

Stark frustrierte Quantenmagnete: Grundzustand und Thermodynamik

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 Dipl.-Phys. Patrick Müller

geb. am 29.02.1988 in Magdeburg

Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Johannes Richter

Prof. Dr. rer. nat. habil. Jürgen Schnack

eingereicht am: 07.05.2019

verteidigt am: 01.10.2019

NOMENKLATUR

AFM Antiferromagnet

CCM Coupled-Cluster-Methode

DA differentielle Approximanten

ED exakte Diagonalisierung

FM Ferromagnet

GFM Greensfunktionsmethode

GS Grundzustand

HTE Hochtemperaturentwicklung

SRO kurzreichweitige Ordnung

LRO langreichweitige Ordnung

ORB offene Randbedingungen

PRB periodische Randbedingungen

RGM rotationsinvariante Greenfunktionsmethode

PT Störungstheorie

\mathcal{N} Zahl der Elementarzellen

N Zahl der Gitterpunkte innerhalb einer Elementarzelle

INHALTSVERZEICHNIS

1. Einführung	7
1.1. Gliederung der Arbeit	8
2. Hubbard-Modell	11
2.1. Schwach dispersive Bänder	12
2.2. Exakte Diagonalisierung (ED) und Störungstheorie (PT)	13
2.3. Konkrete Modelle	14
2.3.1. Frustrierte Diamant-Kette	14
2.3.2. Frustrierte Leiter	19
2.3.3. Frustriertes (zweidimensionales) Bilayer-Gitter	28
3. Heisenberg-Modell	33
3.1. Strukturfaktor	36
3.2. Rotationsinvariante Greenfunktionsmethode (RGM)	40
3.2.1. Gleichungssysteme und physikalische Größen	51
3.2.2. Eigenschaften im Hochtemperatur-Limes	56
3.2.3. Eigenschaften im Tieftemperatur-Limes (FM)	56
3.3. Hochtemperaturentwicklung (HTE)	60
3.3.1. Strukturfaktor aus der HTE	61
3.4. Frustrierte Spinketten	63
3.4.1. Die isolierte frustrierte Kette	63
3.4.2. Gekoppelte quasieindimensionale frustrierte Ketten	67
3.5. Kagome-Gitter	85
3.5.1. J_1 -Modell: Antiferromagnet	85
3.5.2. Erweiterung auf das J_1 - J_2 - J_d -Modell	106
3.6. Kubisch-Raumzentriertes-Gitter	114
3.6.1. J_1 - J_2 -Modell	114
3.7. Pyrochlor-Gitter	128
3.7.1. J_1 -Modell: Ferromagnet	129

3.7.2. J_1 -Modell: Antiferromagnet	145
A. Resultate der PT	161
A.1. Grundzustände von \hat{H}_0	163
A.2. Diamant-Kette	166
A.2.1. $n = 2$ Elektronen auf der Diamant-Kette mit 2 Elektronenfallen .	166
A.2.2. $n = 3$ Elektronen auf der Diamant-Kette mit 3 Elektronenfallen .	167
A.3. Leiter	167
A.3.1. $n = 2$ Elektronen auf der Leiter mit 2 Elektronenfallen	167
A.3.2. $n = 3$ Elektronen auf der Leiter mit 3 Elektronenfallen	170
A.3.3. $n = 4$ Elektronen auf der Leiter mit 4 Elektronenfallen	171
A.4. Bilayer-Gitter	174
A.4.1. $n = 5$ Elektronen auf dem Bilayer-Gitter mit 5 Elektronenfallen	174
B. Random-Phase-Approximation	175
C. Strukturfaktor aus der HTE	177
D. Exakte Lösung der Vertexparameter im GS des FM auf dem Pyrochlor-Gitter	181

Kapitel
1

EINFÜHRUNG

Ein historisch weit zurückreichendes physikalisches Phänomen, das bereits in den Anfängen seiner Entdeckung Anwendung fand, ist der Magnetismus. Durch die Aufstellung der klassischen Maxwell-Gleichungen konnte das Wechselspiel zwischen Elektrizität und Magnetismus mathematisch kompakt vereinheitlicht werden. Dennoch ist diese klassische Beschreibung zur Erklärung des Zustandekommens magnetischer Eigenschaften von Festkörpern unzureichend. So zeigt beispielsweise das Bohr-van-Leeuwen-Theorem auf, dass die Existenz einer spontanen makroskopischen Magnetisierung einer theoretischen Erweiterung bedarf [1, 2]. Erst mit der relativistisch-quantenmechanischen Formulierung einer Bewegungsgleichung für das Elektron von Dirac wurde der Zugang zu einer wesentlichen intrinsischen Größe ermöglicht: den Spin [3]. Diese für alle Teilchen fundamentale nichtnegative Größe kann die Werte eines halb- oder ganzzahligen Vielfachen des Planckschen Wirkungsquantums \hbar annehmen. Zahlreiche experimentelle Befunde, wie etwa der Stern-Gerlach-Versuch oder die (Hyper-)Feinstruktur, konnten mit seiner Existenz erklärt werden und bildet die Grundlage für verschiedenste praktische Anwendungen, wie zum Beispiel der Magnetresonanztomographie. Ein theoretisches Modell, das den Spin und die kinetischen Freiheitsgrade der Elektronen berücksichtigt, ist das Hubbard-Modell [4]. Das Auffinden von ferromagnetischer Ordnung ist in diesem Modell ein immer noch kompliziertes aktuelles Forschungsgebiet. Es zeigt sich, dass beispielsweise energetisch günstige flache Bänder solch eine Ordnung stabilisieren können. Vernachlässigt man den elektrischen Ladungstransport und ordnet jedem Gitterpunkt genau ein Elektron zu, so stellt sich die Frage, wie sich hier eine magnetisch langreichweitige Ordnung (LRO) etablieren kann. Ein effektives quantenmechanisches Modell, das lediglich Wechselwirkungen lokalisierter Spins berücksichtigt, also ein Modell zur Beschreibung magnetischer Isolatoren, ist das sogenannte Heisenberg-Modell¹ [5]. Viele magnetische Festkörper können bereits mit diesem Modell bei tiefen Temperaturen gut beschrieben werden und legen dadurch nahe, dass der Spin zur Beschreibung experimenteller Befunde ein wichtiger

¹Historisch betrachtet wurde das Heisenberg-Modell Jahrzehnte vor dem Hubbard-Modell aufgestellt.

Bestandteil ist. Zumindest bei $T = 0$ ist, im Gegensatz zum Hubbard-Modell, der ferromagnetische Zustand eine auf der Hand liegende Lösung niedrigster Energie des Modells. Die Schwierigkeit überträgt sich hier auf die Beschreibung von antiferromagnetischen Konfigurationen, die im Allgemeinen Quantenfluktuationen ausgesetzt sind. Da der Spin in diesem Modell nicht nur $\hbar/2$ betragen muss, kann der Einfluss von Quantenfluktuationen im sogenannten klassischen Limes untersucht werden. Verschiedene Materialien, die mit dem Heisenberg-Modell gut beschrieben werden können, weisen bis hinunter zu tiefsten Temperaturen keine magnetische LRO auf. Magnetische Unordnung bei $T = 0$ ist in klassischen Spinsystemen typischerweise mit einer Vielzahl entarteter Grundzustände verknüpft. Dies findet man in Modellen, bei denen es unmöglich ist, alle Wechselwirkungen zwischen den Spins paarweise energetisch zu optimieren. Man spricht dann von Frustration. Das entsprechende Quantensystem zeigt dann hier häufig besonders interessante und ungewöhnliche Eigenschaften sowohl im Grundzustand aber auch bei tiefen Temperaturen. Typischerweise finden sich bei frustrierten Spinsystemen mehrere energetisch gleichwertige Grundzustände. Frustration wird neben dem spannenden theoretischen Aspekt im Zusammenhang mit vielen für die technische Anwendung interessanten Phänomenen, wie etwa dem magnetokalorischen Effekt oder der Hochtemperatursupraleitung, gesehen. Man unterscheidet zwischen der durch das Gitter bedingten sogenannten geometrischen Frustration und der durch konkurrierende Wechselwirkungen verursachten Bindungs-Frustration. Beide können zu ungewöhnlichen Zuständen der Materie führen, die gerade hinsichtlich der aktuell diskutierten Spinflüssigkeiten, die sich in zwei Kategorien unterteilen lassen und von denen eine verknüpft ist mit der Ausprägung einer nichtlokalen topologischen Ordnung, stark im Fokus der aktuellen Forschung steht. Das Verständnis stark verschränkter Zustände ist insbesondere auf dem Gebiet der Quanteninformationsverarbeitung von zentraler Bedeutung. Der Umfang der Ergebnisse, die durch diese, vereinfachten aber dennoch theoretisch anspruchsvollen Modelle hervorgebracht werden, zeigt auf, dass es sich nicht nur um ein modernes Gebiet der Forschung handelt, sondern wahrscheinlich auch ein für die Zukunft relevanter Wissenschaftszweig ist.

1.1 Gliederung der Arbeit

Die Phänomene der Frustration stehen im Fokus dieser Arbeit. In Kapitel 2 wird zunächst das Hubbard-Modell vorgestellt und ein neuartiger Mechanismus dispersions-getriebener Ferromagnete untersucht. Dabei werden zwei Methoden (die Störungstheorie (PT) und die exakte Diagonalisierung (ED)) verwendet, die zu Beginn kurz erläutert werden. Einerseits werden bereits bekannte Resultate der Diamant-Kette verifiziert und um die Ergebnisse höherer Ordnungen und längerer Ketten erweitert. Andererseits werden neue Gittertypen unterschiedlicher Ausdehnung untersucht und innerhalb der PT kompakte analytische Formeln gefunden, die für große Parameterbereiche des Modells sehr gut mit den Daten der ED übereinstimmen. Dabei zeigt sich zum einen der universelle Mechanismus

des ferromagnetischen Quanten-Phasenübergangs. Zum anderen wird gezeigt, dass der Übergangspunkt für ähnliche, aber sich in der Dimensionalität unterscheidende Gitter in niedrigster Ordnung PT dieselben sind.

