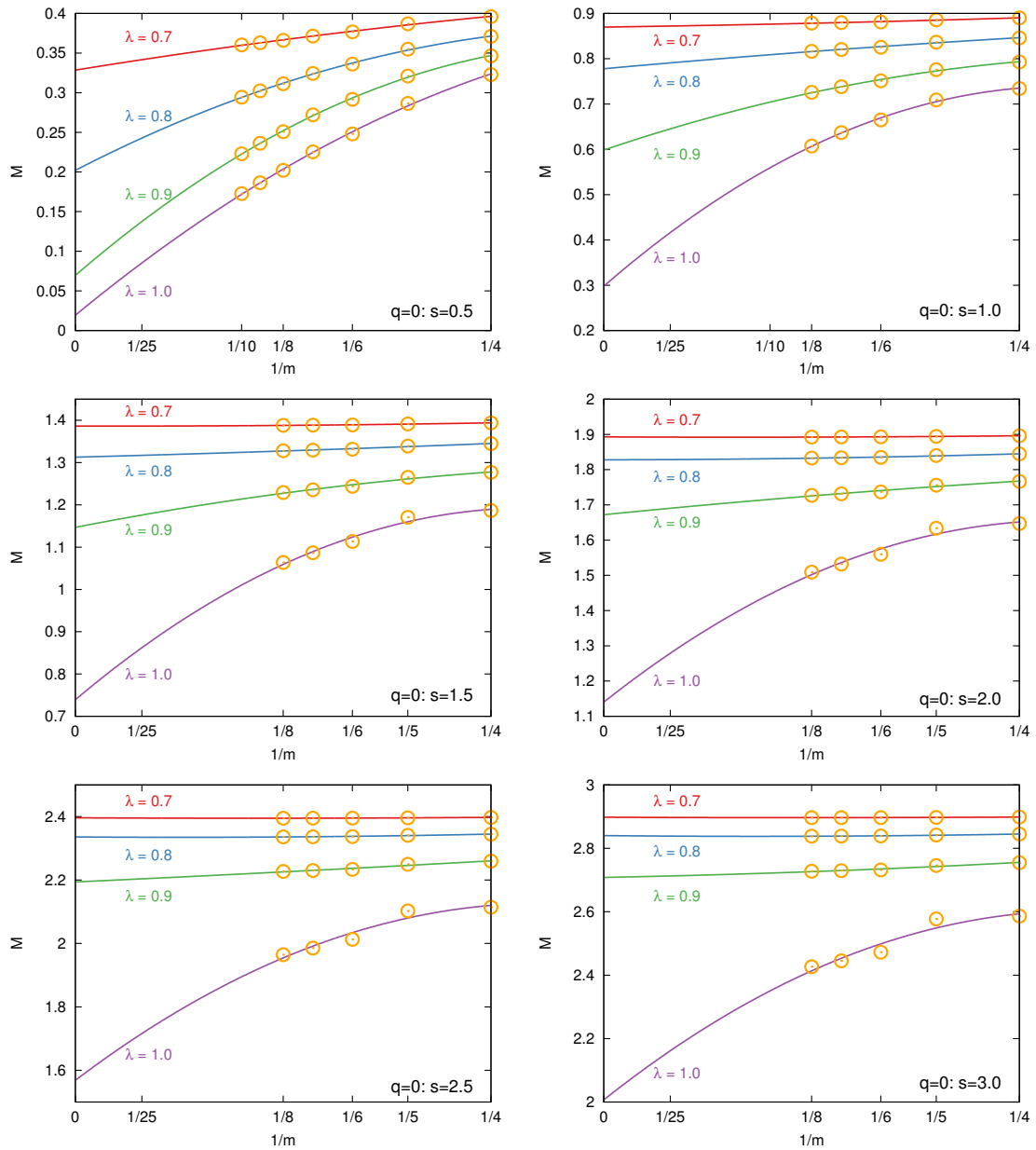


Abbildung A.7.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1,2}$ und der approximierten CCM-Ordnungsparameter für den „ $q = 0$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

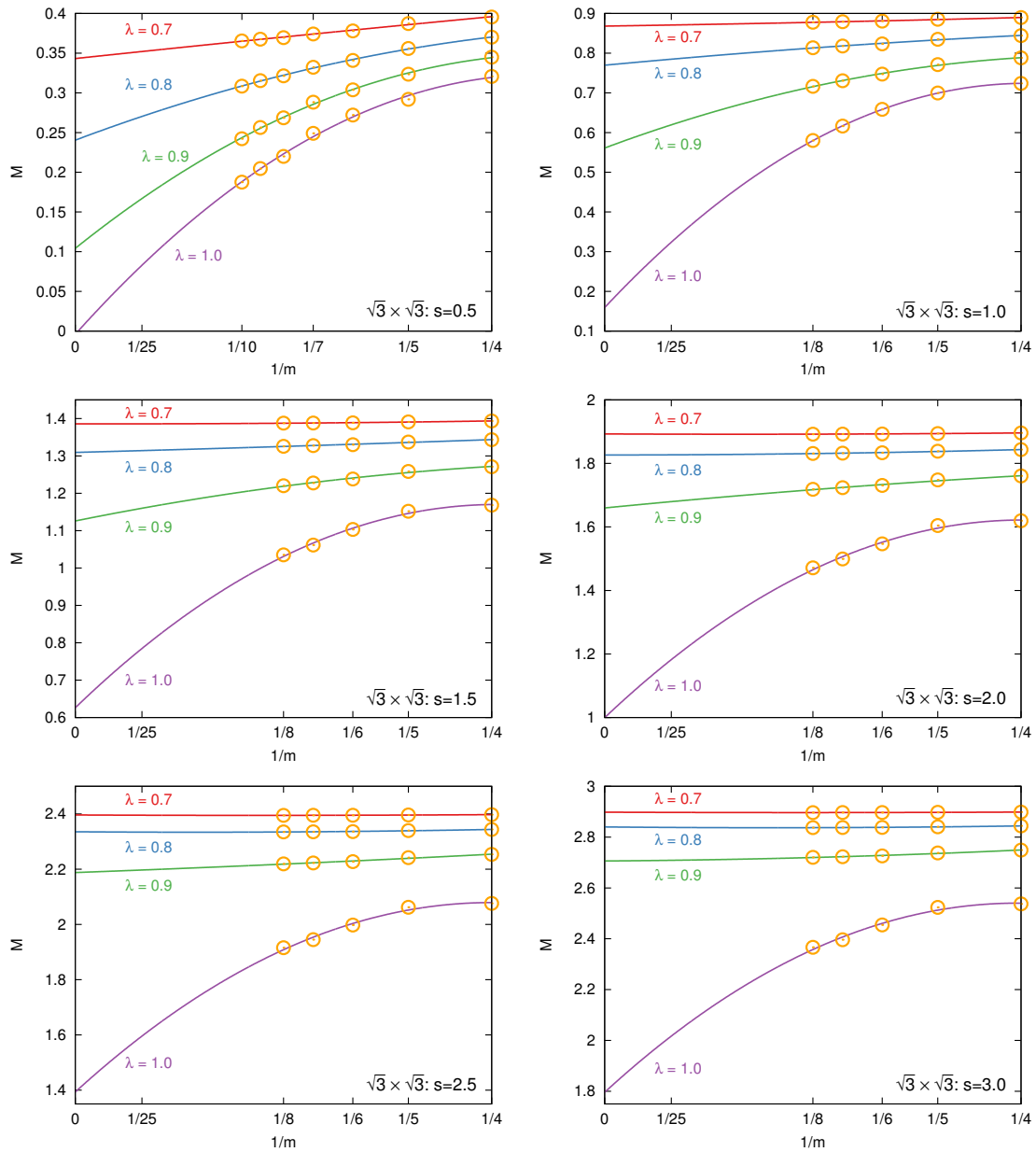


Abbildung A.8.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1,2}$ und der approxmierten CCM-Ordnungsparameter für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

A.4.2. XXZ Modell auf dem Kagomegitter

Für das XXZ-Modell auf dem Kagomegitter wurde die Grundzustandsenergie analog zu dem Vorgehen beim isotropen KHAFM auf der Basis der Fitfunktion:

$$E_N(n) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{n}\right)^2 + c \left(\frac{1}{n}\right)^4$$

extrapoliert, dabei wurden im Fall $s = \frac{1}{2}$ die Näherungsstufen SUB4-4 bis SUB10-10 und für $s \geq 1$ nur bis zur Stufe SUB8-8 berücksichtigt. Eine Darstellung der ermittelten Fitfunktionen sowie der verwendeten Rohdaten ist in den folgenden Abbildungen A.9 und A.10 zu finden.

Der magnetische Ordnungsparameter M wurde auf der Basis der folgenden beiden Ansätze extrapoliert:

$$M_1(n) = O_{1/2,3/2} = a + b \left(\frac{1}{n}\right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{n}\right)^{\frac{3}{2}},$$

$$M_2(n) = O_{1,2} = a + b \left(\frac{1}{n}\right)^1 + c \left(\frac{1}{n}\right)^2.$$

Wie bereits bei der Grundzustandsenergie wurden im Fall $s = \frac{1}{2}$ die Näherungsstufen SUB4-4 bis SUB10-10 berücksichtigt und für alle höheren Werte der Spinquantenzahlen ($s \geq 1$) bis zur Stufe SUB8-8. Die Fitfunktionen und approximierten Rohdaten sind in den Abbildungen A.11 und A.12 zu dargestellt.

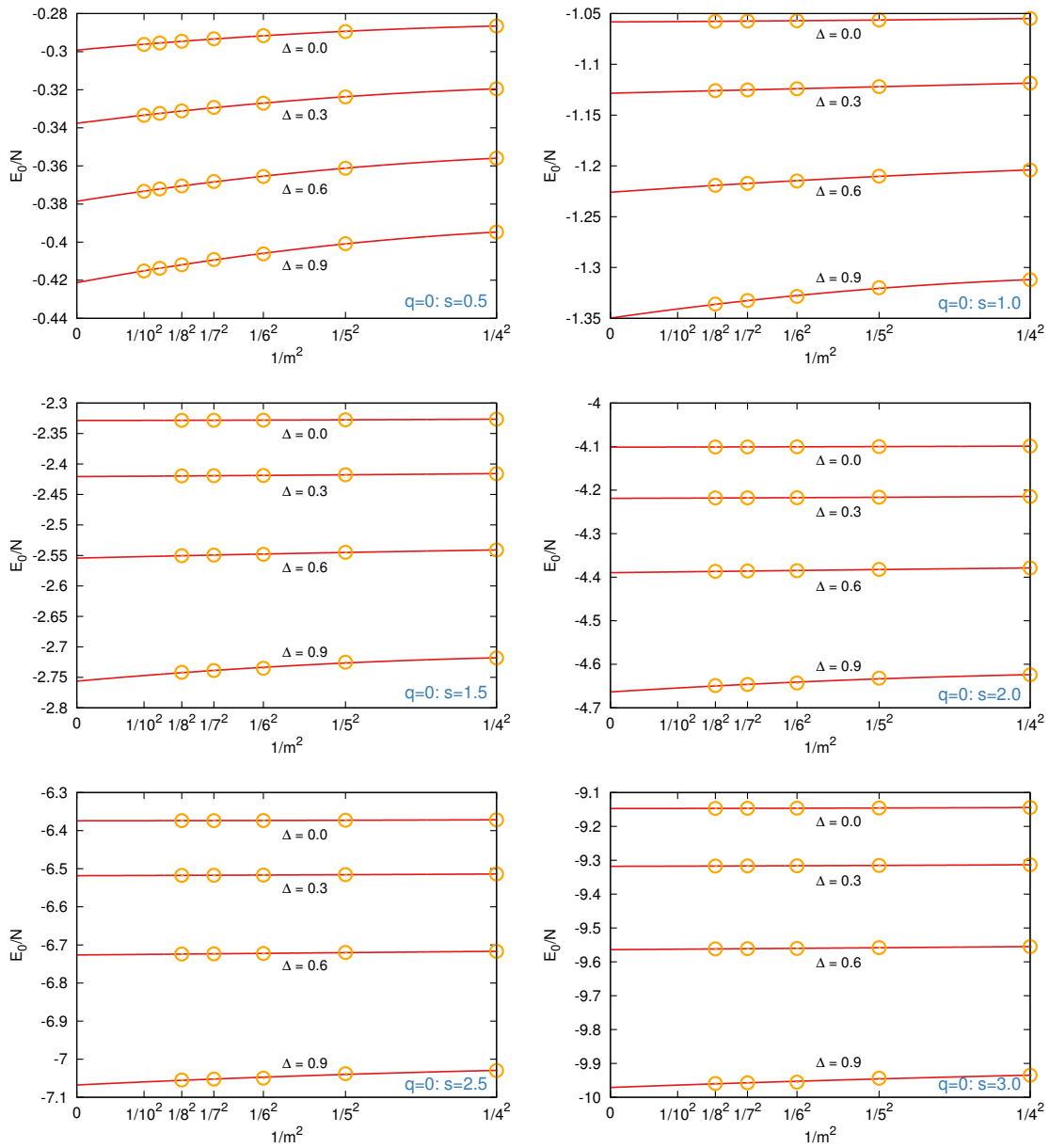


Abbildung A.9.: Darstellung der Fitfunktionen $E_N(n) = O_{2,4}$ und der approximierten CCM-Grundzustandsenergien für den „ $q = 0$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