Anschließend wendet sich die Arbeit ab Kapitel 3 dem Heisenberg-Modell zu. Für die Thermodynamik gibt es nur wenige Methoden, die bei Modellen mit Frustration anwendbar sind. Zur Untersuchung des Heisenberg-Modells werden zwei verschiedene Methoden, die rotationsinvariante Greenfunktionsmethode (RGM) und die Hochtemperaturentwicklung (HTE), genutzt. Einige Eigenschaften für den in vielen Experimenten relevanten Strukturfaktor werden im Rahmen des Modells in Kapitel 3.1 erläutert und der Zusammenhang mit der magnetischen Ordnung von Spinsystemen aufgezeigt. Die RGM wird in Kapitel 3.2 ausführlich vorgestellt, wobei zum einen erstmalig im Rahmen dieser Theorie auf Größen wie den (dynamischen) Strukturfaktor näher eingegangen wird und zum anderen allgemeine Resultate bei beliebigen Heisenberg-Systemen hergeleitet werden. Die Thermodynamik wichtiger Messgrößen wird in den meisten untersuchten Modellen mit der HTE, die in Kapitel 3.3 kurz vorgestellt wird, verglichen. Für den Strukturfaktor, der einen wesentlichen Teil der Untersuchungen ausmacht, werden die Korrelationsfunktionen in Kombination mit den Koordinaten benötigt. Hierfür wurde ein *bash*-Skript geschrieben, das in der Lage ist, analytische Formeln für den Strukturfaktor zu berechnen. Dieser Zugang wird im Anhang 3.3.1 erläutert und die Ergebnisse werden in allen folgenden Kapiteln (Kapitel 3.4 bis 3.7) vorgestellt und diskutiert. Für die gesamte Arbeit wird folgend von der Wahl $\hbar = k_B = 1$ Gebrauch gemacht.

Kapitel
2

HUBBARD-MODELL

Gegenstand der Untersuchungen in diesem Kapitel soll das Einband-Hubbard-Modell sein

$$\hat{H} = \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow,i,j} t_{i,j}(\hat{c}_{i,\sigma}^\dagger \hat{c}_{j,\sigma} + \hat{c}_{j,\sigma}^\dagger \hat{c}_{i,\sigma}) + U \sum_i \hat{n}_{i,\uparrow} \hat{n}_{i,\downarrow}, \quad (2.1)$$

mit $U > 0$, und $\hat{n}_{i,\sigma} = \hat{c}_{i,\sigma}^\dagger \hat{c}_{i,\sigma}$,

wobei die bekannten fermionischen Vertauschungsrelationen $[\hat{c}_{i,\sigma}^\dagger, \hat{c}_{j,\sigma}]_+ = \hat{c}_{i,\sigma}^\dagger \hat{c}_{j,\sigma} + \hat{c}_{j,\sigma} \hat{c}_{i,\sigma}^\dagger = \delta_{i,j}$ und $[\hat{c}_{i,\sigma}, \hat{c}_{j,\sigma}]_+ = 0$ gelten. Die $t_{i,j}$ bezeichnen die sogenannten Hüpfmatrixelemente, welche die Übergänge der Elektronen zwischen den Gitterplätzen energetisch wichten. Ist die chemische Konfiguration eines Festkörpers bekannt, so sind die Matrixelemente innerhalb der *tight-binding*-Näherung durch den Überlapp der atomaren Wellenfunktionen bestimmt. Da diese den Elektronentransport regulieren, werden jene Terme in der Summe oftmals als kinetischer Part des Hamiltonians bezeichnet. Die Coulomb-Wechselwirkung U trägt der (lokalen) elektrostatischen Abstoßung der Elektronen Rechnung. Das ursprünglich zur Erklärung von itinerantem Ferromagnetismus in Übergangsmetallen aufgestellte Hubbard-Modell [6], das in seiner abstrahierten Struktur simpel erscheint, beinhaltet eine Fülle von weiteren physikalischen Phänomenen, wie zum Beispiel den Metall-Isolator Übergang [7], den fraktionalen Quanten-Hall-Effekt [8] und facettenreiche Phasenübergänge zwischen exotischen Zuständen der Materie. Ebenso wird vermutet, dass starke elektronische Korrelationen wesentliche Erkenntnisse im Zusammenhang mit der Hochtemperatursupraleitung liefern könnten. Trotz seiner einfachen Gestalt ist man jedoch wegen des Vielteilchen-Charakters bis auf wenige Ausnahmen auf Näherungsverfahren angewiesen, deren Gültigkeitsbereich sensitiv von den gemachten Annahmen abhängen kann. In einer einfachen Molekularfeld-Näherung mittels einer Hartree-Fock-Entkopplung geht die $SU(2)$ -Symmetrie verloren. Es ist bekannt, dass die Hartree-Fock-Entkopplung im Limes kleiner Coulomb-Wechselwirkung $U \rightarrow 0$ und somit schwach wechselwirkender Fermionen gute Ergebnisse liefert.

In den nachfolgenden Kapiteln soll es darum gehen, einen speziellen Mechanismus für das Zustandekommen von itinerantem Ferromagnetismus bei $T = 0$ zu studieren.

2.1 Ferromagnetismus bei schwach dispersiven Bändern

Ferromagnetismus ist im Rahmen des Hubbard-Modells ein intensiv studiertes physikalisches Phänomen, da dieser, letztlich auch wegen des Pauli-Prinzips, nur unter bestimmten Bedingungen etabliert werden kann [4, 6, 9–11]. Besonders interessant ist der Umstand, dass der Hamiltonian in Gleichung (2.1) von spinunabhängigen Parametern abhängt, die bei bestimmten Konfigurationen zur Ausbildung von Ferromagnetismus führen. Das berühmte approximative Stoner-Kriterium liefert hierfür $U\rho(E_F) > 1$, wobei $\rho(E_F)$ die Zustandsdichte an der Fermi-Kante ist (eine gute Zusammenfassung findet sich hierfür in [10]). Für den Grenzwert $U \rightarrow \infty$ konnte rigoros gezeigt werden, dass bestimmte Konfigurationen des Modells einen ferromagnetischen Grundzustand (GS) ausbilden, die Nagaoka-Ferromagneten genannt werden, siehe hierzu [9]. Dabei kommt U eine besondere Rolle zu, ist doch ein notwendiges Kriterium von Ferromagnetismus die Korrelation von Elektronen, also die Wechselwirkung der Teilchen.

Eine besondere Klasse von Ferromagneten, die durch das Hubbard-Modell beschrieben werden kann, ist die der Flach-Band-Ferromagneten. Hierbei führt die sogenannte ideale Geometrie der Kopplungen zur Ausbildung eines flachen Bandes. Flache Bänder korrespondieren mit lokalisierten Zuständen. Für Modelle mit halber Füllung des flachen Bandes, in denen Elektronen in sogenannten Elektronenfallen lokalisiert sind, konnte gezeigt werden, dass ein beliebig kleines $U > 0$ immer zu einem ferromagnetischen GS führt [12–17]. Hierfür müssen die Fallen bestimmte Konnektivitäts-Bedingungen erfüllen (das bedeutet, die Elektronenfallen überlappen einander). Die (Grund-)Zustände, die das energetisch niedrigste flache Band bei $U = 0$ besetzen, sind entartet. Durch das „Einschalten“ der (positiven) Coulomb-Wechselwirkung $U > 0$ wird diese Entartung bei überlappenden Elektronenfallen teilweise aufgehoben. Doppelt besetzte, also durch das Pauli-Prinzip induzierte antiparallele Spin-Zustände, Gitterplätze werden dann energetisch benachteiligt. Zustände mit Elektronen symmetrischer, jedoch räumlich getrennter Spin-Konfigurationen verbleiben hingegen in der Mannigfaltigkeit des Grundzustandes. Auch ohne dass die Elektronenfallen überlappen, kann das Verbinden der isolierten Fallen unter bestimmten Bedingungen zu einem ferromagnetischen Grundzustand führen [11]. Im Folgenden sollen solche Modelle mit nichtüberlappenden Elektronenfallen betrachtet werden, die bei quasi-flachen Bändern (also durch Anwesenheit schwacher Dispersion) im GS ferromagnetisch sind. Die Abweichung von der idealen Geometrie, die im Folgenden als Abweichung δ betrachtet wird und das flache energetisch tiefste Band dispersiv macht, führt zu einer Schwächung des vollständig polarisierten FM und steht in Konkurrenz zum Parameter U . Störungen (Abweichungen) sind vom experimentellen Standpunkt unvermeidbar und insofern interessant, da Materialien ferromagnetisch ordnen können, die

keiner idealen Geometrie entsprechen. Dies kann zum Beispiel der Materialwissenschaft die Möglichkeit bieten, ferromagnetische Werkstoffe zu erhalten, in denen typische magnetische Atome (Übergangsmetalle) vollständig fehlen. Da flache Bänder zu lokalisierten Ein-Teilchen-Zuständen führen, kann die Aufgabe, die Bedingungen für einen solchen FM, also letztlich einen kritischen Schwellwert $U_c(\delta)$ zu bestimmen, als störungstheoretisches Problem mit Entartung verstanden werden. Die analytische und numerische Berechnung dieses Grenzwertes für einige ausgewählte Geometrien soll Gegenstand des nächsten Kapitels sein.

2.2 Exakte Diagonalisierung (ED) und Störungstheorie (PT)

Es werden in den folgenden Kapiteln Ergebnisse der ED genutzt. Hierfür stand das Programmpaket *spinpack* von Jörg Schulenburg zur Verfügung [18, 19]. Die Methodik liefert exakte numerische Daten für endliche Gitter. Um von endlichen Gittern auf thermodynamisch große Systeme zu schließen, wird typischerweise sukzessive die Anzahl der Elementarzellen erhöht. Hierbei treten sogenannte *finite-size*-Effekte auf, die man oftmals durch geschickte Extrapolationsverfahren zu minimieren versucht. Das Ziel der folgenden Abschnitte wird es sein, die Rayleigh-Schrödinger PT mit Entartung anzuwenden [20], diese mit den Daten der ED für Gitter unterschiedlicher Größe zu vergleichen, um repräsentative analytische Ausdrücke für das Phasendiagramm, das den Quantenphasenübergang ($T = 0$) zum itineranten FM des unendlich ausgedehnten Gitters darstellt, zu gewinnen. Der Zustandsraum der hier geschilderten Modelle steigt stark mit der betrachteten Gittergröße an. So sind für n Elektronen und insgesamt η Gitterplätze $(2\eta)!/(n!(2\eta - n)!)$ Eigenzustände zu berücksichtigen. Der Hamiltonian $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$ wird aufgespalten in einen Term $\hat{H}_0 = \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow,m} t_2 \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,2,\sigma} + \text{h.c.}$, dessen Eigenwertproblem gelöst ist, und der die Elektronenfallen vom Rest des Gitters separiert. Der zweite Term ist der Störterm \hat{V} , der die Elektronenfallen im Gitter miteinander verbindet und die Elektronen korrelieren lässt. Vielteilchenzustände lassen sich durch Linearkombinationen der lokalisierten Ein-Teilchen-Zustände konstruieren. Die erforderlichen Gleichungen, die für die Korrekturen genutzt wurden, sind bis zur sechsten Ordnung mit näheren Erläuterungen in Anhang A aufgeführt.

In [11] wurde hierfür die frustrierte Diamant-Kette, siehe Abbildung 2.1, für den Fall eines Gitters bestehend aus 5 Gitterpunkten mittels der PT bis zur vierten Ordnung bei einem Elektron je Elektronenfall untersucht. Zunächst soll in den nachfolgenden Kapiteln einerseits die Erweiterung dieser Ergebnisse auf größere Gitter bei der frustrierten Diamant-Kette erfolgen. Anschließend werden die bisherigen Ergebnisse innerhalb der PT um die sechste Ordnung erweitert. Um zu überprüfen, ob es sich dabei um einen allgemeinen Mechanismus handelt, werden anschließend zwei weitere Modelle untersucht. Einerseits wird ein weiteres eindimensionales Modell untersucht: die frustrierte Leiter, siehe Abbildung 2.5. Andererseits soll der Einfluss der Dimensionalität an einem zweidimensionalen

Modell, dem frustrierten Bilayergitter, untersucht werden, siehe Abbildung 2.11. Bei allen Modellen wird vorausgesetzt, dass die Anzahl der berücksichtigten Elektronen der Zahl der Elektronenfallen entspricht, so dass das energetisch günstigste (schwach dispersive) Band halb gefüllt ist. Die Ergebnisse der nachfolgenden Untersuchungen wurden in [21] veröffentlicht.

2.3 Konkrete Modelle

2.3.1 Frustrierte Diamant-Kette

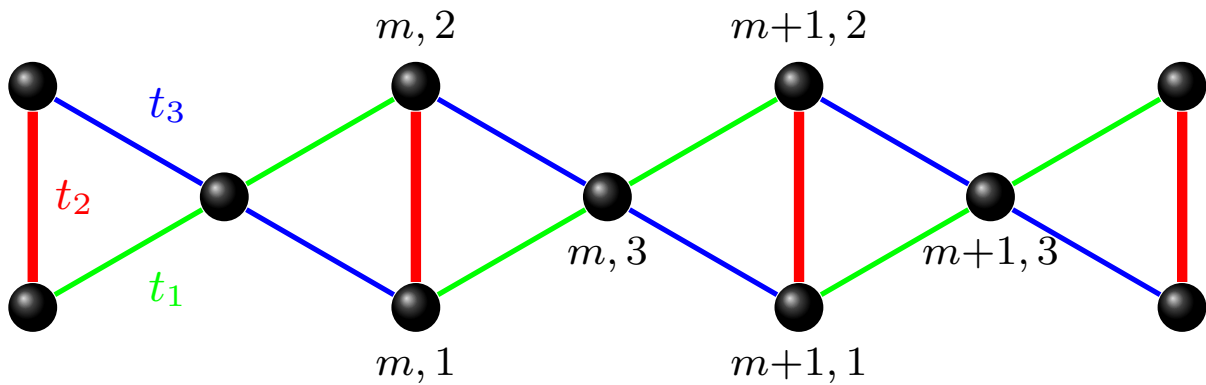


Abbildung 2.1.: Darstellung der frustrierten Diamant-Kette. Mit dem Index m sind die Einheitszellen nummeriert. Die nachfolgende Zahl in der Abbildung bezeichnet die Gitterplätze innerhalb der Einheitszelle. Die Kopplung innerhalb der Elektronenfallen sind rot dargestellt (t_2). Die zwei verschiedenen Kopplungen t_1 (grün) und t_3 (blau) verbinden die Elektronenfallen miteinander.

In [11] wurde die frustrierte Diamant-Kette mit $n = 2$ Elektronenfallen, rote Kopplungen in Abbildung 2.1, und 5 Gitterplätzen untersucht. Der zu Abbildung 2.1 korrespondierende Hamiltonian mit $m = 1, 2, \dots, \mathcal{N}$ Elektronenfallen ergibt sich zu

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow,m} \left[t_2 \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,2,\sigma} + t_1 \left(\hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,3,\sigma} + \hat{c}_{m,3,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,2,\sigma} \right) \right. \\ & \left. + t_3 \left(\hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,3,\sigma} + \hat{c}_{m,3,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,1,\sigma} \right) + \text{h.c.} \right] \\ & + U \sum_{m,\alpha} \hat{n}_{m,\alpha,\uparrow} \hat{n}_{m,\alpha,\downarrow}. \end{aligned} \quad (2.2)$$

Das Verhältnis der Hüppparameter $t_{i,j}$ ist entscheidend dafür, ob es zur Ausbildung eines flachen Bandes kommt. Der Parameter, der die Abweichung von der idealen Geometrie angibt, ist gegeben durch $\delta = \frac{t_1 - t_3}{t_1 + t_3}$, also $t_1 = t(1 + \delta)$ und $t_3 = t(1 - \delta)$ mit $t = \frac{t_1 + t_3}{2}$. Die Wahl der Parameter gewährleistet, dass die Stärke der Kopplungen $t_1 \neq t_3$ bei ihrem fixierten Mittelwert $t < t_2/2$ über δ kontrolliert werden kann. Diese Vorgabe ist von Bedeutung, denn das flache Band ist für $2t < t_2$ das niedrigste. Die Einteilchenenergien

($U = 0$) des entsprechenden Hamiltonians ergeben sich dann bei Vorhandensein eines flachen Bandes, also für $\delta = 0$, über eine Fourier-Transformation zu $\varepsilon_1 = -t_2$ und zwei dispersiven Bändern $\varepsilon_{2,3}(q) = t_2/2 \pm \sqrt{t_2^2/4 \mp 4t^2(1 + \cos(q))}$, wobei $q = 2\pi m/\mathcal{N}$, $m \in \mathbb{Z}$ und $-\mathcal{N}/2 \leq m < \mathcal{N}/2$. Gültige Mehrelektronenzustände für $U > 0$ können durch Linearkombinationen ($|\uparrow\rangle$ oder $|\downarrow\rangle$) mit $n = 2, \dots, \mathcal{N}$ Elektronen konstruiert werden, siehe hierzu Anhang A.1. Die ungestörten Grundzustände mit $SU(2)$ -Symmetrie für die PT bei der frustrierten Diamant-Kette mit 5 Gitterplätzen und $n = 2$ Elektronen sind $|t, 1\rangle = \hat{l}_{m,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\uparrow}^\dagger |0\rangle$, $|t, 0\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{l}_{m,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\downarrow}^\dagger + \hat{l}_{m,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\uparrow}^\dagger \right) |0\rangle$, $|t, -1\rangle = \hat{l}_{m,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\downarrow}^\dagger |0\rangle$ (die Tripletzustände) und $|s\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{l}_{m,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\downarrow}^\dagger - \hat{l}_{m,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{m+1,\uparrow}^\dagger \right) |0\rangle$ (der Singulett-Zustand), wobei $|0\rangle$ der Vakuum-Zustand ist und die Operatoren $\hat{l}_{m,\sigma}^\dagger = \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger - \hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger \right)$ (hier $m = 1$) eingeführt wurden. Wie die ungestörten Grundzustände mit $SU(2)$ -Symmetrie bei größeren Gittern zu wählen sind, ist ebenso im Anhang A.1 angegeben. Das konkrete Vorgehen der Raleigh-Schrödinger PT und die expliziten Formeln für die Grundzustandsenergiekorrekturen sind im Anhang A vorgestellt. Für das Modell mit 5 Gitterpunkten zeigte sich, dass die vierte Ordnung PT notwendig ist, um eine unterschiedliche Energiekorrektur $E_{|t\rangle}^{(4)} \neq E_{|s\rangle}^{(4)}$ zu erreichen, denn neben der Korrektur $E_{|t\rangle}^{(2)} = E_{|s\rangle}^{(2)}$ ergab sich eine verschwindende dritte Ordnung $E_{|t\rangle}^{(3)} = E_{|s\rangle}^{(3)} = 0$. Bei der Berechnung mussten insgesamt 45 Eigenzustände berücksichtigt werden. Die Korrekturen der Triplet-Energien in vierter Ordnung wiesen dabei im Gegensatz zur Singulett-Energie keine Abhängigkeit von der Coulomb-Wechselwirkung U auf. Als Kriterium für Ferromagnetismus im Grundzustand konnte aus $E_{|t\rangle}^{(4)} - E_{|s\rangle}^{(4)}(U_c) = 0$ eine kompakte Formel

$$\frac{U_c}{t_2} = \frac{\sqrt{16 + 65\delta^2} + 9|\delta|}{1 - \delta^2} |\delta| \quad (2.3)$$

angegeben werden. In einem ersten Schritt wird nun untersucht wie sich die Ergebnisse für die frustrierte Diamant-Kette mit zwei Elektronenfallen unter der Berücksichtigung der sechsten Ordnung PT verändern. Anschließend wird das Modell (mit offenen Randbedingungen (ORB)) um eine Elektronenfalle auf $n = 3$, also 8 Gitterplätze, erweitert. Zunächst sei erwähnt, dass die Ergebnisse aus [11] reproduziert werden konnten. In der Erweiterung auf die sechste Ordnung, siehe hierzu Anhang A, wurden die Energiekorrekturen des Singuletts und der Tripletzustände

$$E_{|t\rangle} = -2t_2 + E^{(2)} + E_{|t\rangle}^{(4)} + E_{|t\rangle}^{(6)}, \quad (2.4)$$

$$E_{|s\rangle}(U) = -2t_2 + E^{(2)} + E_{|s\rangle}^{(4)}(U) + E_{|s\rangle}^{(6)}(U) \quad (2.5)$$

bestimmt, wobei die expliziten Formeln in Anhang A.2.1 vorzufinden sind. Hierbei wurde insbesondere gefunden, dass die nächsthöhere (ungerade) Energiekorrektur in beiden Fällen verschwindet: $E_{|t\rangle}^{(5)} = E_{|s\rangle}^{(5)} = 0$. Man kann zunächst erkennen, dass die Korrektur durch die PT höherer Ordnung die Energien erwartungsgemäß näher an die Daten der ED verschiebt,

siehe hierzu Abbildung 2.2. Interessanterweise weicht der Übergang, beschrieben durch U_c , für einen großen Parameterbereich nur unwesentlich von der Gleichung (2.3) ab. Die Bedingung $E_{|t\rangle} = E_{|s\rangle}(U_c)$ gestattet keine Aufstellung einer einfachen Formel, weswegen man hier auf eine numerische Lösung dieser Gleichung angewiesen ist.