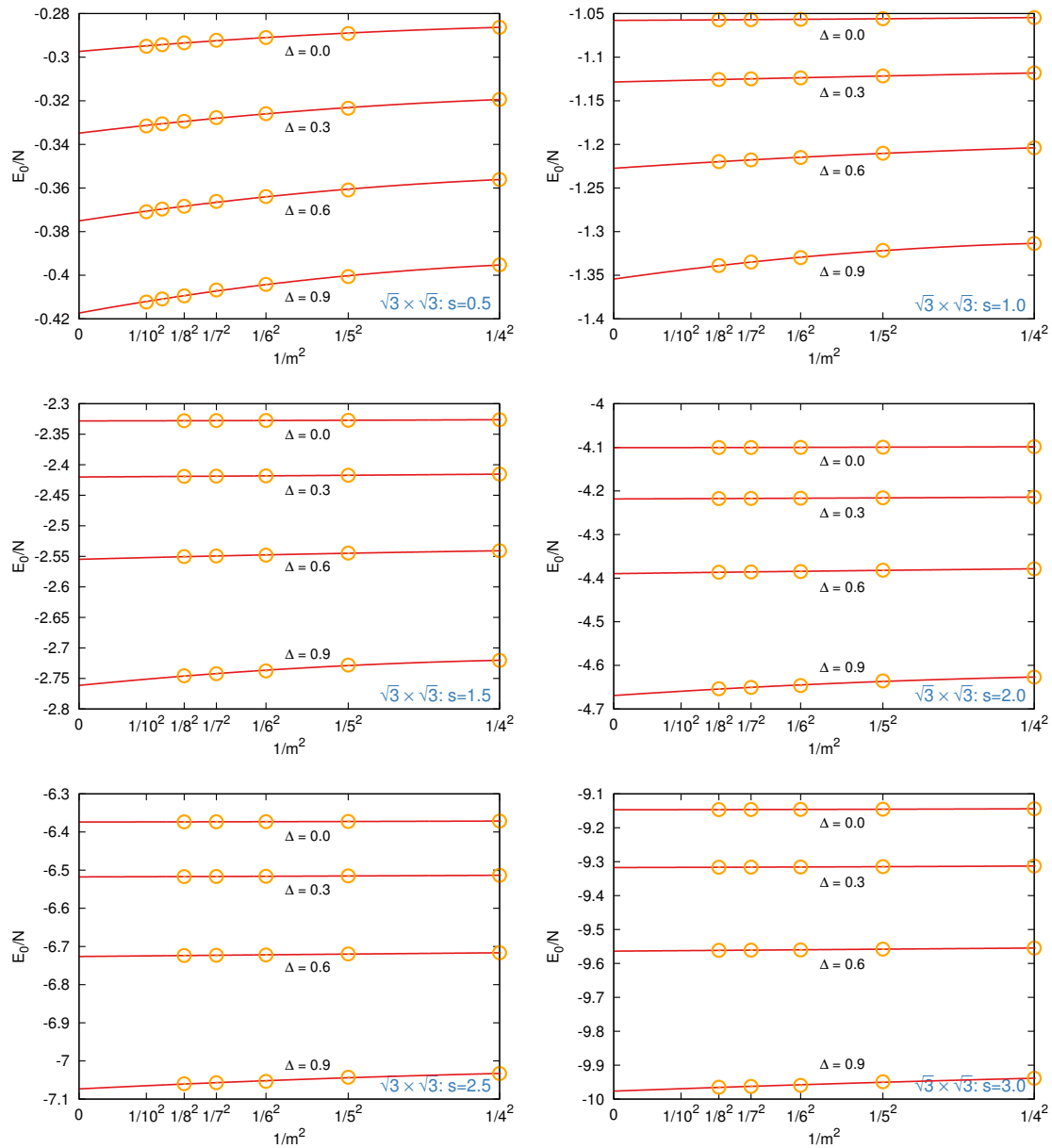


Abbildung A.10.: Darstellung der Fitfunktionen $E_N(n) = O_{2,4}$ und der approximierten CCM-Grundzustandsenergien für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

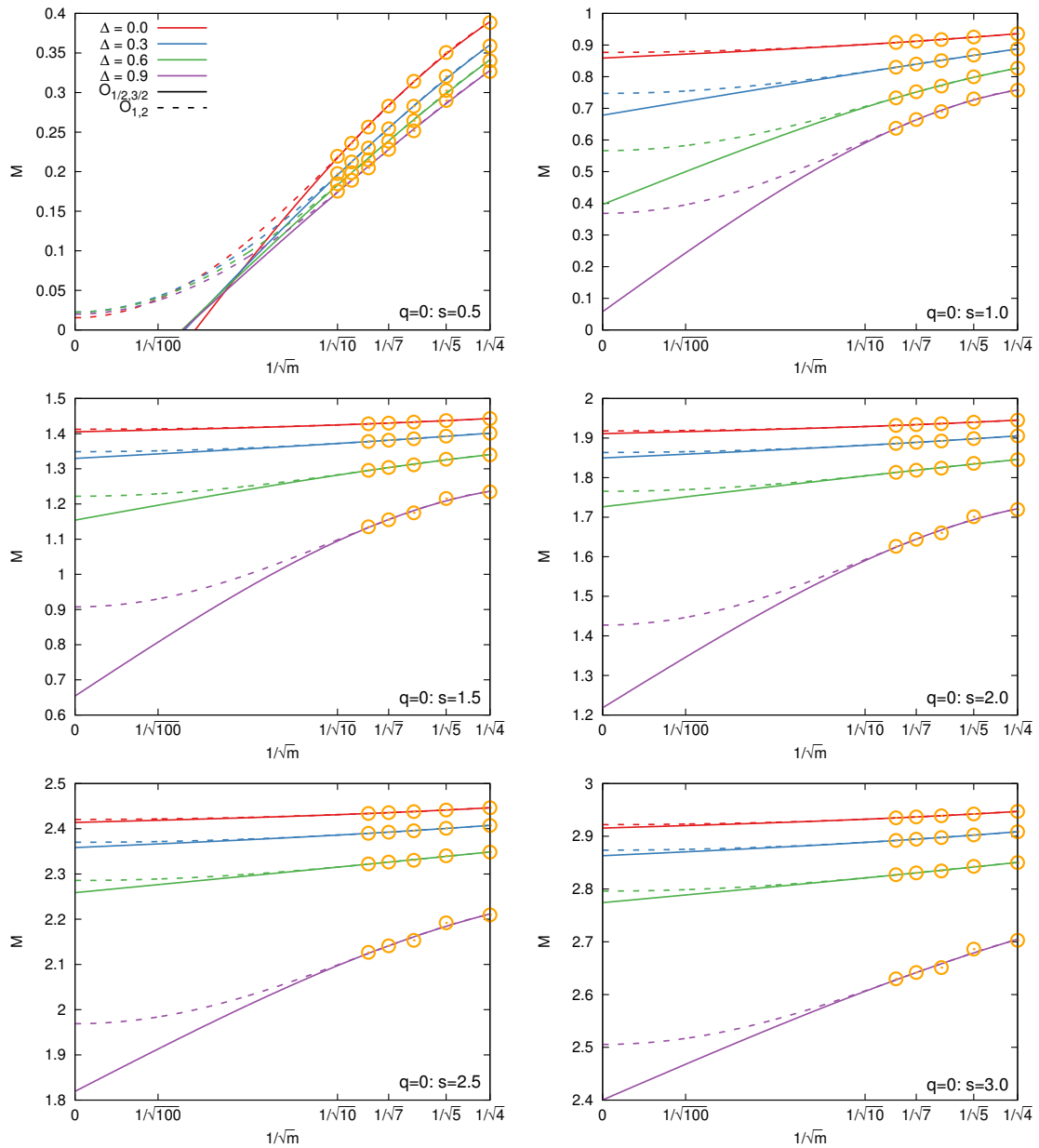


Abbildung A.11.: Darstellung der Fitfunktionen $M_1(n) = O_{1/2,3/2}$ und $M_2(n) = O_{1,2}$ des approximierten magnetischen Ordnungsparameters für den „ $q = 0$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

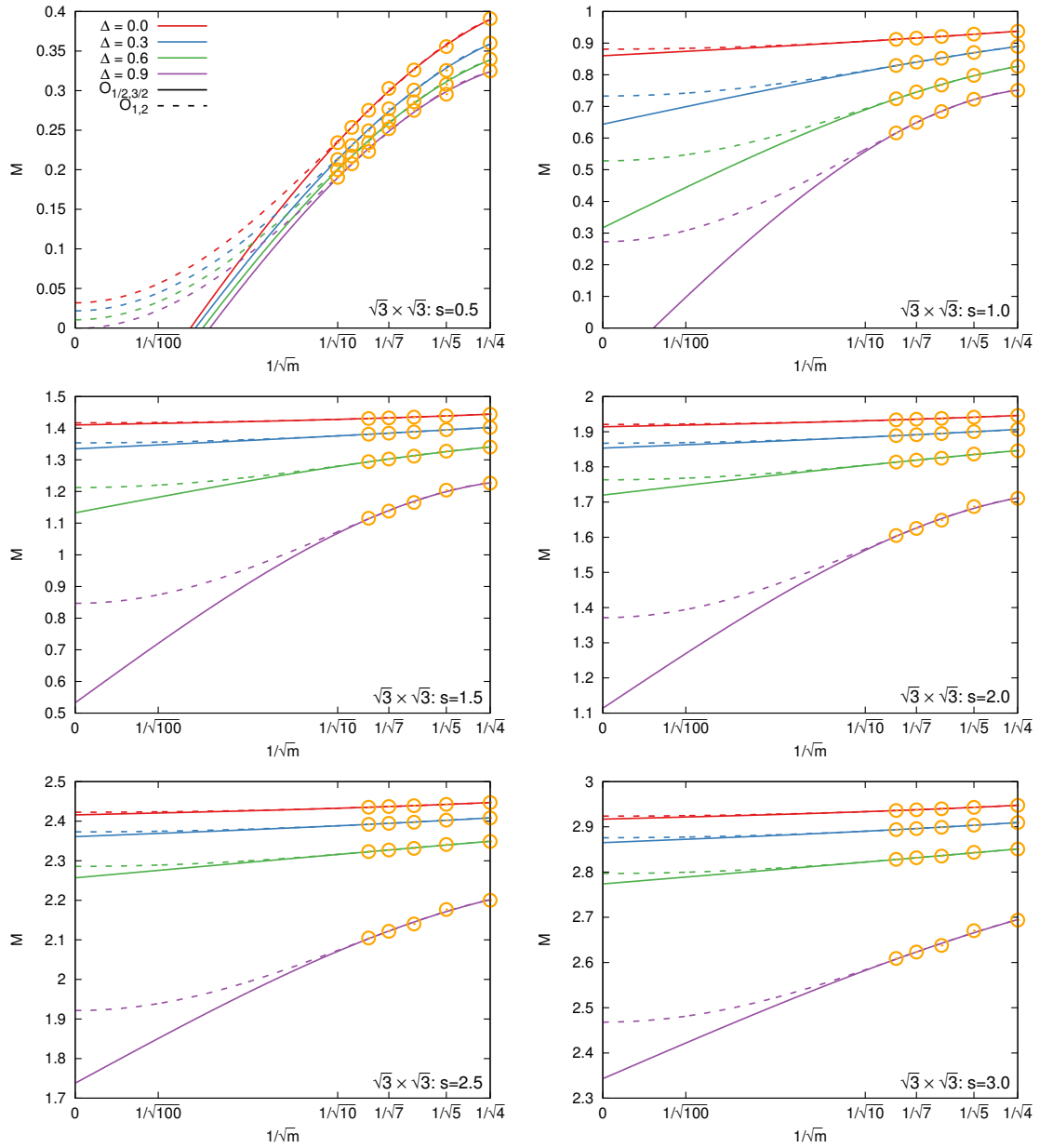


Abbildung A.12.: Darstellung der Fitfunktionen $M_1(n) = O_{1/2,3/2}$ und $M_2(n) = O_{1,2}$ des approximierten magnetischen Ordnungsparameters für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand für alle Spinquantenzahlen von $s = 0.5$ bis $s = 3$.

A.4.3. HAFM auf dem geschichteten Kagomegitter

Für den HAFM auf dem geschichteten Kagomegitter wurden approximierete Daten für die Grundzustandsenergie und den magnetischen Ordnungsparameter bis zur Stufe LSUB8 berechnet. Unter Einbeziehung aller Daten ab LSUB4 wurden dann für beide Observablen und für verschiedene fixierte Werte der Zwischenschichtenkopplung J_{\perp} eine bzw. zwei Extrapolationen berechnet. Die Extrapolationen der Grundzustandsenergie erfolgten wieder unter Verwendung der Standardfitfunktion

$$E_N(m) = O_{2,4} = a + b \left(\frac{1}{m} \right)^2 + c \left(\frac{1}{m} \right)^4 .$$

Eine grafische Darstellung für beide Modellzustände erfolgt in den Abbildungen A.13. Der magnetische Ordnungsparameter M wurde auf der Basis der folgenden beiden Ansätze extrapoliert:

$$M_1(m) = O_{1/2,3/2} = a + b \left(\frac{1}{n} \right)^{\frac{1}{2}} + c \left(\frac{1}{n} \right)^{\frac{3}{2}} ,$$

$$M_2(m) = O_{1,2} = a + b \left(\frac{1}{n} \right)^1 + c \left(\frac{1}{n} \right)^2 .$$

Die Fitfunktionen und approximierten Rohdaten sind in den Abbildungen A.15 und A.14 dargestellt. Auch für dieses Modell zeigt sich, dass die approximierete Grundzustandsenergie als Funktion der verwendeten LSUB m -Näherungsstufe sehr gut durch das Standardschema $O_{2,4}$ gefittet werden kann. Sowohl für ferromagnetische als auch für antiferromagnetische Zwischenschichtenkopplungen zeigen sich innerhalb des Bereiches $-1.5 \leq J_{\perp} \leq 1.5$ nur sehr schwache Abweichungen von der erwarteten quadratischen Abhängigkeit, die offensichtlich problemlos durch den biquadratischen Term kompensiert werden können.

Die Extrapolation der magnetischen Ordnungsparameter ist aufgrund der angenommenen \sqrt{m} -Abhängigkeit von der verwendeten Näherungsstufe bei einer Maximalstufe von LSUB8 naturgemäß deutlich weniger genau. Es zeigt sich aber, dass unter den beiden Alternativen das M_1 -Schema bzw. der Ansatz mit primärem \sqrt{m} -Term deutlich konsistentere Resultate liefert, während das M_2 -Schema im gesamten Parameterbereich den magnetischen Ordnungsparameter offensichtlich überschätzt. Der ebenfalls erkennbare *Odd-Even-Effekt* für höhere Werte einer antiferromagnetischen Zwischenschichtenkopplung hat allerdings keinen erkennbaren negativen Einfluss auf die Extrapolation des Ordnungsparameter in der Nähe der Nullstelle in der Region $J_{\perp} < 0.25$. Aufgrund des vorliegenden günstigen Monotonieverhaltens der Approximationen kann aber grundsätzlich festhalten werden, dass das M_1 -Schema durchaus geeignet ist zur Beschreibung wesentlicher qualitativer Eigenschaften des magnetischen Ordnungsparameters.