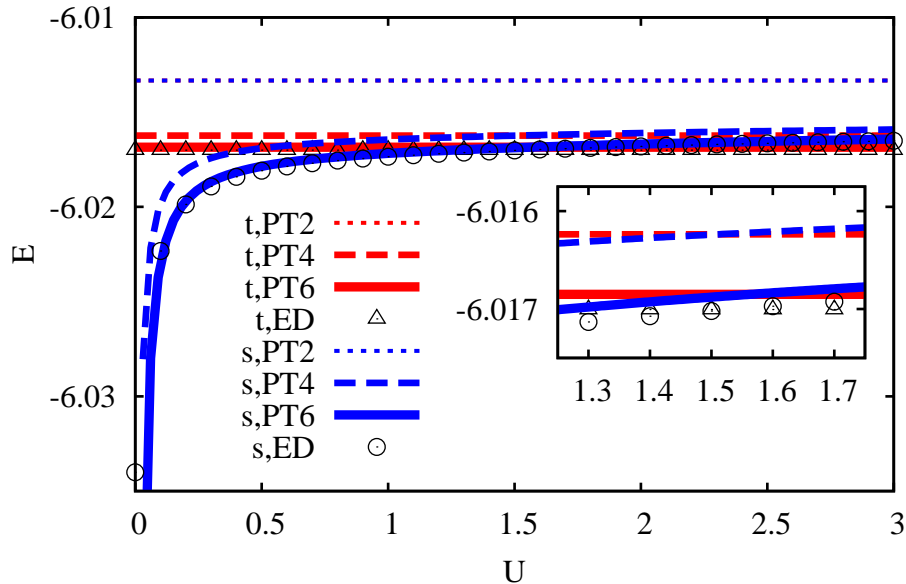


Abbildung 2.2.: Energien der tiefliegenden Zustände (Tripletts – rot, Singulett – blau) als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für $n = 2$ Elektronen und 2 Elektronenfallen auf der Diamant-Kette mit offenen Randbedingungen und $t_2 = 3$, $t_1 = 0.9$, $t_3 = 1.1$. Die Resultate der zweiten, vierten, beziehungsweise sechsten Ordnung sind gekennzeichnet durch kurz-gestrichelte, lang-gestrichelte, beziehungsweise durchgezogene Linien. Die Resultate der ED sind mit Symbolen dargestellt. Die Energiekorrekturen für den Tripletts und Singulett sind identisch, siehe hierzu Gleichung (A.9).

In Abbildung 2.2 sind die Tripletts- bzw. Singulett-Energien als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung in Abhängigkeit der Ordnung der PT dargestellt. Dabei wurden die Gleichungen (A.9), (A.10) und (A.12) aus der PT mit den Daten aus der ED für die Parameter-Verhältnisse $t_2 = 3$, $t_1 = 0.9$, $t_3 = 1.1$ (also $t = 1$, $|\delta| = 0.1$, mit $\delta = (t_1 - t_3)/(t_1 + t_3)$) verglichen. Es ist zu bemerken, dass die PT im Limes $U \rightarrow 0$ versagt, da die Energie des Singulett negativ divergiert. Die Daten der ED liefern hingegen eine endliche Energie. Der Grund dafür liegt in der gemachten Annahme der Grundzustandsmännigfaltigkeit: Innerhalb des hier angewandten Schemas der PT ist die Ausgangslage zweier Elektronen in einer Zelle als GS ausgeschlossen. Diese Zustände werden jedoch als angeregte Zustände innerhalb des Formalismus behandelt. Im Limes kleiner Coulomb-Wechselwirkung $U \rightarrow 0$ tendieren eben die Energien dieser Zustände gegen die ungestörten Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -2t_2$ der angesetzten Grundzustände. Dies führt zu Termen mit kleinen Nennern, oder anders ausgedrückt zu divergenten Termen in der PT.

Für größere Gitter müssen mehr Zustände berücksichtigt werden, siehe hierzu Anhang

A.1 und A.2.2, und die Störungsrechnung wird aufwändiger. Hierzu sei auf Anhang A.1 verwiesen.

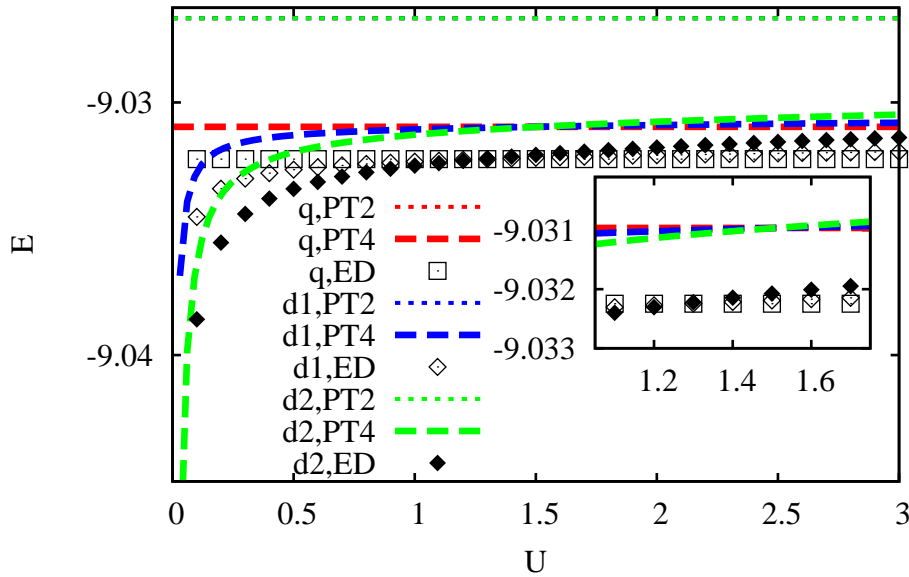


Abbildung 2.3.: Energien der tiefliegenden Zustände, Quadruplett (rot) und Dubletts (blau und grün) als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für $n = 3$ Elektronen mit 3 Elektronenfallen auf der Diamant-Kette (ORB) mit $t_2 = 3$, $t_1 = 0.9$, $t_3 = 1.1$. Die Ergebnisse der zweiten und vierten Ordnung der PT sind mit kurz-gestrichelten und lang-gestrichelten Linien dargestellt, wobei die Quadruplett- und Dublett-Energien innerhalb der zweiten Ordnung PT übereinstimmen, siehe hierzu Gleichung (A.13). Die Ergebnisse der ED sind mit Symbolen aufgetragen.

Das energetische Aufspalten der Niveaus der verschiedenen $SU(2)$ -Multipletts beginnt auch in diesem Fall ab der vierten Ordnung PT. In Abbildung 2.3 sind die Quadruplett- bzw. Dublett-Energien als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U in Abhängigkeit der Ordnung der PT mit dem gleichen Set der Parameter wie in Abbildung 2.2 ($t_2 = 3$, $t_1 = 0.9$ und $t_3 = 1.1$) dargestellt. Auf den ersten Blick scheinen die Ergebnisse für PT und ED in Abbildung 2.3 leicht voneinander abzuweichen. Einerseits muss natürlich auf die Skala hingewiesen werden. Andererseits findet man einen ähnlichen Verlauf für 2 Zellen, siehe Abbildung 2.2, und es ist davon auszugehen, dass die sechste Ordnung auch hier die Übereinstimmung verbessern würde. Es ist hervorzuheben, dass die Energien des Quadrupletts E_q und der Dubletts $E_{d1}(U)$ und $E_{d2}(U)$ in vierter Ordnung in beiden Fällen die Formel (2.3) reproduzieren. Dies erklärt zum einen, weswegen die PT in der Ordnung 4 für wenige Elektronenfallen bereits präzise Voraussagen über das Phasendiagramm längerer Diamant-Ketten treffen kann, siehe Abbildung 2.4. Zum anderen erkennt man eine schwache Abhängigkeit der Größe U_c/t_2 von t_2 , die erst in der sechsten Ordnung PT auftritt und sich ebenfalls in den Daten der ED finden lässt. Nichtsdestotrotz ist die Korrektur zu Gleichung (2.3) gering und insbesondere im Regime kleiner Störungen $\delta \ll 1$ vernachlässigbar. Mit Abbildung 2.4 wird gleichzeitig das Hauptergebnis dieses

Abschnitts vorgestellt. Die ferromagnetische Phase ist hier vom restlichen Bereich durch die Funktion $U_c(\delta)/t_2$ separiert. Das Phasendiagramm ist eine für das spezifische Modell charakteristische Abbildung, die nicht nur demonstriert, dass die Daten von ED und PT gut übereinstimmen. Insbesondere lässt sich auch daraus abschätzen, ab wann das Abweichen von der idealen Geometrie δ so groß ist, dass sich selbst durch $U \rightarrow \infty$ kein ferromagnetischer GS mehr etablieren kann.