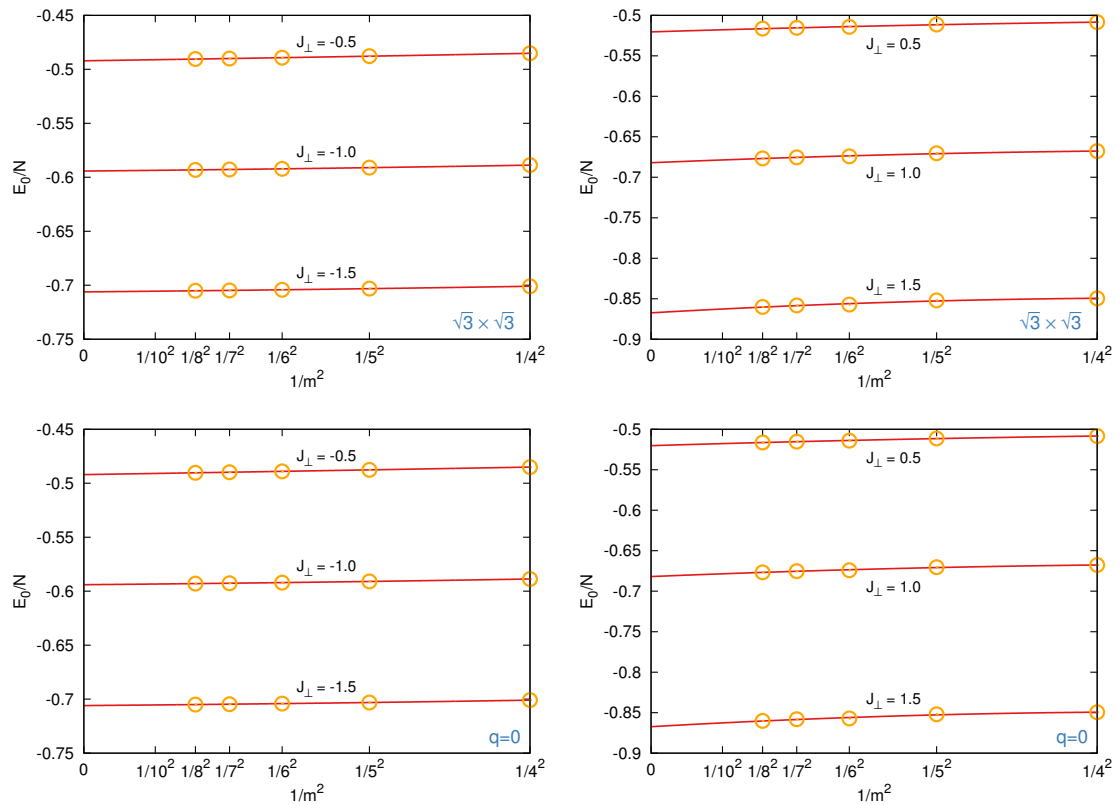


Abbildung A.13.: Darstellung der Fitfunktionen $E_N(n) = O_{2,4}$ und der approximierten CCM-Grundzustandsenergien für verschiedene Werte der Zwischenschichtenkopplung J_\perp für den „ $q = 0$ “- und den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand.

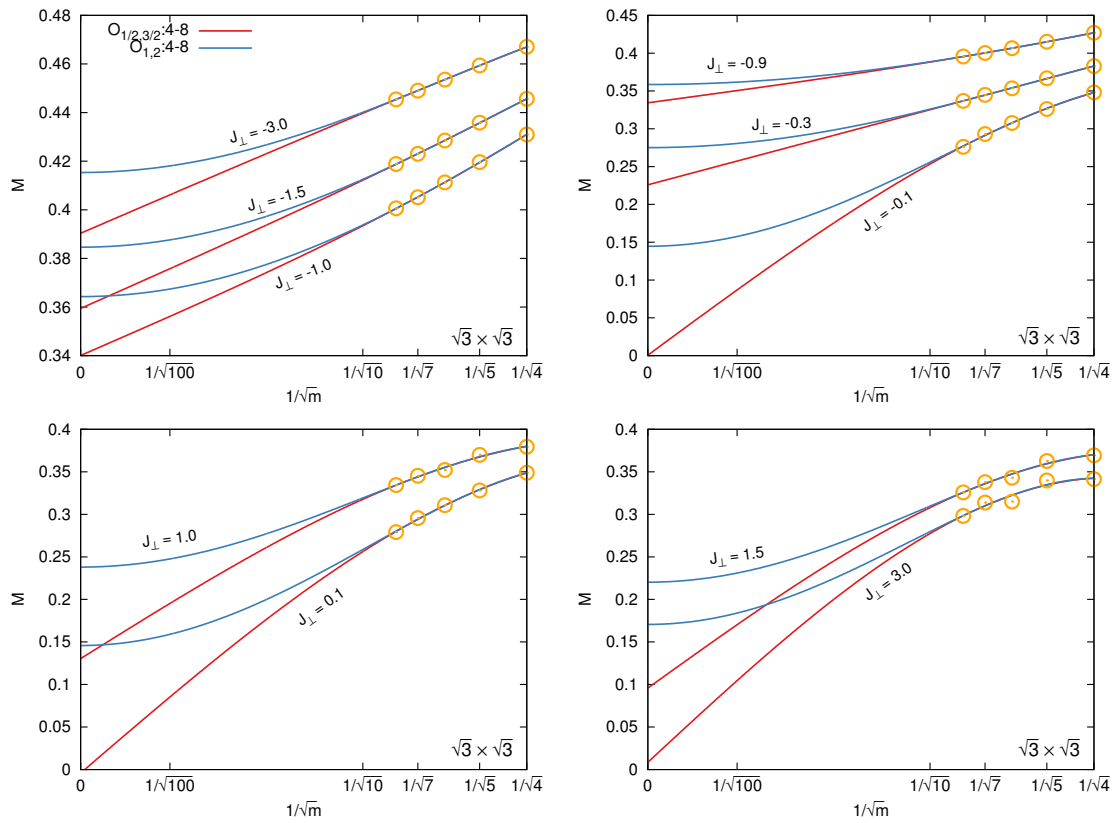


Abbildung A.14.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1/2,3/2}$ und $M(n) = O_{1,2}$ sowie der approximierten Daten des magnetischen Ordnungsparameters für verschiedene Werte der Zwischenschichtenkopplung J_{\perp} für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Modellzustand.

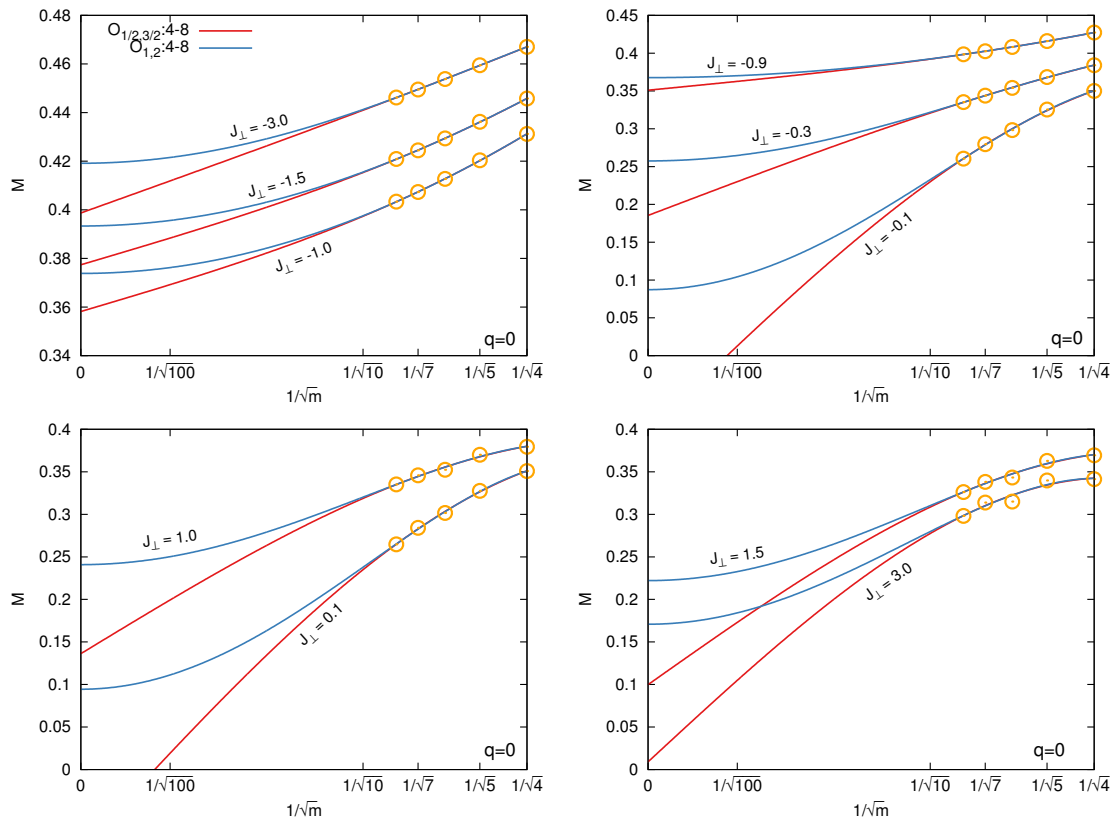


Abbildung A.15.: Darstellung der Fitfunktionen $M(n) = O_{1/2,3/2}$ und $M(n) = O_{1,2}$ sowie der approximierten Daten des magnetischen Ordnungsparameters für verschiedene Werte der Zwischenschichtenkopplung J_{\perp} für den „ $q = 0$ “-Modellzustand.

A.4.4. J - J' - J_d -Modell auf dem Quadratgitter

Es folgt nun die Auflistung der grafischen Darstellungen aller bestimmten Fitfunktionen für das J - J' - J_d -Modell auf dem Quadratgitter. Da die folgenden Abbildungen, über die bereits in den zugehörigen Modellabschnitten 4.2 und 4.3 hinaus diskutierten Aspekte keine weiteren relevanten Besonderheiten aufweisen, werden sie hier nur ergänzend aufgeführt, aber nicht erneut diskutiert.

Grundzustandsenergieextrapolationen für den Singulett-Modellzustand

Aus den auf dem Singulett-Modellzustand basierenden Approximationen für die Grundzustandsenergie wurden Extrapolationen für die exakte Grundzustandsenergie berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.16 und A.17 dargestellt.

Grundzustandsenergieextrapolationen für den Néel-Modellzustand

Aus den auf dem Néel-Modellzustand basierenden Approximationen für die Grundzustandsenergie wurden Extrapolationen für die exakte Grundzustandsenergie berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.18 dargestellt.

Grundzustandsenergieextrapolationen für den CAF-Modellzustand

Aus den auf dem CAF-Modellzustand basierenden Approximationen für die Grundzustandsenergie wurden Extrapolationen für die exakte Grundzustandsenergie berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.19 dargestellt.

Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters für den Néel-Modellzustand

Aus den auf dem Néel-Modellzustand basierenden Approximationen für den magnetischen Ordnungsparameter wurden Extrapolationen für den exakten Grenzfall berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.20 dargestellt. Der Vollständigkeit halber sind hier sowohl das $O_{1/2,3/2}$ -Schema als auch das $O_{1,2}$ -Schema aufgeführt.

Extrapolationen des magnetischen Ordnungsparameters für den CAF-Modellzustand

Aus den auf dem CAF-Modellzustand basierenden Approximationen für den magnetischen Ordnungsparameter wurden Extrapolationen für den exakten Grenzfall berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.21 dargestellt. Der Vollständigkeit halber sind hier sowohl das $O_{1/2,3/2}$ -Schema als auch das $O_{1,2}$ -Schema aufgeführt.

Extrapolationen des Dimer-Ordnungsparameters für den Singulett-Modellzustand

Aus den auf dem Singulett-Modellzustand basierenden Approximationen für Dimer-Ordnungsparameter wurden Extrapolationen für den exakten Grenzfall berechnet. Die dafür ermittelten Fitfunktionen sind in den Abbildungen A.22 und A.23 dargestellt.

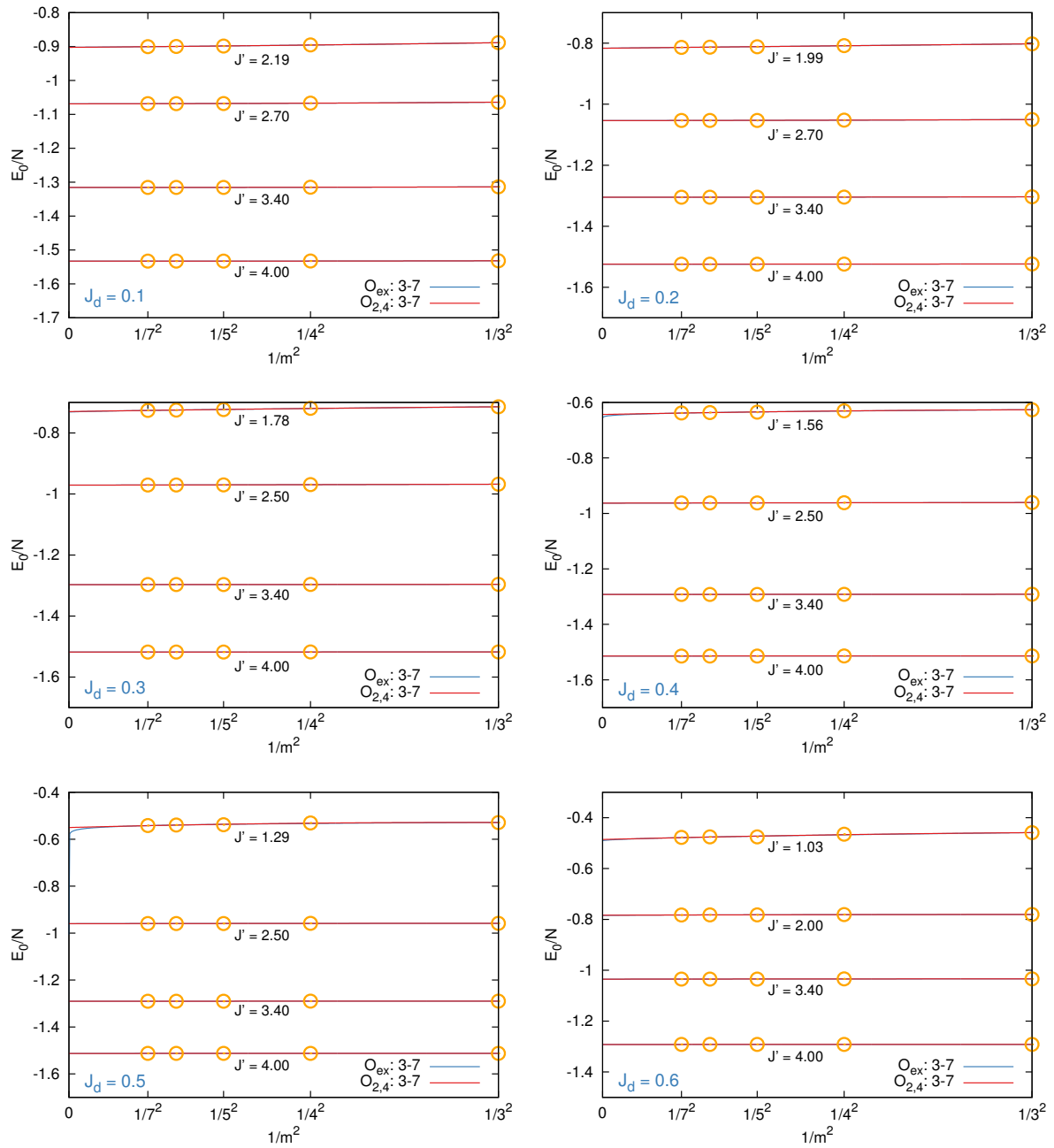


Abbildung A.16.: Fitfunktionen für die Extrapolation der Grundzustandsenergie basierend auf dem Singulett-Modellzustand das J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen DLSUB3 bis DLSUB7 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