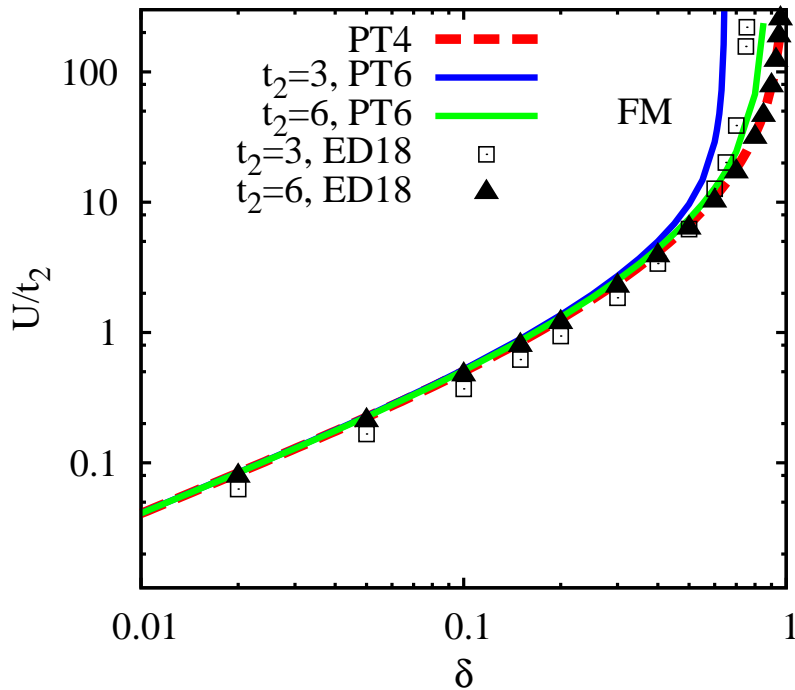


Abbildung 2.4.: Phasendiagramm des Hubbard-Modells auf der frustrierten Diamant-Kette. Der ferromagnetische GS ist für $U > U_c$ realisiert. Die kritische Linie U_c ist hier als Funktion von δ gezeigt ($t = 1$), hierbei wurde für die ED ein Gitter mit 18 Plätzen (6 Elektronenfallen) berücksichtigt. Die analytische Formel für $U_c^{(4)}$ der PT4 ist durch Gleichung (2.3) gegeben, wohingegen die Datenpunkte für $U_c^{(6)}$ numerisch bestimmt wurden. Mit 'FM' ist das Regime der ferromagnetischen Phase gekennzeichnet.

Es verbleibt die Frage, inwieweit die vorliegenden Erkenntnisse für die Diamant-Kette für andere Systeme mit isolierten Elektronenfallen gültig sind. Hierfür wird im nachfolgenden Abschnitt ein weiteres Beispiel mit der ED und der PT behandelt.

2.3.2 Frustrierte Leiter

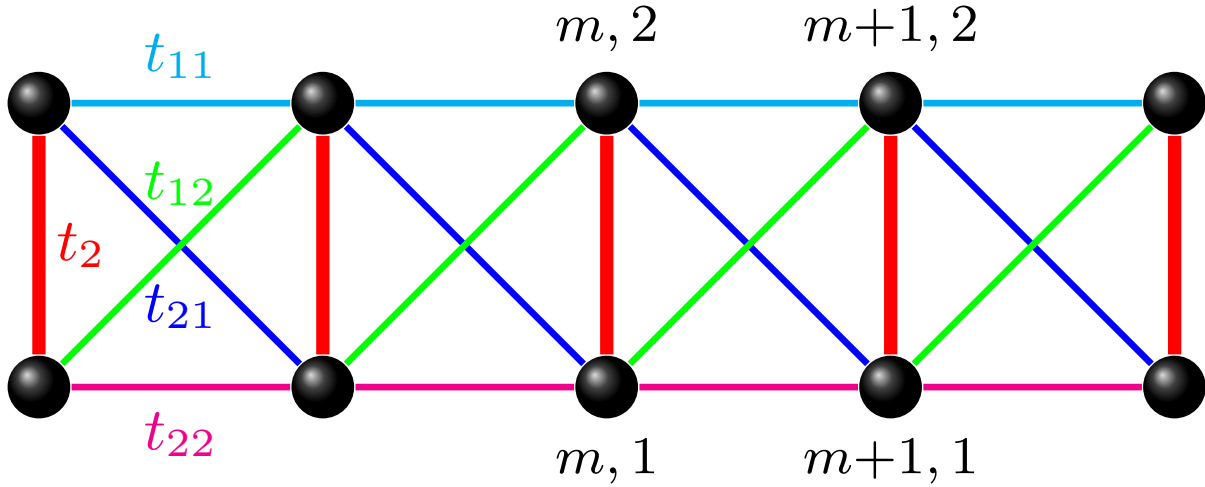


Abbildung 2.5.: Darstellung der frustrierten Leiter. Mit dem Index m sind die Einheitszellen nummeriert. Die nachfolgende Zahl in der Abbildung bezeichnet die Gitterplätze innerhalb der Einheitszelle. Die Kopplung der Elektronenfallen sind rot dargestellt (t_2). Die vier verschiedenen Kopplungen t_{11} (cyan), t_{12} (grün), t_{21} (blau) und t_{22} (magenta) verbinden die Elektronenfallen miteinander.

Wie in Kapitel 2.3.1 kurz erläutert, soll das Vorgehen aus [11] auf die sogenannte frustrierte Leiter, siehe Abbildung 2.5, ausgeweitet werden. Der Hamiltonian ergibt sich dann zu

$$\begin{aligned} \hat{H} = & \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow,m} \left(t_2 \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,2,\sigma} + t_{11} \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,1,\sigma} + t_{12} \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,2,\sigma} \right. \\ & \left. + t_{21} \hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,1,\sigma} + t_{22} \hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m+1,2,\sigma} + \text{h.c.} \right) \\ & + U \sum_{m,\alpha} \hat{n}_{m,\alpha,\uparrow} \hat{n}_{m,\alpha,\downarrow}. \end{aligned} \quad (2.6)$$

Zunächst sei an dieser Stelle eine analog zu Kapitel 2.3.1 eingeführte Parametrisierung der Kopplungen vorgestellt

$$\begin{aligned} t_{11} &= t_l(1 + \delta_l), & t_{12} &= t_f(1 + \delta_f), & t_{21} &= t_f(1 - \delta_f), & t_{22} &= t_l(1 - \delta_l), \\ t_l &= \frac{t_{11} + t_{22}}{2}, & \delta_l &= \frac{t_{11} - t_{22}}{t_{11} + t_{22}}, & t_f &= \frac{t_{12} + t_{21}}{2}, & \delta_f &= \frac{t_{12} - t_{21}}{t_{12} + t_{21}}. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Diese sorgt dafür, dass die jeweiligen Abweichungen der beiden Diagonal-Kopplungen t_f und der beiden Horizontalkopplungen t_l über zwei Parameter δ_f und δ_l angegeben werden können. Die Einteilchenenergien ergeben sich wieder im Limes wechselwirkungsfreier Elektronen $U \rightarrow 0$ über eine Fourier-Transformation zu

$$\varepsilon_{1,2}(q) = 2t_l \cos(q) \mp \sqrt{(t_2 + 2t_f \cos(q))^2 + 4t_l^2 \delta_l^2 \cos^2(q) + 4t_f^2 \delta_f^2 \sin^2(q)}, \quad (2.8)$$

wobei sich das flache Band bei idealer Geometrie ($\delta_f = \delta_l = 0$ und $t_{11} = t_{12} = t_{21} = t_{22} = t$ oder $t_l = t_f = t$) zu $\varepsilon_1(q) = \varepsilon_1 = -t_2$ ergibt und das energetisch günstigste ist, wenn $\varepsilon_2(q) = t_2 + 4t \cos(q) > \varepsilon_1$, also $2t < t_2$ gilt. Im Folgenden wird $t_l + t_f = 2t$ ($t_{11} + t_{12} + t_{21} + t_{22} = 4t$) gesetzt. Leichte Abweichungen von der idealen Geometrie führen auch hier zu einer schwachen Dispersion. Im Folgenden soll der zweidimensionale Parameterbereich (δ_f, δ_l) für verschiedene Fälle untersucht werden. Hierfür sind neben dem allgemeinen Fall zwei spezielle Abweichungen von der idealen Geometrie von Bedeutung:

1. Die symmetrische Abweichung mit $t_{11} = t_{22}$, $t_{12} = t_{21}$ und $t_{11} \neq t_{12}$ ($t_l \neq t_f$, $\delta_l = \delta_f = 0$). In diesem Fall sind die Bänder aus Gleichung (2.8) gegeben durch $\varepsilon_{1,2}(q) = \mp t_2 + 2(t_l \mp t_f) \cos(q)$.
2. Die semi-symmetrische Abweichung mit $t_{11} = t_{12}$, $t_{21} = t_{22}$ und $t_{11} \neq t_{21}$ ($t_l = t_f = t$, $\delta_l = \delta_f = \delta \neq 0$) (dieser Fall ist identisch zu $t_{11} = t_{21}$, $t_{12} = t_{22}$ und $t_{11} \neq t_{12}$ ($t_l = t_f = t$, $\delta_l = -\delta_f = \delta \neq 0$), da δ_f oder δ_l nur quadratisch auftreten. In diesem Fall sind die Bänder aus Gleichung (2.8) gegeben durch $\varepsilon_{1,2}(q) = 2t \cos(q) \mp \sqrt{(t_2 + 2t \cos(q))^2 + 4t^2 \delta^2}$.

Es wird sich zeigen, dass diese beiden Spezialfälle sich hinsichtlich ihrer physikalischen Aussagen zum kritischen Schwellwert U_c grundlegend unterscheiden. Nachfolgend werden beginnend für die PT $\mathcal{N} = 2, 3, 4$ ($2\mathcal{N}$ Gitterpunkte; offene Randbedingungen (ORB)) betrachtet und mit Daten der ED für $\mathcal{N} = 6, 8, 10$ ($2\mathcal{N}$ Gitterpunkte; ORB und periodische Randbedingungen (PRB)) verglichen.