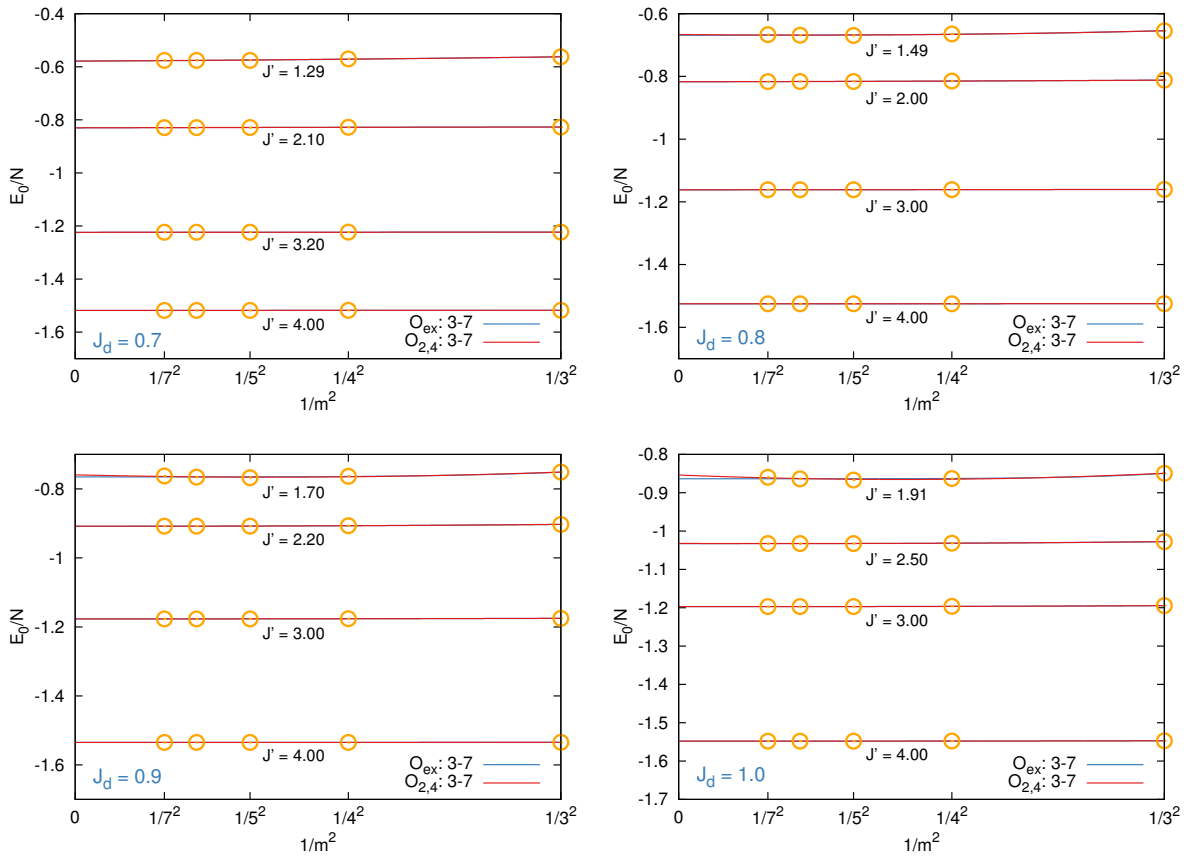


Abbildung A.17.: Fitfunktionen für die Extrapolation der Grundzustandsenergie basierend auf dem Singulett-Modellzustand des J - J' - J_d Modells. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen DLSUB3 bis DLSUB7 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

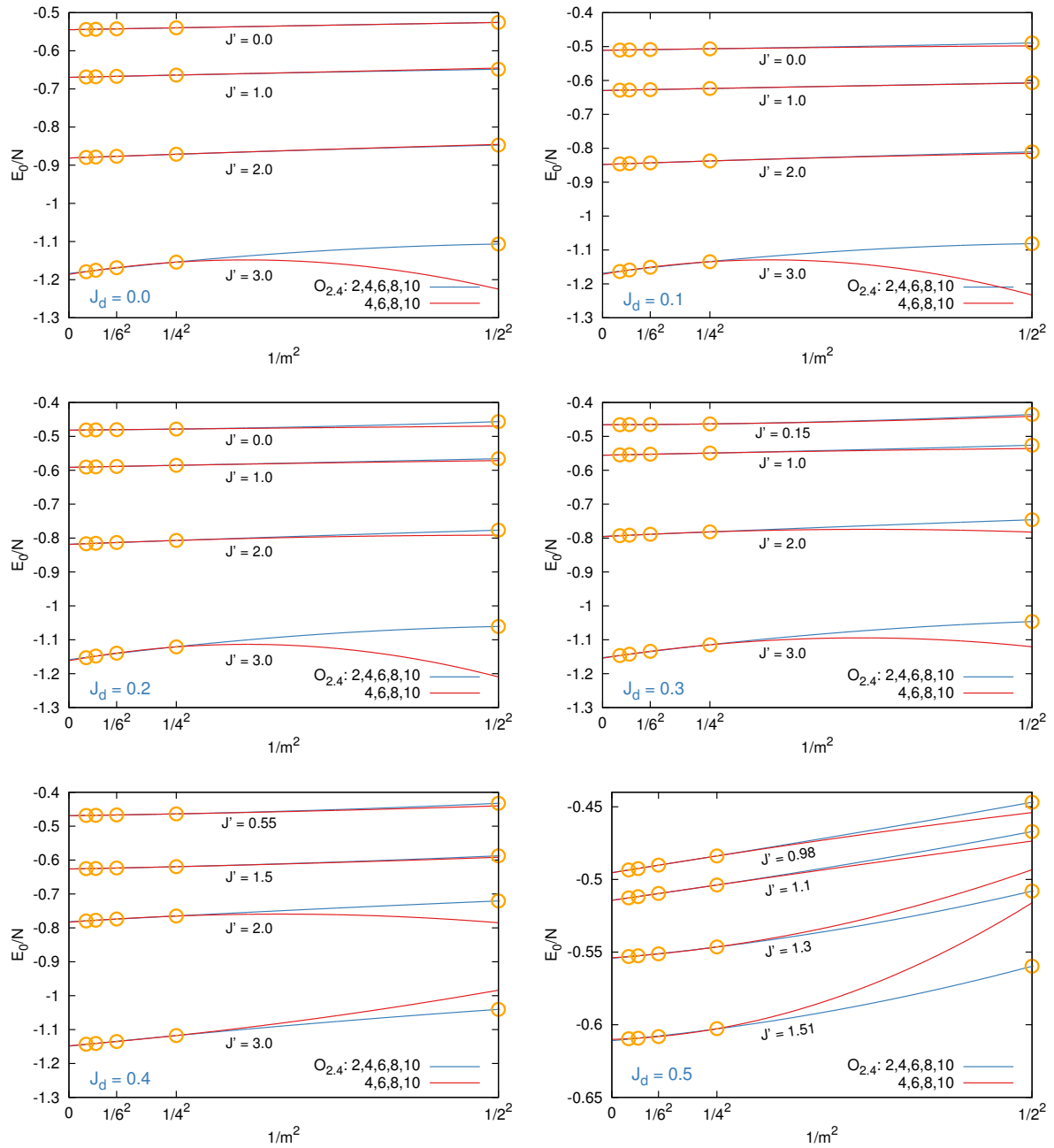


Abbildung A.18.: Fitfunktionen für die Extrapolation der Grundzustandsenergie basierend auf dem Néel-Modellzustand das J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen LSUB2 bis LSUB10 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

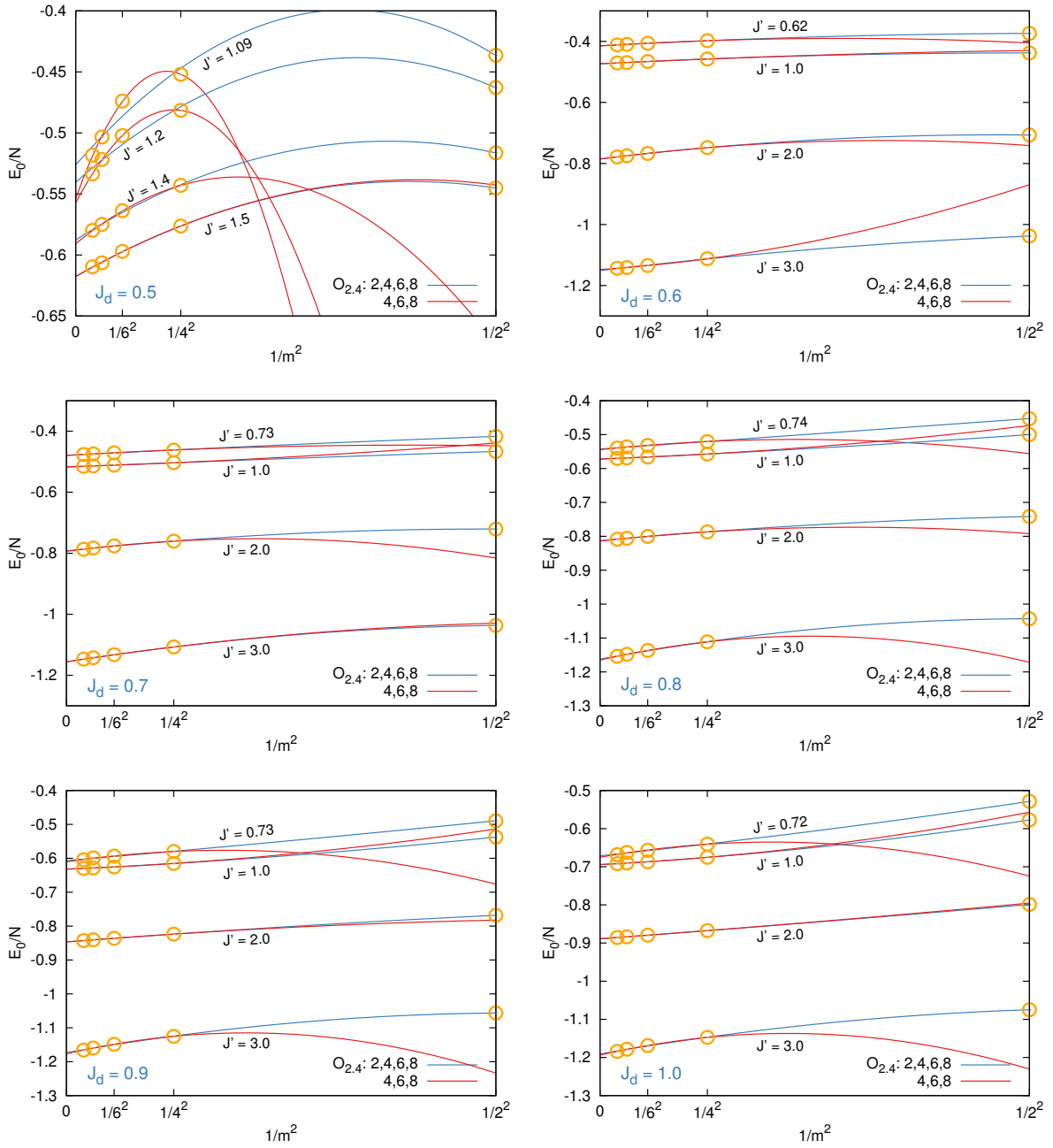


Abbildung A.19.: Fitfunktionen für die Extrapolation der Grundzustandsenergie basierend auf dem CAF-Modellzustand das J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen LSUB2 bis LSUB10 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

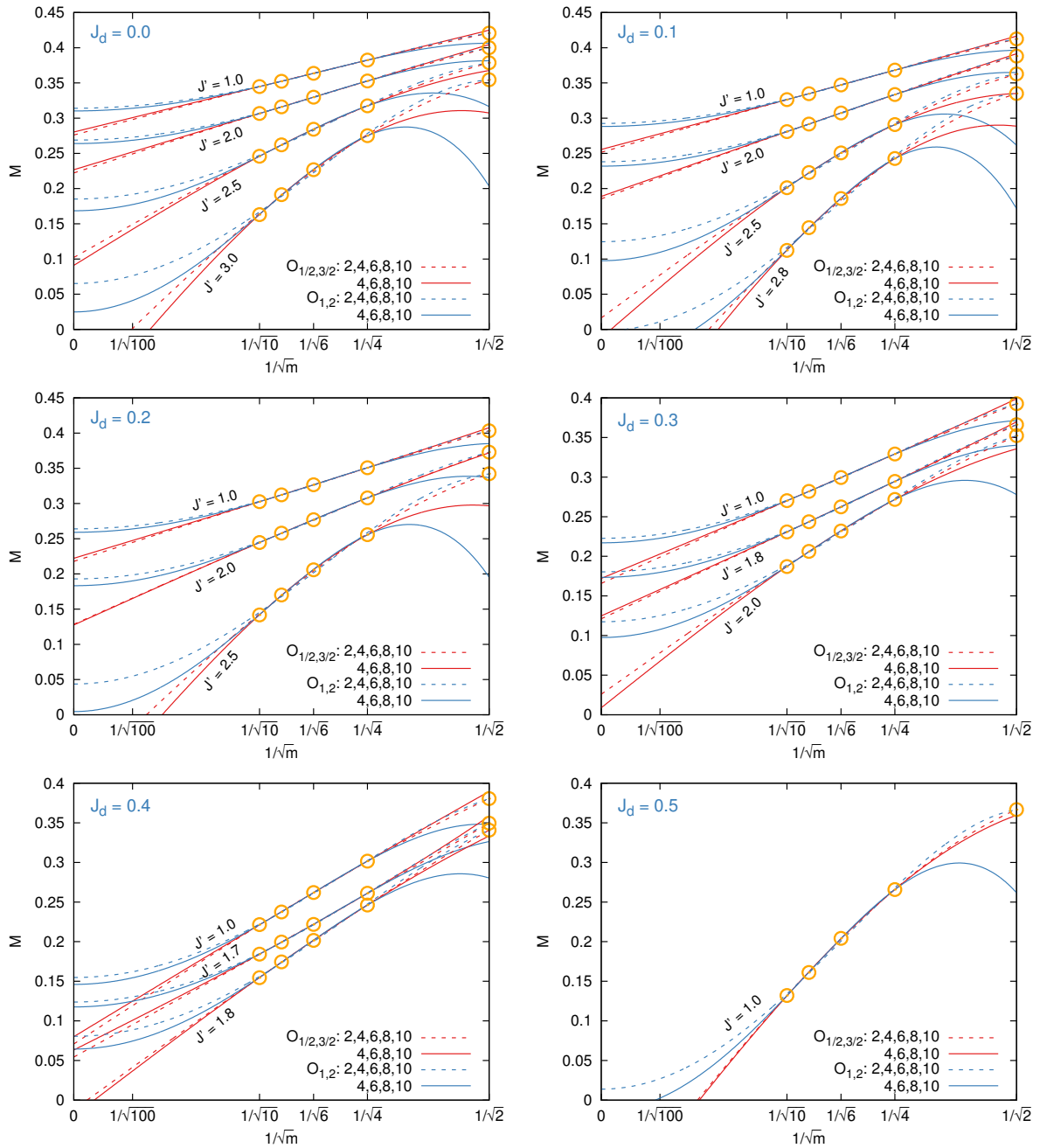


Abbildung A.20.: Fitfunktionen für die $O_{1/2,3/2}$ und die $O_{1,2}$ Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters basierend auf dem Néel-Modellzustand des J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen LSUB2 bis LSUB10 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

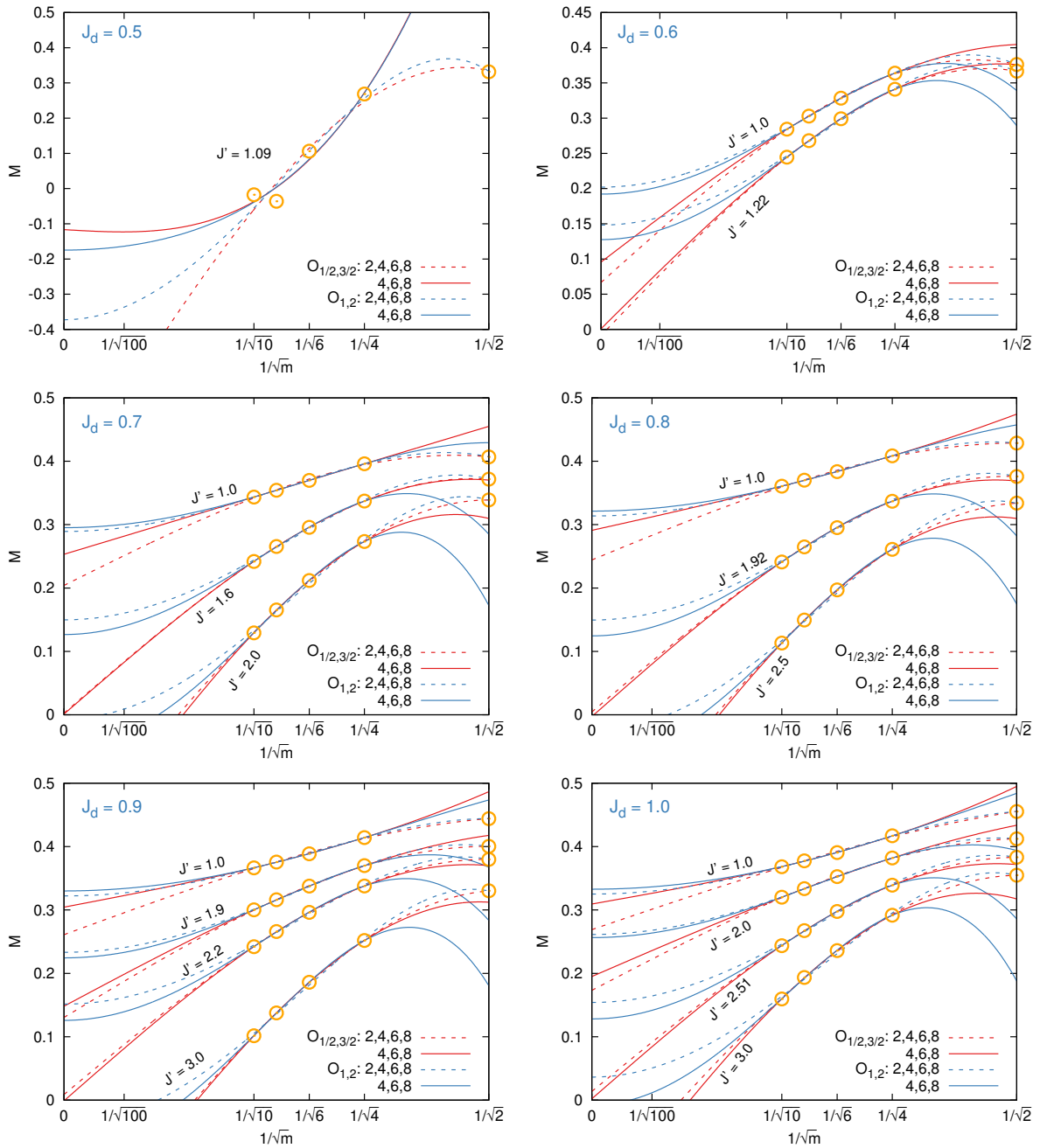


Abbildung A.21.: Fitfunktionen für die $O_{1/2,3/2}$ und die $O_{1,2}$ Extrapolation des magnetischen Ordnungsparameters basierend auf dem CAF-Modellzustand des J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen LSUB2 bis LSUB10 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

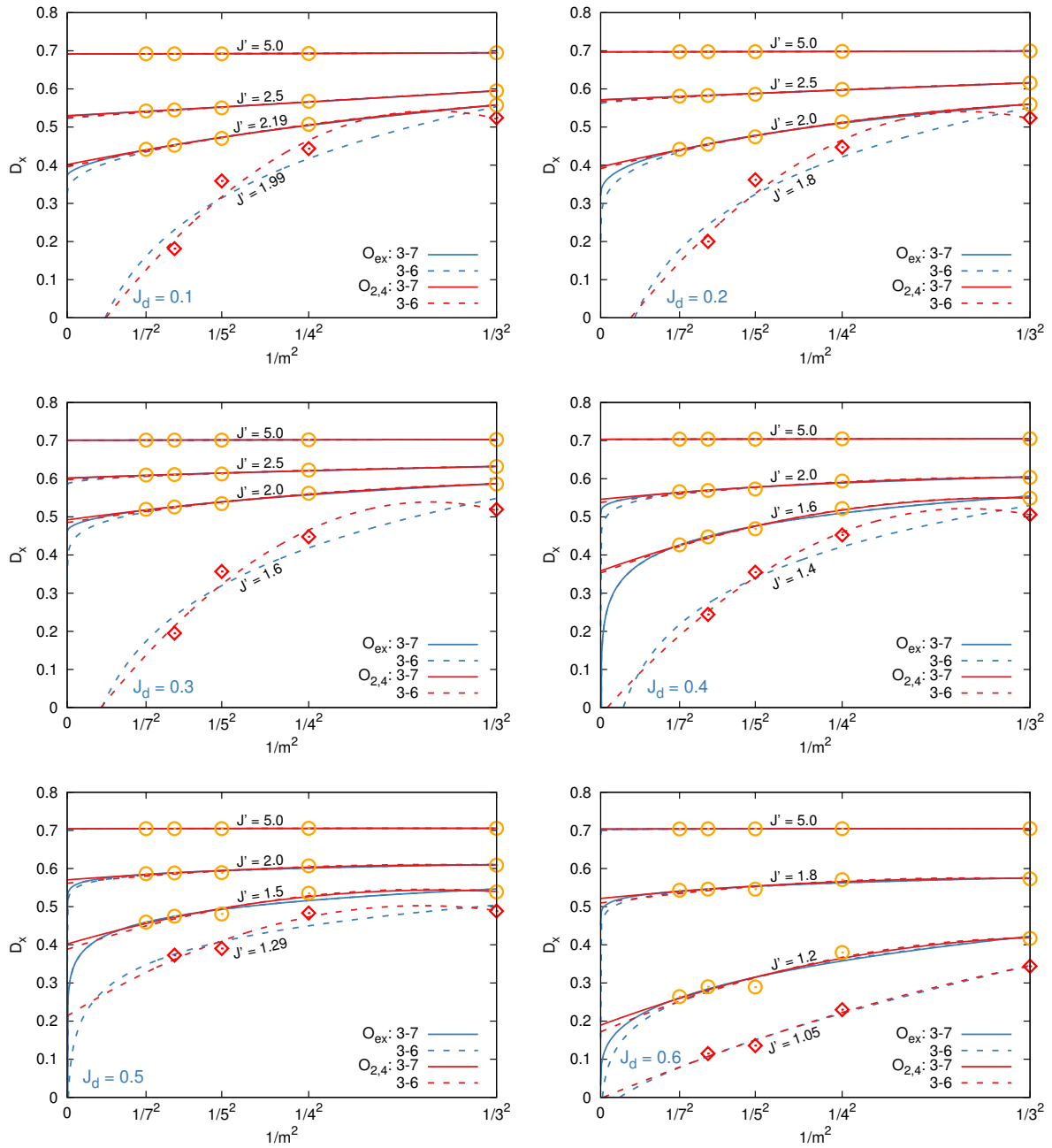


Abbildung A.22.: Fitfunktionen für die Extrapolation des Dimer-Ordnungsparameters basierend auf dem Singulett-Modellzustand das J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen DLSUB3 bis DLSUB7 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

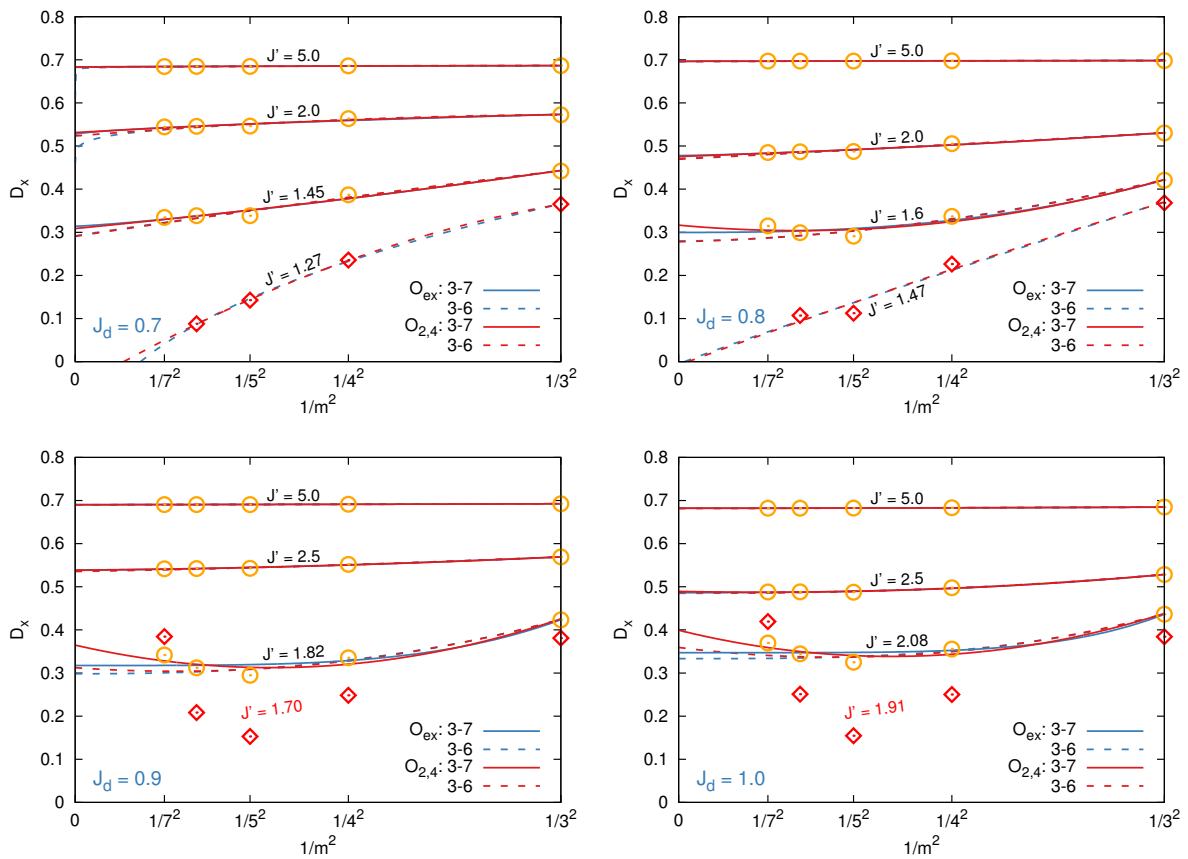


Abbildung A.23.: Fitfunktionen für die Extrapolation des Dimer-Ordnungsparameters basierend auf dem Singulett-Modellzustand das J - J' - J_d Modell. Dargestellt sind die berücksichtigten Näherungsstufen DLSUB3 bis DLSUB7 für verschiedene Werte der Diagonalkopplungsstärke J_d und der Dimerkopplung J' .