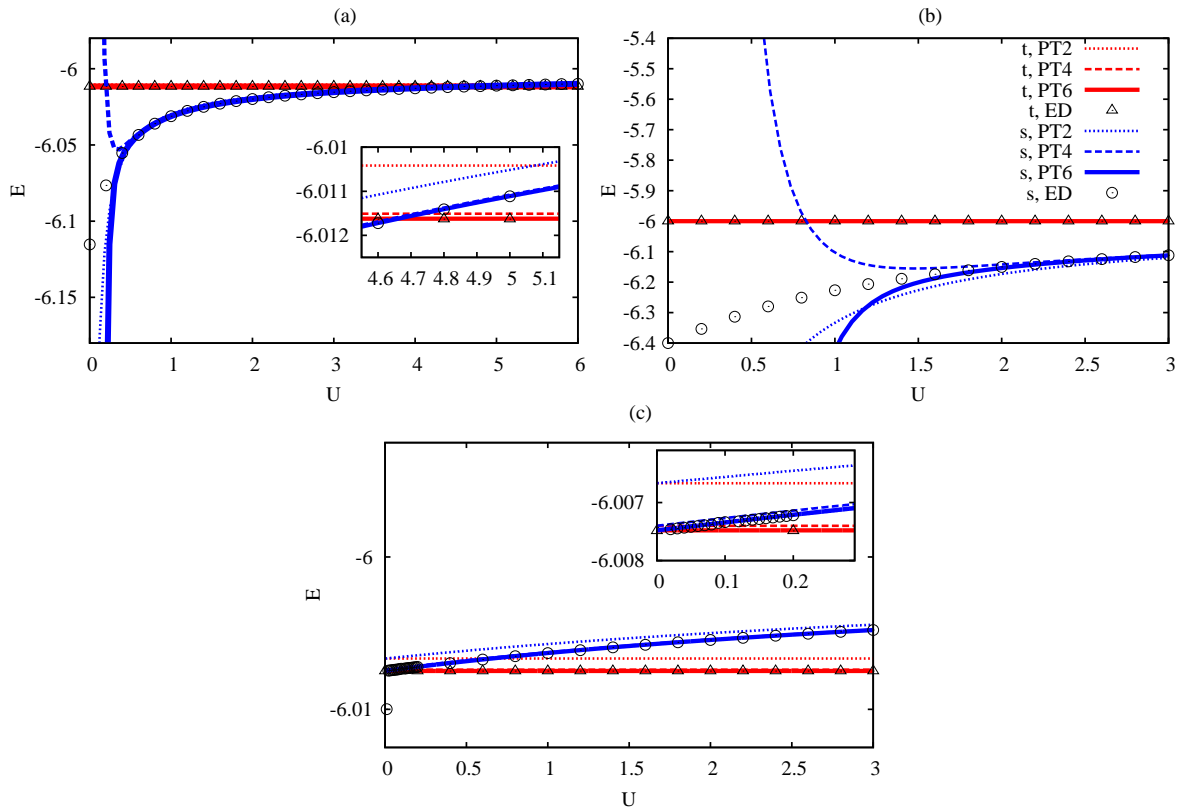
$n = 2$ ELEKTRONEN UND $\mathcal{N} = 2$ ZELLEN

Abbildung 2.6.: Energien der tiefliegenden Zustände, Triplet (rot), Singulett (blau), als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U (PT Ordnung 2,4,6 und ED) für $n = 2$ Elektronen auf der frustrierten Leiter mit $\mathcal{N} = 2$ Zellen (ORB). (a) $t_2 = 3$, $t_{11} = 0.85$, $t_{12} = 0.95$, $t_{21} = 1$, $t_{22} = 1.2$ (allgemeine Abweichung). (b) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{22} = 1.1$, $t_{12} = t_{21} = 0.9$ (symmetrische Abweichung). (c) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{21} = 1.1$, $t_{12} = t_{22} = 0.9$ (semi-symmetrische Abweichung); Die ED liefert $U_c \approx 0.015$, wohingegen die PT auch in der Ordnung $6 U_c^{(6)} = 0$ liefert.

Beginnend mit dem kleinstmöglichen Gitter mit zwei Zellen ergibt die PT des Triplets und des Singulets die folgenden Korrekturterme in sechster Ordnung

$$E_t = -2t_2 + E_t^{(2)} + E_t^{(4)} + E_t^{(6)} + \dots, \quad (2.9)$$

$$E_s(U) = -2t_2 + E_s^{(2)}(U) + E_s^{(4)}(U) + E_s^{(6)}(U) + \dots, \quad (2.10)$$

wobei hier im Gegensatz zur frustrierten Diamant-Kette aus Kapitel 2.3.1 aus Gründen der einfacheren Geometrie bereits in zweiter Ordnung nichtverschwindende Korrekturterme

$$E_t^{(2)} = -\frac{t_l^2 \delta_l^2 + t_f^2 \delta_f^2}{t_2}, \quad (2.11)$$

$$E_s^{(2)}(U) = -\frac{(t_l - t_f)^2}{t_2} - 2 \frac{t_l^2 \delta_l^2 + t_f^2 \delta_f^2}{2t_2 + U} - \frac{8(t_l - t_f)^2}{U} \quad (2.12)$$

zu beachten sind. Die expliziten Ausdrücke der höheren Ordnungen sind im Anhang A.3.1 zu finden. Es ist in Abbildung 2.6 zu erkennen, dass die PT für einen großen Bereich der Parameter auch bereits in den niedrigsten Ordnungen gut mit den Daten der ED übereinstimmt. Vor allem die U -unabhängigen Korrekturen der Triplettzustände sind in sechster Ordnung nahezu identisch mit den ED-Daten. Ebenso wie bei der Diamant-Kette versagt im Limes $U \rightarrow 0$ auch hier in manchen Parameterbereichen die PT hinsichtlich des Korrekturterms des Singulett. Es gibt nun Folgendes zu beobachten: Bei dem betrachteten allgemeinen Fall in Abbildung 2.6(a) gilt, dass sowohl die ED, als auch die PT(6) ein sehr gut übereinstimmendes U_c liefern. Für die symmetrische Abweichung, siehe Abbildung 2.6(b), findet die PT innerhalb des Konvergenzbereiches keinen Übergang U_c und die Energien der Triplettzustände erfahren keine Korrektur, siehe zum Beispiel Gleichung (2.11) mit $\delta_l = \delta_f = 0$.¹ Dies ist in Übereinstimmung mit den Resultaten der ED. Das heißt, es gibt keinen ferromagnetischen GS. Für die semi-symmetrische Abweichung liefert die PT in allen betrachteten Näherungsstufen ein $U_c = 0$ gleichbedeutend damit, dass der ferromagnetische GS bei einer beliebig kleinen Störung δ gewährleistet ist, siehe Abbildung 2.6(c).² Die Daten der ED liefern hier im gezeigten Beispiel jedoch ein (kleines) $U_c \approx 0.015 \neq 0$. Die Gleichungen (2.11) und (2.12) gestatten die Angabe einer kompakten allgemeinen Formel für den kritischen Wert U_c in zweiter Ordnung

$$\frac{U_c^{(2)}}{t_2} = \frac{5|t_l - t_f| + \sqrt{9(t_l - t_f)^2 + 16(t_l^2\delta_l^2 + t_f^2\delta_f^2)}}{-(t_l - t_f)^2 + t_l^2\delta_l^2 + t_f^2\delta_f^2} |t_l - t_f|, \quad (2.13)$$

die die bisherigen Resultate qualitativ gut widerspiegeln. So sieht man beispielsweise für die symmetrische Abweichung ($t_l \neq t_f$ und $\delta_l = \delta_f = 0$), dass $U_c^{(2)} = -8t_2 < 0$ ist, und daher kein ferromagnetischer GS entsteht. Wiederum gilt für die semi-symmetrische Abweichung ($t_l = t_f$ und $\delta_l = \delta_f = \delta$) offensichtlich $U_c^{(2)} = 0$. Hierzu muss andererseits gesagt werden, dass $t_l = t_f$ in höherer Ordnung PT nicht prinzipiell zu einem $U_c^{(n>2)} = 0$ führt, siehe hierzu Abbildung 2.10. Die Phasengrenzen, an denen durch ein $U_c^{(2)} \rightarrow \infty$ Ferromagnetismus noch eintreten kann, können in zweiter Ordnung PT durch eine Ellipsengleichung

$$\left(\frac{t_l}{t_l - t_f} \delta_l\right)^2 + \left(\frac{t_f}{t_l - t_f} \delta_f\right)^2 = 1 \quad (2.14)$$

¹Für diesen Fall lässt sich in der Tat zeigen, dass bei genannter Symmetrie $\hat{V}|t, n\rangle = 0$ für $n = 0, \pm 1$ gilt. Außerdem werden aus dem Singulettzustand $\hat{V}|s\rangle \propto \left(\hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{1,\downarrow}^\dagger + \hat{l}_{2,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\downarrow}^\dagger\right) |0\rangle$ Zustände erzeugt, die Energieterme der Form $-2t_2 + U$ im Nenner der Korrekturterme einbringen, im Limes $U \rightarrow 0$ gegen die Energie der Grundzustände gehen und dazu führen, dass die PT versagt.

²Auch für die semi-symmetrische Abweichung lässt sich das Verhalten der PT im Limes $U \rightarrow 0$ veranschaulichen, so enthält doch $\hat{V}|t\rangle$ entweder Terme der Form $\hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger |0\rangle$, oder $\left(\hat{c}_{m,1,\uparrow}^\dagger \hat{c}_{m,2,\downarrow}^\dagger + \hat{c}_{m,1,\downarrow}^\dagger \hat{c}_{m,2,\uparrow}^\dagger\right) |0\rangle$ und $\hat{V}|s\rangle \propto \left(\hat{c}_{m,1,\uparrow}^\dagger \hat{c}_{m,1,\downarrow}^\dagger - \hat{c}_{m,2,\uparrow}^\dagger \hat{c}_{m,2,\downarrow}^\dagger\right) |0\rangle$, die gerade zu allen Zuständen orthogonal sind, welche zu Divergenzen für $U \rightarrow 0$ in der PT führen könnten.

dargestellt werden. Phasenraumpunkte außerhalb dieser Ellipse entsprechen dem ferromagnetischen Bereich, siehe hierzu Abbildung 2.7. Erwartungsgemäß sind die Übereinstimmungen mit der ED für kleinere $|\delta_f|$, $|\delta_l|$, t_l und t_f besser. Für größere Werte dieser Parameter verliert die PT jedoch zunehmend ihre Gültigkeit. Zudem lässt sich die Symmetrie aus Gleichung (2.13) ($\delta_f \leftrightarrow \delta_l$ und $t_f \leftrightarrow t_l$) nicht in den Daten der ED wiederfinden (der zugrundeliegende Hamiltonian in Gleichung (2.6) besitzt diese auch nicht).

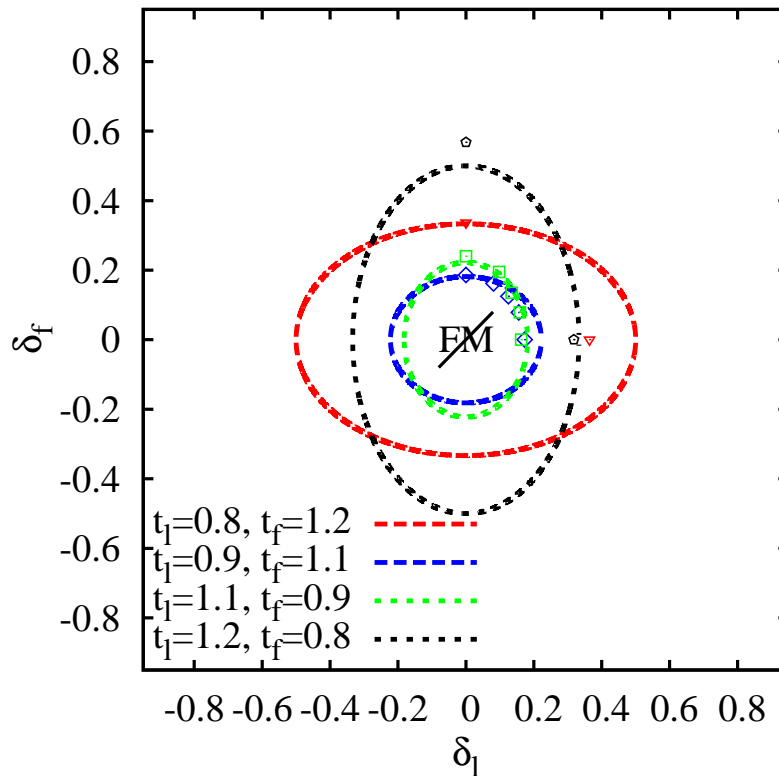


Abbildung 2.7.: Das Phasendiagramm gewonnen mit der PT zweiter Ordnung (Linien) verglichen mit der ED für $\mathcal{N} = 8$ (Symbole) im Schnitt der δ_l - δ_f -Ebene mit $t_2 = 3$ ($t_l + t_f = 2 < t_2$). Der Bereich innerhalb der Ellipsen besitzt keinen ferromagnetischen GS.

$n = 3(4)$ ELEKTRONEN UND $\mathcal{N} = 3(4)$ ZELLEN

Analog zur frustrierten Diamant-Kette in Kapitel A.2.2 wird nun die Zahl der Elementarzellen (also der Elektronenfallen) erhöht, um die oben diskutierten Ergebnisse zu verifizieren. Der Grundzustand für $\mathcal{N} = 3$ Zellen ist nach Kapitel A.1 2^3 -fach entartet und es müssen, neben dem Quadruplett, zwei verschiedene Dubletts berücksichtigt werden

$$\begin{aligned}
E_q &= -3t_2 + E_q^{(2)} + E_q^{(4)} + \dots, \\
E_{di}(U) &= -3t_2 + E_{di}^{(2)}(U) + E_{di}^{(4)}(U) + \dots, i = 1, 2.
\end{aligned} \tag{2.15}$$

Die entsprechenden expliziten Formeln sind auch hier im Anhang A.3.2 gegeben. Für das analoge Problem mit $\mathcal{N} = 4$ Zellen treten nun erstmalig drei hinsichtlich der Multiplizität verschiedene Grundzustände auf. Der 2^4 -fach entartete Grundzustand mit der ungestörten Energie $E_0 = -4t_2$ ist hier durch das Quintett, drei verschiedene Triplets und zwei verschiedene Singulets

$$\begin{aligned}
E_Q &= -4t_2 + E_Q^{(2)} + E_Q^{(4)} + \dots, \\
E_{ti}(U) &= -4t_2 + E_{ti}^{(2)}(U) + E_{ti}^{(4)}(U) + \dots, i = 1, 2, 3, \\
E_{sj}(U) &= -4t_2 + E_{sj}^{(2)}(U) + E_{sj}^{(4)}(U) + \dots, j = 1, 2,
\end{aligned} \tag{2.16}$$

gegeben. Wie auch im Fall der Diamant-Kette muss für größere Gitter eine Vielzahl weiterer Terme bei der Berechnung berücksichtigt werden, weswegen sich hier auf die vierte Ordnung PT beschränkt werden muss. Es zeigt sich jedoch, dass die wesentlichen physikalischen Resultate für $\mathcal{N} = 2$ auch bei größeren Gittern wiederzufinden sind und schon in dieser Ordnung gut wiedergegeben werden. Ein bemerkenswertes Resultat ist, dass trotz der unterschiedlichen Energien in zweiter Ordnung, man betrachte zum Beispiel die Gleichungen (A.25) und (A.22), die Formel für $U_c^{(2)}$ stets gegeben ist durch Gleichung (2.13). Der Vergleich mit den Daten der ED ist für $\mathcal{N} = 3$ in Abbildung 2.8 (und für $\mathcal{N} = 4$ in Abbildung A.1 in Anhang A.3.3) gezeigt. Die Übereinstimmung ist auch bei größeren Gittern und demzufolge bei der Berücksichtigung mehrerer unterschiedlich gearteter Grundzustände in weiten Bereichen der Parameter überzeugend. Diese unterschiedlichen Grundzustände sind eine natürliche Erscheinung größerer Gitter. Unterscheiden sich die nichtmagnetischen Zustände für $\mathcal{N} = 3$ nur hinsichtlich ihrer Symmetrie, siehe Gleichungen (2.15), so muss eine Unterscheidung von Zuständen unterschiedlicher Spinquantenzahl spätestens ab $\mathcal{N} = 4$ erfolgen, siehe Gleichungen 2.16. Aus den Resultaten geht hier hervor, dass der magnetisch vollständig polarisierte Zustand für das betrachtete Modell stets konkurrierend mit den Singulettzuständen ist, wobei der Kreuzungspunkt der Energien für U_c aller unterschiedlicher Zustände nahezu übereinstimmen. Dieses Ergebnis ist für die betrachteten Parameterverhältnisse in Übereinstimmung mit den Daten aus der ED (ebenso für $\mathcal{N} > 4$ (gerade)), siehe Abbildung A.1.

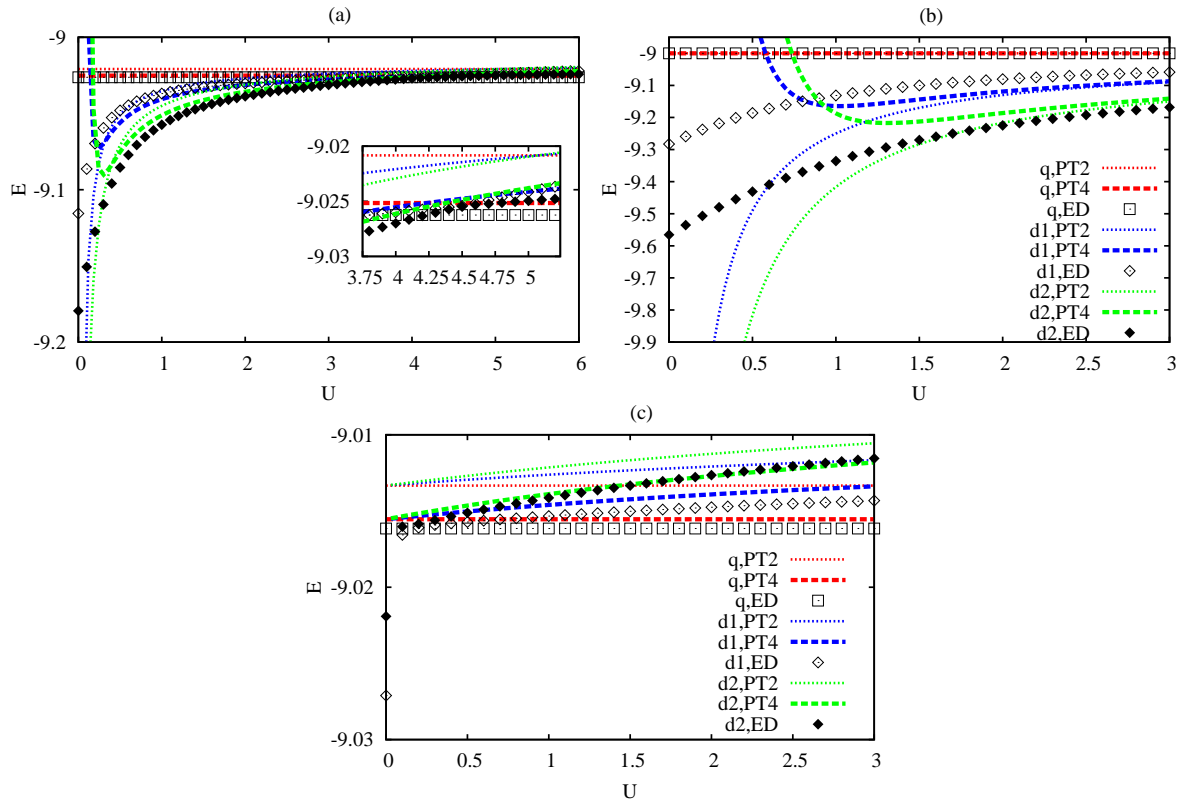


Abbildung 2.8.: Grundzustandsenergien (bis zur vierten Ordnung PT im Vergleich mit ED) als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für $n = 3$ Elektronen auf der Leiter mit offenen Randbedingungen mit $\mathcal{N} = 3$ Zellen. (a) $t_2 = 3$, $t_{11} = 0.85$, $t_{12} = 0.95$, $t_{21} = 1$, $t_{22} = 1.2$ (generelle Abweichung). (b) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{22} = 1.1$, $t_{12} = t_{21} = 0.9$ (symmetrische Abweichung). (c) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{21} = 1.1$, $t_{12} = t_{22} = 0.9$ (semi-symmetrische Abweichung).