Literatur

- [1] Damian J.J. Farnell und J. Schulenburg. *Das in der Programmiersprache "C"geschriebene Standardprogramm zur Anwendung des CCM Algorithmus' auf Heisenberg Spinsysteme*. Hrsg. von J. Schulenburg. 9. Dez. 2011. URL: <http://www-e.uni-magdeburg.de/jschulen/ccm/index.html>.
- [2] F. Coester. „Bound states of a many-particle system“. In: *Nucl. Phys.* 7 (10. Apr. 1958), S. 421–424. ISSN: 0029-5582. DOI: [doi:10.1016/0029-5582\(58\)90280-3](https://doi.org/10.1016/0029-5582(58)90280-3). URL: [http://dx.doi.org/10.1016/0029-5582\(58\)90280-3](http://dx.doi.org/10.1016/0029-5582(58)90280-3).
- [3] F. Coester und H. Kümmel. „Short-range correlations in nuclear wave functions“. In: *Nucl. Phys.* 17 (18. Feb. 1960), S. 477–485. ISSN: 0029-5582. DOI: [10.1016/0029-5582\(60\)90140-1](https://doi.org/10.1016/0029-5582(60)90140-1). URL: [http://dx.doi.org/10.1016/0029-5582\(60\)90140-1](http://dx.doi.org/10.1016/0029-5582(60)90140-1).
- [4] H. Kümmel. „Theory of many-body wave functions with correlations“. In: *Nucl. Phys. A* 176.1 (22. Apr. 1971), S. 205–218. ISSN: 0375-9474. DOI: [10.1016/0375-9474\(71\)90741-X](https://doi.org/10.1016/0375-9474(71)90741-X). URL: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(71\)90741-X](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(71)90741-X).
- [5] H. Kümmel und K.H. Lührmann. „Equations for linked clusters and the energy variational principle“. In: *Nucl. Phys. A* 191.3 (10. Mai 1972), S. 525–534. ISSN: 0375-9474. DOI: [doi:10.1016/0375-9474\(72\)90629-X](https://doi.org/10.1016/0375-9474(72)90629-X). URL: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(72\)90629-X](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(72)90629-X).
- [6] K.H. Lührmann und H. Kümmel. „Equations for linked clusters and Brueckner-Bethe theory“. In: *Nucl. Phys. A* 194.2 (19. Juni 1972), S. 225–236. ISSN: 0375-9474. DOI: [10.1016/0375-9474\(72\)91037-8](https://doi.org/10.1016/0375-9474(72)91037-8). URL: [http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474\(72\)91037-8](http://dx.doi.org/10.1016/0375-9474(72)91037-8).
- [7] Jiří Čížek. „On the Correlation Problem in Atomic and Molecular Systems. Calculation of Wavefunction Components in Ursell-Type Expansion Using Quantum-Field Theoretical Methods“. In: *J. Chem. Phys.* 45.11 (17. Mai 1966), S. 4256–4266. DOI: [10.1063/1.1727484](https://doi.org/10.1063/1.1727484). URL: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1727484>.
- [8] M. Roger und J. H. Hetherington. „Coupled-cluster approximation for spin lattices: Application to solid ^3He “. In: *Phys. Rev. B* 41.1 (1. Jan. 1990), S. 200–219. DOI: [10.1103/PhysRevB.41.200](https://doi.org/10.1103/PhysRevB.41.200). URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.41.200>.

- [9] Raymond F. Bishop. „The Coupled Cluster Method. Proceedings of a European Summer School, Held at Valencia, Spain, 8-19 September 1997“. In: *Microscopic Quantum Many-Body Theories and Their Applications*. Hrsg. von Jesus Navarro und Artur Polls. Lecture Notes in Physics 510. Berlin: Spinger, 20. Mai 1998.
- [10] Wissam A. Ameen, Niels R. Walet und Yang Xian. *Electronic correlations in the Hubbard model on a bi-partite lattice*. Version 2. 2. Nov. 2015. arXiv: <http://arxiv.org/abs/1510.08751v2>. URL: <http://arxiv.org/abs/1510.08751v2>.
- [11] R. F. Bishop. „An overview of coupled cluster theory and its applications in physics“. In: *Theor Chim Acta* 80.2 (19. März 1991), S. 95–148. DOI: 10.1007/BF01119617. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01119617>.
- [12] Jouko Arponen. „Variational principles and linked-cluster exp S expansions for static and dynamic many-body problems“. In: *Annals of Physics* 151.2 (1983), S. 311–382. ISSN: 0003-4916. DOI: 10.1016/0003-4916(83)90284-1. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0003491683902841>.
- [13] Y. Xian. „Theory of Valence-Bond lattice on spin Lattices. Text of an invited talk given at The 18th International Workshop on Condensed Matter Theories“. Valencia, Spain, 6. Juni 1994. URL: <http://arxiv.org/abs/cond-mat/9407117v1>.
- [14] D. J. J. Farnell, R. F. Bishop und K. A. Gernoth. „Coupled Cluster Method Calculations of Quantum Magnets with Spins of General Spin Quantum Number“. In: *J. Stat. Phys.* 108.3 (Aug. 2002), S. 401–428. DOI: 10.1023/A:1015769622279. URL: <http://dx.doi.org/10.1023/A:1015769622279>.
- [15] Ronald Zinke. „Anwendung der Coupled-Cluster-Methode zur Untersuchung frustrierter quasi-eindimensionaler und zweidimensionaler Quantenspinsysteme“. Diss. Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 19. Jan. 2010.
- [16] Chen Zeng, D. J. J. Farnell und R. F. Bishop. „An Efficient Implementation of High-Order Coupled-Cluster Techniques Applied to Quantum Magnets“. In: *J. Stat. Phys.* 90.1 (1998), S. 327–361. ISSN: 1572-9613. DOI: 10.1023/A:1023220222019. URL: <http://dx.doi.org/10.1023/A:1023220222019>.
- [17] Sven E. Krüger. „Analytische Methoden zur Untersuchung von niederdimensionalen Quantenspinsystemen: Coupled-Cluster-Methode und Spinwellentheorie“. Diss. Otto-von-Guericke-Universität Magdeburg, 11. Mai 2000.
- [18] D.J.J. Farnell und R.F. Bishop. „The Coupled Cluster Method Applied to the XXZ Model on the Square Lattice“. In: *ArXiv e-prints* (2006). arXiv: cond-mat/0606060 [cond-mat.str-el]. URL: <https://arxiv.org/abs/cond-mat/0606060>.

- [19] D. J. J. Farnell und R. F. Bishop. „Odd and even behavior with LSUBm approximation level in high-order coupled cluster method (CCM) calculations“. In: *Int. J. Mod. Phys. B* 22.20 (2008), S. 3369–3379. DOI: 10.1142/S021797920803999X. URL: <http://www.worldscientific.com/doi/abs/10.1142/S021797920803999X>.
- [20] M. Azuma, Z. Hiroi, M. Takano, K. Ishida und Y. Kitaoka. „Observation of a Spin Gap in SrCu₂O₃ Comprising Spin-1/2 Quasi-1D Two-Leg Ladders“. In: *Phys. Rev. Lett.* 73.25 (19. Dez. 1994), S. 3463–3466. DOI: 10.1103/PhysRevLett.73.3463. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.73.3463>.
- [21] H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. V. Mushnikov, K. Onizuka, M. Kato, K. Kosuge, C. P. Slichter, T. Goto und Y. Ueda. „Exact Dimer Ground State and Quantized Magnetization Plateaus in the Two-Dimensional Spin System SrCu₂(BO₃)₂“. In: *Phys. Rev. Lett.* 82.15 (12. Apr. 1999), S. 3168–3171. DOI: 10.1103/PhysRevLett.82.3168. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.82.3168>.
- [22] T. Nikuni, M. Oshikawa, A. Oosawa und H. Tanaka. „Bose-Einstein Condensation of Dilute Magnons in TlCuCl₃“. In: *Phys. Rev. Lett.* 84.25 (19. Mai 2000), S. 5868–5871. DOI: 10.1103/PhysRevLett.84.5868. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.84.5868>.
- [23] J. B. Parkinson. „Theory of spin waves in a one-dimensional Heisenberg antiferromagnet“. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 12.14 (1979), S. 2873. ISSN: 0022-3719. DOI: 10.1088/0022-3719/12/14/022.
- [24] Y. Xian. „A microscopic approach to the dimerization in frustrated spin- 1/2 antiferromagnetic chains“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 6.30 (25. Juli 1994), S. 5965. DOI: 10.1088/0953-8984/6/30/015. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/6/i=30/a=015>.
- [25] Chanchal K. Majumdar und Dipan K. Ghosh. „On Next-Nearest-Neighbor Interaction in Linear Chain. I“. In: *J. Math. Phys.* 10.8 (Aug. 1969), S. 1388–1398. DOI: 10.1063/1.1664978. URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jmp/10/8/10.1063/1.1664978>.
- [26] Frédéric Michaud, François Vernay, Salvatore R. Manmana und Frédéric Mila. „Antiferromagnetic Spin-*S* Chains with Exactly Dimerized Ground States“. In: *Phys. Rev. Lett.* 108.12 (20. März 2012), S. 127202. DOI: 10.1103/PhysRevLett.108.127202. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.108.127202>.
- [27] Yongmin Yu, Gerhard Müller und V. S. Viswanath. „Dimer and Néel order-parameter fluctuations in the spin-fluid phase of the $s=1/2$ spin chain with first- and second-neighbor couplings“. In: *Phys. Rev. B* 54.13 (1. Okt. 1996), S. 9242–9249.

- DOI: 10.1103/PhysRevB.54.9242. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.54.9242>.
- [28] Steven R. White und Ian Affleck. „Dimerization and incommensurate spiral spin correlations in the zigzag spin chain: Analogies to the Kondo lattice“. In: *Phys. Rev. B* 54.14 (1. Okt. 1996), S. 9862–9869. DOI: 10.1103/PhysRevB.54.9862. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.54.9862>.
- [29] Ravindra W. Chhajlany, Piotr Tomczak, Antoni Wójcik und Johannes Richter. „Entanglement in the Majumdar-Ghosh model“. In: *Phys. Rev. A* 75.3 (27. März 2007), S. 032340. DOI: 10.1103/PhysRevA.75.032340. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.75.032340>.
- [30] P. Nikolic und T. Senthil. „Physics of low-energy singlet states of the Kagome lattice quantum Heisenberg antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 68.21 (12. Dez. 2003), S. 214415. DOI: 10.1103/PhysRevB.68.214415. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.68.214415>.
- [31] Rajiv R. P. Singh und David A. Huse. „Ground state of the spin-1/2 kagome-lattice Heisenberg antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 76.18 (28. Nov. 2007), S. 180407. DOI: 10.1103/PhysRevB.76.180407. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.76.180407>.
- [32] Yu-Cheng Lin, Ying Tang, Jie Lou und Anders W. Sandvik. „Correlated valence-bond states“. In: *Phys. Rev. B* 86.14 (10. Okt. 2012), S. 144405. DOI: 10.1103/PhysRevB.86.144405. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.144405>.
- [33] A. B. Harris, C. Kallin und A. J. Berlinsky. „Possible Néel orderings of the Kagomé antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 45.6 (1. Feb. 1992), S. 2899–2919. DOI: 10.1103/PhysRevB.45.2899. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.2899>.
- [34] J. B. Marston und C. Zeng. „Spin-Peierls and spin-liquid phases of Kagomé quantum antiferromagnets“. In: *J. Appl. Phys.* 69.8 (15. Apr. 1991), S. 5962–5964. DOI: 10.1063/1.347830. URL: <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jap/69/8/10.1063/1.347830>.
- [35] P. Lecheminant, B. Bernu, C. Lhuillier, L. Pierre und P. Sindzingre. „Order versus disorder in the quantum Heisenberg antiferromagnet on the *kagomé* lattice using exact spectra analysis“. In: *Phys. Rev. B* 56.5 (1. Aug. 1997), S. 2521–2529. DOI: 10.1103/PhysRevB.56.2521. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.56.2521>.

- [36] C. Waldtmann, H.-U. Everts, B. Bernu, C. Lhuillier, P. Sindzingre, P. Lecheminant und L. Pierre. „First excitations of the spin $1/2$ Heisenberg antiferromagnet on the kagomé lattice“. In: *Eur. Phys. J. B* 2.4 (29. Jan. 1998), S. 501–507. ISSN: 1434-6028. DOI: 10.1007/s100510050274.
- [37] F. Mila. „Low-Energy Sector of the $S = 1/2$ Kagome Antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. Lett.* 81.11 (14. Sep. 1998), S. 2356–2359. DOI: 10.1103/PhysRevLett.81.2356. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.81.2356>.
- [38] M. B. Hastings. „Dirac structure, RVB, and Goldstone modes in the *kagomé* antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 63.1 (11. Dez. 2000), S. 014413. DOI: 10.1103/PhysRevB.63.014413. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.63.014413>.
- [39] A.V. Syromyatnikov und S.V. Maleyev. „Double-peak specific heat feature in frustrated antiferromagnetic clusters“. In: *JETP Letters* 79.5 (2. Feb. 2004), S. 221–225. DOI: 10.1134/1.1753420.
- [40] Michael Hermele, Ying Ran, Patrick A. Lee und Xiao-Gang Wen. „Properties of an algebraic spin liquid on the kagome lattice“. In: *Phys. Rev. B* 77.22 (9. Juni 2008), S. 224413. DOI: 10.1103/PhysRevB.77.224413. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.77.224413>.
- [41] Didier Poilblanc, Matthieu Mambrini und David Schwandt. „Effective quantum dimer model for the kagome Heisenberg antiferromagnet: Nearby quantum critical point and hidden degeneracy“. In: *Phys. Rev. B* 81.18 (13. Mai 2010), S. 180402. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.180402. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.81.180402>.
- [42] Simeng Yan, David A. Huse und Steven R. White. „Spin-Liquid Ground State of the $S = 1/2$ Kagome Heisenberg Antiferromagnet“. In: *Science* 332.6034 (28. Apr. 2011), S. 1173–1176. DOI: 10.1126/science.1201080. URL: <http://www.sciencemag.org/content/332/6034/1173.abstract>.
- [43] Andreas M. Läuchli, Julien Sudan und Erik S. Sørensen. „Ground-state energy and spin gap of spin- $\frac{1}{2}$ Kagomé-Heisenberg antiferromagnetic clusters: Large-scale exact diagonalization results“. In: *Phys. Rev. B* 83.21 (3. Juni 2011), S. 212401. DOI: 10.1103/PhysRevB.83.212401. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.83.212401>.
- [44] Stefan Depenbrock, Ian P. McCulloch und Ulrich Schollwöck. „Nature of the Spin-Liquid Ground State of the $S = 1/2$ Heisenberg Model on the Kagome Lattice“. In: *Phys. Rev. Lett.* 109.6 (7. Aug. 2012), S. 067201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.109.067201. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.109.067201>.

- [45] Yin-Chen He und Yan Chen. „Distinct Spin Liquids and Their Transitions in Spin-1/2 XXZ Kagome Antiferromagnets“. In: *Phys. Rev. Lett.* 114.3 (22. Jan. 2015), S. 037201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.037201. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.114.037201>.
- [46] Hitesh J. Changlani und Andreas M. Läuchli. „Trimerized ground state of the spin-1 Heisenberg antiferromagnet on the kagome lattice“. In: *Phys. Rev. B* 91.19 (30. März 2015), S. 100407. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.100407. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.100407>.
- [47] Tao Liu, Wei Li, Andreas Weichselbaum, Jan von Delft und Gang Su. „Simplex valence-bond crystal in the spin-1 kagome Heisenberg antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 91.6 (23. Feb. 2015), S. 060403. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.060403. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.060403>.
- [48] Thibaut Picot und Didier Poilblanc. „Nematic and supernematic phases in kagome quantum antiferromagnets under the influence of a magnetic field“. In: *Phys. Rev. B* 91.6 (17. Feb. 2015), S. 064415. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.064415. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.064415>.
- [49] Satoshi Nishimoto und Masaaki Nakamura. „Non-symmetry-breaking ground state of the $S = 1$ Heisenberg model on the kagome lattice“. In: *Phys. Rev. B* 92.14 (21. Okt. 2015), S. 140412. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.140412. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.92.140412>.
- [50] Wei Li, Andreas Weichselbaum, Jan von Delft und Hong-Hao Tu. „Hexagon-singlet solid ansatz for the spin-1 kagome antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 91.22 (11. Juni 2015), S. 224414. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.224414. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.224414>.
- [51] D. J. J. Farnell, O. Götze, J. Richter, R. F. Bishop und P. H. Y. Li. „Quantum $s = \frac{1}{2}$ antiferromagnets on Archimedean lattices: The route from semiclassical magnetic order to nonmagnetic quantum states“. In: *Phys. Rev. B* 89.18 (13. Mai 2014), S. 184407. DOI: 10.1103/PhysRevB.89.184407. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.89.184407>.
- [52] O. Götze, S. E. Krüger, F. Fleck, J. Schulenburg und J. Richter. „Ground-state phase diagram of the spin- $\frac{1}{2}$ square-lattice J_1 - J_2 model with plaquette structure“. In: *Phys. Rev. B* 85.22 (21. Juni 2012), S. 224424. DOI: 10.1103/PhysRevB.85.224424. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.85.224424>.
- [53] Johannes Richter, Oliver Götze, Ronald Zinke, Damian J. J. Farnell und Hidekazu Tanaka. „The Magnetization Process of the Spin-One Triangular-Lattice Heisenberg Antiferromagnet“. In: *J. Phys. Soc. Jpn.* 82.1 (19. Dez. 2012), S. 015002. DOI: 10.7566/JPSJ.82.015002. URL: <http://dx.doi.org/10.7566/JPSJ.82.015002>.

- [54] O. Götze, J. Richter, R. Zinke und D.J.J. Farnell. „Ground-state properties of the triangular-lattice Heisenberg antiferromagnet with arbitrary spin quantum number s “. In: *J. Magn. Magn. Mater.* 397 (28. Aug. 2015), S. 333–341. DOI: 10.1016/j.jmmm.2015.08.113. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0304885315305254>.
- [55] D. J. J. Farnell, O. Götze und J. Richter. „Ground-state ordering of the J_1 - J_2 model on the simple cubic and body-centered cubic lattices“. In: *Phys. Rev. B* 93.23 (14. Juni 2016), S. 235123. DOI: 10.1103/PhysRevB.93.235123. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.93.235123>.
- [56] J. T. Chalker, P. C. W. Holdsworth und E. F. Shender. „Hidden order in a frustrated system: Properties of the Heisenberg Kagomé antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. Lett.* 68.6 (10. Feb. 1992), S. 855–858. DOI: 10.1103/PhysRevLett.68.855. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.855>.
- [57] I. Ritchey, P. Chandra und P. Coleman. „Spin folding in the two-dimensional Heisenberg *kagomé* antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 47.22 (1. Juni 1993), S. 15342–15345. DOI: 10.1103/PhysRevB.47.15342. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.47.15342>.
- [58] David A. Huse und Andrew D. Rutenberg. „Classical antiferromagnets on the Kagomé lattice“. In: *Phys. Rev. B* 45.13 (1. Apr. 1992), S. 7536–7539. DOI: 10.1103/PhysRevB.45.7536. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.7536>.
- [59] Christopher L. Henley. „Long-range order in the classical kagome antiferromagnet: Effective Hamiltonian approach“. In: *Phys. Rev. B* 80.18 (2. Nov. 2009), S. 180401. DOI: 10.1103/PhysRevB.80.180401. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.80.180401>.
- [60] Subir Sachdev. „Kagomé - and triangular-lattice Heisenberg antiferromagnets: Ordering from quantum fluctuations and quantum-disordered ground states with unconfined bosonic spinons“. In: *Phys. Rev. B* 45.21 (1. Juni 1992), S. 12377–12396. DOI: 10.1103/PhysRevB.45.12377. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.45.12377>.
- [61] Andrey Chubukov. „Order from disorder in a kagomé antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. Lett.* 69.5 (3. Aug. 1992), S. 832–835. DOI: 10.1103/PhysRevLett.69.832. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.69.832>.
- [62] C.L. Henley und E.P. Chan. „Ground state selection in a Kagomé antiferromagnet“. In: *J. Magn. Magn. Mater.* 140-144 (1995), S. 1693–1694. DOI: 10.1016/0304-8853(94)00684-9. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0304885394006849>.

- [63] D. J. J. Farnell, R. Zinke, J. Schulenburg und J. Richter. „High-order coupled cluster method study of frustrated and unfrustrated quantum magnets in external magnetic fields“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 21.40 (8. Sep. 2009), S. 406002. DOI: 10.1088/0953-8984/21/40/406002. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/21/i=40/a=406002>.
- [64] Rajiv R. P. Singh und David A. Huse. „Three-sublattice order in triangular- and Kagomé-lattice spin-half antiferromagnets“. In: *Phys. Rev. Lett.* 68.11 (16. März 1992), S. 1766–1769. DOI: 10.1103/PhysRevLett.68.1766. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.1766>.
- [65] R. F. Bishop, D. J. J. Farnell und Chen Zeng. „*Ab initio* simulation of the nodal surfaces of Heisenberg antiferromagnets“. In: *Phys. Rev. B* 59.2 (1. Jan. 1999), S. 1000–1007. DOI: 10.1103/PhysRevB.59.1000. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.59.1000>.
- [66] G. Evenbly und G. Vidal. „Frustrated Antiferromagnets with Entanglement Renormalization: Ground State of the Spin- $\frac{1}{2}$ Heisenberg Model on a Kagome Lattice“. In: *Phys. Rev. Lett.* 104.18 (7. Mai 2010), S. 187203. DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.187203. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.104.187203>.
- [67] O. Götze, D. J. J. Farnell, R. F. Bishop, P. H. Y. Li und J. Richter. „Heisenberg antiferromagnet on the kagome lattice with arbitrary spin: A higher-order coupled cluster treatment“. In: *Phys. Rev. B* 84.22 (27. Dez. 2011), S. 224428. DOI: 10.1103/PhysRevB.84.224428. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.84.224428>.
- [68] J. Oitmaa und R. R. P. Singh. „Competing orders in spin-1 and spin $-\frac{3}{2}$ XXZ kagome antiferromagnets: A series expansion study“. In: *Phys. Rev. B* 93.1 (16. Jan. 2016), S. 014424. DOI: 10.1103/PhysRevB.93.014424. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.93.014424>.
- [69] T. Liu, W. Li und G. Su. „Spin ordered ground state and thermodynamic behaviors of the spin-3/2 kagome Heisenberg antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. E* 94.3 (13. Sep. 2016), S. 032114. DOI: 10.1103/PhysRevE.94.032114. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevE.94.032114>.
- [70] A. L. Chernyshev und M. E. Zhitomirsky. „Quantum Selection of Order in an XXZ Antiferromagnet on a Kagome Lattice“. In: *Phys. Rev. Lett.* 113.23 (3. Dez. 2014), S. 237202. DOI: 10.1103/PhysRevLett.113.237202. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.113.237202>.

- [71] O. Götze und J. Richter. „Ground-state phase diagram of the XXZ spin- s kagome antiferromagnet: A coupled-cluster study“. In: *Phys. Rev. B* 91.19 (4. März 2015), S. 104402. DOI: 10.1103/PhysRevB.91.104402. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.91.104402>.
- [72] W. Zhu, S. S. Gong und D. N. Sheng. „Chiral and critical spin liquids in a spin- $\frac{1}{2}$ kagome antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 92.1 (28. Juli 2015), S. 014424. DOI: 10.1103/PhysRevB.92.014424. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.92.014424>.
- [73] D. Schmalfuß, J. Richter und D. Ihle. „Absence of long-range order in a spin-half Heisenberg antiferromagnet on the stacked kagomé lattice“. In: *Phys. Rev. B* 70.18 (10. Nov. 2004), S. 184412. DOI: 10.1103/PhysRevB.70.184412. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.70.184412>.
- [74] Oliver Götze und Johannes Richter. „The route to magnetic order in the spin-1/2 kagome Heisenberg antiferromagnet: The role of interlayer coupling“. In: *Europhys. Lett.* 114.6 (25. Juli 2016), S. 67004. DOI: 10.1209/0295-5075/114/67004. URL: <http://stacks.iop.org/0295-5075/114/i=6/a=67004>.
- [75] Brijesh Kumar. „Quantum spin models with exact dimer ground states“. In: *Phys. Rev. B* 66.2 (28. Juni 2002), S. 024406. DOI: 10.1103/PhysRevB.66.024406. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.66.024406>.
- [76] Heinz-Jürgen Schmidt. „Spin systems with dimerized ground states“. In: *J. Phys. A: Math. Gen.* 38.10 (23. Feb. 2005), S. 2123. DOI: 10.1088/0305-4470/38/10/005. URL: <http://stacks.iop.org/0305-4470/38/i=10/a=005>.
- [77] F. D. M. Haldane. „Spontaneous dimerization in the $S = \frac{1}{2}$ Heisenberg antiferromagnetic chain with competing interactions“. In: *Phys. Rev. B* 25.7 (1. Apr. 1982), S. 4925–4928. DOI: 10.1103/PhysRevB.25.4925. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.25.4925>. Erratum: Haldane [127].
- [78] Kiyomi Okamoto und Kiyohide Nomura. „Fluid-dimer critical point in $S = 1/2$ antiferromagnetic Heisenberg chain with next nearest neighbor interactions“. In: *Phys. Lett. A* 169.6 (1992), S. 433–437. ISSN: 0375-9601. DOI: 10.1016/0375-9601(92)90823-5. URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0375960192908235>.
- [79] K. Nomura und K. Okamoto. „Critical properties of $S=1/2$ antiferromagnetic XXZ chain with next-nearest-neighbour interactions“. In: *J. Phys. A: Math. Gen.* 27.17 (1994), S. 5773. DOI: 10.1088/0305-4470/27/17/012. URL: <http://stacks.iop.org/0305-4470/27/i=17/a=012>.

- [80] D. J. J. Farnell und J. B. Parkinson. „A coupled-cluster treatment of spin- 1/2 systems with nearest- and next-nearest-neighbour interactions“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 6.28 (1994), S. 5521. DOI: 10.1088/0953-8984/6/28/024. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/6/i=28/a=024>.
- [81] R. Chitra, Swapan Pati, H. R. Krishnamurthy, Diptiman Sen und S. Ramasesha. „Density-matrix renormalization-group studies of the spin-1/2 Heisenberg system with dimerization and frustration“. In: *Phys. Rev. B* 52.9 (1. Sep. 1995), S. 6581–6587. DOI: 10.1103/PhysRevB.52.6581. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.52.6581>.
- [82] R. Bursill, G. A. Gehring, D. J. J. Farnell, J. B. Parkinson, Tao Xiang und Chen Zeng. „Numerical and approximate analytical results for the frustrated spin- 1/2 quantum spin chain“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 7.45 (1995), S. 8605. DOI: 10.1088/0953-8984/7/45/016. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/7/i=45/a=016>.
- [83] Sebastian Eggert. „Numerical evidence for multiplicative logarithmic corrections from marginal operators“. In: *Phys. Rev. B* 54.14 (1. Okt. 1996), R9612–R9615. DOI: 10.1103/PhysRevB.54.R9612. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.54.R9612>.
- [84] A. A. Aligia, C. D. Batista und F. H. L. Eßler. „Numerical method for detecting incommensurate correlations in the Heisenberg zigzag ladder“. In: *Phys. Rev. B* 62.5 (1. Aug. 2000), S. 3259–3263. DOI: 10.1103/PhysRevB.62.3259. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.62.3259>.
- [85] J. Richter, R. Darradi, R. Zinke und R. F. Bishop. „Frustrated quantum anti-ferromagnets: application of high-order coupled cluster method“. In: *Int. J. Mod. Phys. B* 21.13n14 (2007), S. 2273–2288. DOI: 10.1142/S0217979207043658. URL: <http://www.worldscientific.com/doi/abs/10.1142/S0217979207043658>.
- [86] D. J. J. Farnell, J. Richter, R. Zinke und R. F. Bishop. „High-Order Coupled Cluster Method (CCM) Calculations for Quantum Magnets with Valence-Bond Ground States“. In: *J. Stat. Phys.* 135.1 (14. März 2009), S. 175–198. DOI: 10.1007/s10955-009-9703-7. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s10955-009-9703-7>.
- [87] Ronald Zinke, Stefan-Ludwig Drechsler und Johannes Richter. „Influence of interchain coupling on spiral ground-state correlations in frustrated spin- $\frac{1}{2}$ J_1 - J_2 Heisenberg chains“. In: *Phys. Rev. B* 79.9 (25. März 2009), S. 094425. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.094425. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.79.094425>.
- [88] H. Bethe. „Zur Theorie der Metalle“. In: *Zeitschrift für Physik* 71.3 (1931), S. 205–226. ISSN: 0044-3328. DOI: 10.1007/BF01341708. URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF01341708>.

- [89] C. K. Majumdar. „Antiferromagnetic model with known ground state“. In: *J. Phys. C: Solid State Phys.* 3.4 (1970), S. 911. DOI: 10.1088/0022-3719/3/4/019. URL: <http://stacks.iop.org/0022-3719/3/i=4/a=019>.
- [90] Joerg Schulenburg. *spinpack: Ein Programm zur Berechnung der niedrigsten Eigenwerte, Eigenzustände und Erwartungswerte von Quantenspinsystemen*. 2016. URL: <http://www-e.uni-magdeburg.de/jschulen/spin/>.
- [91] Rajiv R. P. Singh, Martin P. Gelfand und David A. Huse. „Ground States of Low-Dimensional Quantum Antiferromagnets“. In: *Phys. Rev. Lett.* 61.21 (21. Nov. 1988), S. 2484–2487. DOI: 10.1103/PhysRevLett.61.2484. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.61.2484>.
- [92] Sandro Wenzel, Leszek Bogacz und Wolffhard Janke. „Evidence for an Unconventional Universality Class from a Two-Dimensional Dimerized Quantum Heisenberg Model“. In: *Phys. Rev. Lett.* 101.12 (19. Sep. 2008), S. 127202. DOI: 10.1103/PhysRevLett.101.127202. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.101.127202>.
- [93] Sandro Wenzel und Wolffhard Janke. „Comprehensive quantum Monte Carlo study of the quantum critical points in planar dimerized/quadrumerized Heisenberg models“. In: *Phys. Rev. B* 79.1 (8. Jan. 2009), S. 014410. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.014410. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.79.014410>.
- [94] N. B. Ivanov, S. E. Krüger und J. Richter. „Square-lattice Heisenberg antiferromagnet with two kinds of nearest-neighbor regular bonds“. In: *Phys. Rev. B* 53.5 (1. Feb. 1996), S. 2633–2640. DOI: 10.1103/PhysRevB.53.2633. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.53.2633>.
- [95] Sven E. Krüger, Johannes Richter, Jörg Schulenburg, Damian J. J. Farnell und Raymond F. Bishop. „Quantum phase transitions of a square-lattice Heisenberg antiferromagnet with two kinds of nearest-neighbor bonds: A high-order coupled-cluster treatment“. In: *Phys. Rev. B* 61.21 (1. Juni 2000), S. 14607–14615. DOI: 10.1103/PhysRevB.61.14607. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.61.14607>.
- [96] Sven E. Krüger und Johannes Richter. „Influence of quantum fluctuations on zero-temperature phase transitions between collinear and noncollinear states in frustrated spin systems“. In: *Phys. Rev. B* 64.2 (22. Juni 2001), S. 024433. DOI: 10.1103/PhysRevB.64.024433. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.64.024433>.

- [97] L. Fritz, R. L. Doretto, S. Wessel, S. Wenzel, S. Burdin und M. Vojta. „Cubic interactions and quantum criticality in dimerized antiferromagnets“. In: *Phys. Rev. B* 83.17 (6. Mai 2011), S. 174416. DOI: 10.1103/PhysRevB.83.174416. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.174416>.
- [98] R. F. Bishop, P. H. Y. Li, R. Darradi und J. Richter. „The quantum J_1 - J'_1 - J_2 spin-1/2 Heisenberg model: influence of the interchain coupling on the ground-state magnetic ordering in two dimensions“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 20.25 (28. Mai 2008), S. 255251. DOI: 10.1088/0953-8984/20/25/255251. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/20/i=25/a=255251>.
- [99] P. Chandra und B. Douçot. „Possible spin-liquid state at large S for the frustrated square Heisenberg lattice“. In: *Phys. Rev. B* 38.13 (1. Nov. 1988), S. 9335–9338. DOI: 10.1103/PhysRevB.38.9335. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.38.9335>.
- [100] Elbio Dagotto und Adriana Moreo. „Phase diagram of the frustrated spin-1/2 Heisenberg antiferromagnet in 2 dimensions“. In: *Phys. Rev. Lett.* 63.19 (1989), S. 2148–2151. DOI: 10.1103/PhysRevLett.63.2148. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.63.2148>.
- [101] Johannes Richter. „Zero-temperature magnetic ordering in the inhomogeneously frustrated quantum Heisenberg antiferromagnet on a square lattice“. In: *Phys. Rev. B* 47.10 (1992), S. 5794–5804. DOI: 10.1103/PhysRevB.47.5794. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.47.5794>.
- [102] J. Richter, N. B. Ivanov und K. Retzlaff. „On the Violation of Marshall-Peierls Sign Rule in the Frustrated J_1 - J_2 Heisenberg Antiferromagnet“. In: *Europhys. Lett.* 25.7 (1. März 1994), S. 545. DOI: 10.1209/0295-5075/25/7/012. URL: <http://stacks.iop.org/0295-5075/25/i=7/a=012>.
- [103] M. E. Zhitomirsky und Kazuo Ueda. „Valence-bond crystal phase of a frustrated spin-1/2 square-lattice antiferromagnet“. In: *Phys. Rev. B* 54.13 (1. Okt. 1996), S. 9007–9010. DOI: 10.1103/PhysRevB.54.9007. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.54.9007>.
- [104] A. E. Trumper, L. O. Manuel, C. J. Gazza und H. A. Ceccatto. „Schwinger-Boson Approach to Quantum Spin Systems: Gaussian Fluctuations in the “Natural” Gauge“. In: *Phys. Rev. Lett.* 78.11 (17. März 1997), S. 2216–2219. DOI: 10.1103/PhysRevLett.78.2216. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.78.2216>.

- [105] Raymond F. Bishop, Damian J. J. Farnell und John B. Parkinson. „Phase transitions in the spin-half J_1 - J_2 model“. In: *Phys. Rev. B* 58.10 (1. Sep. 1998), S. 6394–6402. DOI: 10.1103/PhysRevB.58.6394. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.58.6394>.
- [106] Rajiv R. P. Singh, Zheng Weihong, C. J. Hamer und J. Oitmaa. „Dimer order with striped correlations in the J_1 - J_2 Heisenberg model“. In: *Phys. Rev. B* 60.10 (1. Sep. 1999), S. 7278–7283. DOI: 10.1103/PhysRevB.60.7278. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.60.7278>.
- [107] Luca Capriotti, Federico Becca, Alberto Parola und Sandro Sorella. „Resonating Valence Bond Wave Functions for Strongly Frustrated Spin Systems“. In: *Phys. Rev. Lett.* 87.9 (27. Aug. 2001), S. 097201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.87.097201. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.87.097201>.
- [108] O. P. Sushkov, J. Oitmaa und Zheng Weihong. „Quantum phase transitions in the two-dimensional J_1 - J_2 model“. In: *Phys. Rev. B* 63.10 (20. Feb. 2001), S. 104420. DOI: 10.1103/PhysRevB.63.104420. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.63.104420>.
- [109] J. Sirker, Zheng Weihong, O. P. Sushkov und J. Oitmaa. „ J_1 - J_2 model: First-order phase transition versus deconfinement of spinons“. In: *Phys. Rev. B* 73.18 (17. Mai 2006), S. 184420. DOI: 10.1103/PhysRevB.73.184420. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.73.184420>.
- [110] D. Schmalfuß, R. Darradi, J. Richter, J. Schulenburg und D. Ihle. „Quantum J_1 - J_2 Antiferromagnet on a Stacked Square Lattice: Influence of the Interlayer Coupling on the Ground-State Magnetic Ordering“. In: *Phys. Rev. Lett.* 97.15 (10. Okt. 2006), S. 157201. DOI: 10.1103/PhysRevLett.97.157201. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.157201>.
- [111] J. Roberto Viana und J. Ricardo de Sousa. „Anisotropy effects in frustrated Heisenberg antiferromagnets on a square lattice“. In: *Phys. Rev. B* 75.5 (6. Feb. 2007), S. 052403. DOI: 10.1103/PhysRevB.75.052403. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.75.052403>.
- [112] R. F. Bishop, P. H. Y. Li, R. Darradi, J. Schulenburg und J. Richter. „Effect of anisotropy on the ground-state magnetic ordering of the spin-half quantum J_1^{XXZ} - J_2^{XXZ} model on the square lattice“. In: *Phys. Rev. B* 78.5 (11. Aug. 2008), S. 054412. DOI: 10.1103/PhysRevB.78.054412. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.054412>.

- [113] R. Darradi, O. Derzhko, R. Zinke, J. Schulenburg, S. E. Krüger und J. Richter. „Ground state phases of the spin-1/2 $J_1 - J_2$ Heisenberg antiferromagnet on the square lattice: A high-order coupled cluster treatment“. In: *Phys. Rev. B* 78.21 (11. Dez. 2008), S. 214415. DOI: 10.1103/PhysRevB.78.214415. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.78.214415>.
- [114] L. Isaev, G. Ortiz und J. Dukelsky. „Hierarchical mean-field approach to the $J_1 - J_2$ Heisenberg model on a square lattice“. In: *Phys. Rev. B* 79.2 (9. Jan. 2009), S. 024409. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.024409. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.024409>.
- [115] T. Pardini und R. R. P. Singh. „Spin correlations near the edge as probe of dimer order in square-lattice Heisenberg models“. In: *Phys. Rev. B* 79.9 (12. März 2009), S. 094413. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.094413. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.094413>.
- [116] V. Murg, F. Verstraete und J. I. Cirac. „Exploring frustrated spin systems using projected entangled pair states“. In: *Phys. Rev. B* 79.19 (20. Mai 2009), S. 195119. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.195119. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.195119>.
- [117] J. Richter und J. Schulenburg. „The spin-1/2 $J_1 - J_2$ Heisenberg antiferromagnet on the square lattice: Exact diagonalization for $N=40$ spins“. In: *Eur. Phys. J. B* 73.1 (Jan. 2010), S. 117–124. ISSN: 1434-6036. DOI: 10.1140/epjb/e2009-00400-4. URL: <http://dx.doi.org/10.1140/epjb/e2009-00400-4>.
- [118] Johannes Reuther und Peter Wölfle. „ $J_1 - J_2$ frustrated two-dimensional Heisenberg model: Random phase approximation and functional renormalization group“. In: *Phys. Rev. B* 81.14 (8. Apr. 2010), S. 144410. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.144410. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.81.144410>.
- [119] Hong-Chen Jiang, Hong Yao und Leon Balents. „Spin liquid ground state of the spin- $\frac{1}{2}$ square $J_1 - J_2$ Heisenberg model“. In: *Phys. Rev. B* 86.2 (18. Juli 2012), S. 024424. DOI: 10.1103/PhysRevB.86.024424. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.024424>.
- [120] Fabio Mezzacapo. „Ground-state phase diagram of the quantum $J_1 - J_2$ model on the square lattice“. In: *Phys. Rev. B* 86.4 (16. Juli 2012), S. 045115. DOI: 10.1103/PhysRevB.86.045115. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.86.045115>.
- [121] Ling Wang, Zheng-Cheng Gu, Frank Verstraete und Xiao-Gang Wen. „Tensor-product state approach to spin- $\frac{1}{2}$ square $J_1 - J_2$ antiferromagnetic Heisenberg model: Evidence for deconfined quantum criticality“. In: *Phys. Rev. B* 94.7 (19. Aug. 2016),

- S. 075143. DOI: 10.1103/PhysRevB.94.075143. URL: <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.94.075143>.
- [122] Daniel S. Rokhsar. „Quadratic quantum antiferromagnets in the fermionic large- N limit“. In: *Phys. Rev. B* 42.4 (1. Aug. 1990), S. 2526–2531. DOI: 10.1103/PhysRevB.42.2526. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.42.2526>.
- [123] J. Richter, J. Schulenburg, A. Honecker und D. Schmalfuß. „Absence of magnetic order for the spin-half Heisenberg antiferromagnet on the star lattice“. In: *Phys. Rev. B* 70.17 (29. Nov. 2004), S. 174454. DOI: 10.1103/PhysRevB.70.174454. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.70.174454>.
- [124] Grégoire Misguich und Philippe Sindzingre. „Detecting spontaneous symmetry breaking in finite-size spectra of frustrated quantum antiferromagnets“. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 19.14 (23. März 2007), S. 145202. DOI: 10.1088/0953-8984/19/14/145202. URL: <http://stacks.iop.org/0953-8984/19/i=14/a=145202>.
- [125] Ting-Pong Choy und Yong Baek Kim. „Classification of quantum phases for the star-lattice antiferromagnet via a projective symmetry group analysis“. In: *Phys. Rev. B* 80.6 (13. Aug. 2009), S. 064404. DOI: 10.1103/PhysRevB.80.064404. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.80.064404>.
- [126] Bohm-Jung Yang, Arun Paramekanti und Yong Baek Kim. „Competing quantum paramagnetic ground states of the Heisenberg antiferromagnet on the star lattice“. In: *Phys. Rev. B* 81.13 (15. Apr. 2010), S. 134418. DOI: 10.1103/PhysRevB.81.134418. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.81.134418>.
- [127] F. D. M. Haldane. „Erratum: Spontaneous dimerization in the $S = \frac{1}{2}$ Heisenberg antiferromagnetic chain with competing interactions“. In: *Phys. Rev. B* 26.9 (1. Nov. 1982), S. 5257–5257. DOI: 10.1103/PhysRevB.26.5257. URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevB.26.5257>.

Dipl.-Phys. Oliver Götze
Eisnerstrasse 12
39110 Magdeburg
E-Mail: olivermd@gmx.de

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die von mir eingereichte Dissertation zu dem Thema

Untersuchung von frustrierten Quantenspinsystemen
Anwendung der Coupled-Cluster-Methode

selbstständig verfasst, nicht schon als Dissertation verwendet habe und die benutzten Hilfsmittel und Quellen vollständig angegeben wurden.

Weiterhin erkläre ich, dass ich weder diese noch eine andere Arbeit zur Erlangung des akademischen Grades doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.) an anderen Einrichtungen eingereicht habe.

Magdeburg, den 15. Dezember 2016

(Dipl.-Phys. Oliver Götze)