PHASENDIAGRAMME

Nun werden nachfolgend die Ergebnisse der Grundzustandsphasen der frustrierten Leiter in Phasendiagrammen zusammengefasst. Wegen des großen Parameterraums werden die Werte auf $t_2 = 3$, $t_l + t_f = 2 < t_2$ festgelegt, so dass durch eine weitere Vorgabe von t_l oder t_f der Parameterraum durch die δ_f - δ_l -Ebene beschrieben ist.

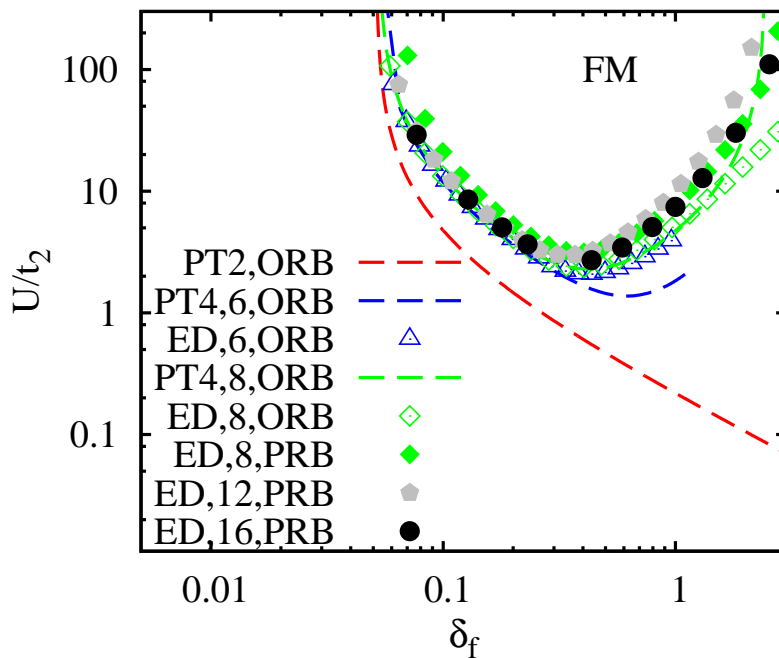


Abbildung 2.9.: Phasendiagramm (die Phasengrenze ist der kritische Schwellwert U_c/t_2 als Funktion von δ_f) für die Leiter mit $t_2 = 3$, $t_l = 1.025$, $t_f = 0.975$ und $\delta_l = 0$ innerhalb der PT im Vergleich mit Daten der ED unterschiedlicher Größe der Gitter ($\mathcal{N} = 6, 8, 12, 16$ Gitterpunkte) variierender Randbedingungen (ORB beziehungsweise PRB).

Beginnend mit einem allgemeinen Fall in Abbildung 2.9 (mit $\delta_l = 0$) ist das Gebiet mit ferromagnetischem GS oberhalb der Funktion $U_c(\delta_f)$ eingegrenzt. Man kann erkennen, dass die Näherungsformel $U_c^{(2)}$ Gleichung (2.13), aus der PT2 resultierend, für kleine δ_f gut mit den Resultaten aus der ED übereinstimmt. Dies gilt auch für größere Gitter, wobei es sich zeigt, dass die Daten aus der PT4 eine deutliche Verbesserung hinsichtlich der Konvergenz gegen die nichtmonotone Funktion $U_c(\delta_f)$ auch für größere Abweichungen δ_f gewährleisten. Das prinzipielle Verhalten der Funktion $U_c(\delta_f)$ ist das folgende: Unterhalb eines Schwellwertes $\delta_{f,1}$ ist der GS, in Übereinstimmung mit Gleichung (2.14), nichtmagnetisch. Oberhalb dieses Wertes nimmt U_c mit δ_f ab und beginnt nach dem Passieren eines Minimums bei $\delta \approx 0.4$ wieder zu steigen, um für $U_c(\delta_{f,2}) \rightarrow \infty$ einen weiteren nichtmagnetischen GS anzuzeigen. Aus PT2 folgt $\delta_{f,1} \approx 0.051$ (PT4: $\delta_{f,1} \approx 0.0523$; ED: $\mathcal{N} = 8$, $\delta_{f,1} \approx 0.053$). Für größere Abweichungen von der idealen Geometrie liefert PT4 ein $\delta_{f,2} \approx 2.46$ (ED: $\mathcal{N} = 8$, $\delta_{f,2} \approx 3.25$).

Für $t_l = t_f = 1$ sind folgende Schnitte durch die Parameterebene δ_f - δ_l gezeigt: $U_c(\delta_f, \delta_l = \{0; 0.05\})$ Abbildung 2.10(a), $U_c(\delta, \delta)$ Abbildung 2.10(b) und $U_c(\delta_f = \{0; 0.05\}, \delta_l)$ Abbildung 2.10(c).

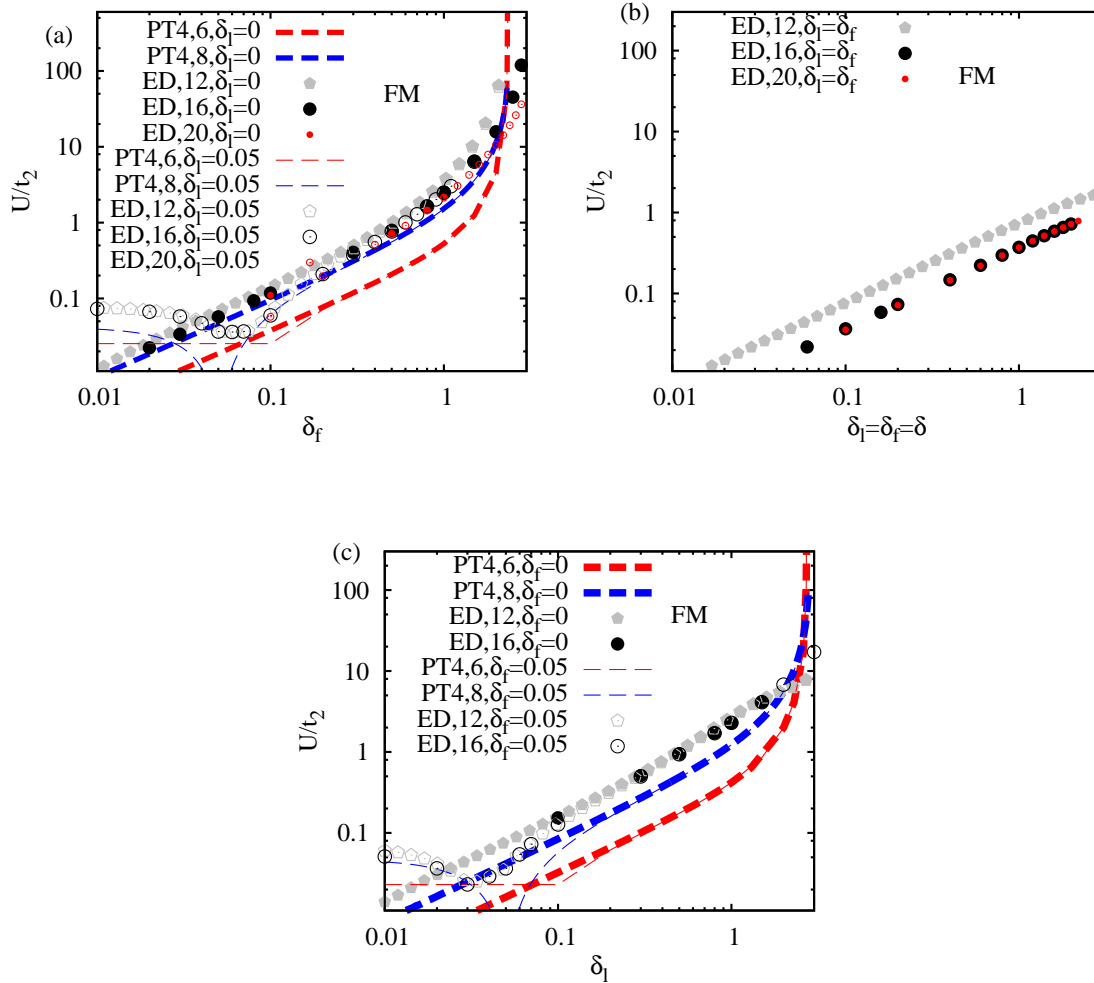


Abbildung 2.10.: Phasendiagramm (die Phasengrenze ist der kritische Schwellwert $U_c^{(4)}/t_2$ als Funktion unterschiedlicher δ) für die Leiter mit $t_2 = 3, t_l = t_f = 1$ innerhalb der PT im Vergleich mit Daten der ED für unterschiedliche Größen der Gitter variierender Randbedingungen (ORB beziehungsweise PRB; PT2 liefert an dieser Stelle jeweils $U_c^{(2)} = 0$, siehe Gleichung(2.13)): (a) $\delta_l = 0, 0.05$. (b) $\delta_l = \delta_f = \delta$ (PT4 liefert hier $U_c = 0$). (c) $\delta_f = 0, 0.05$.

Zuallererst muss erwähnt werden, dass die jeweiligen Werte für die PT innerhalb der zweiten Ordnung gänzlich verschwinden, siehe Gleichung (2.13) $\curvearrowright U_c^{(2)}(t_l = t_f) = 0$. Lediglich für den Fall semi-symmetrischer Abweichung $\delta_f = \delta_l = \delta$ in den gezeigten Abbildungen liefert auch PT4 ein $U_c^{(4)} = 0$. Aus den Daten der ED geht jedoch hervor, dass für diese spezielle Wahl der Parameter ein mögliches $U_c \neq 0$ einer höheren Ordnung der PT bedarf. Die wesentlichen zum Teil komplizierten Abhängigkeiten in den Abbildungen 2.10(a) und 2.10(c) werden innerhalb der Näherung PT4 gut wiedergegeben. Außerdem ist zu erkennen, dass die *finite-size*-Effekte schwach ausgeprägt sind und von einer Gültigkeit des ferromagnetischen GS auch für das unendlich große Gitter auszugehen ist.

2.3.3 Frustriertes (zweidimensionales) Bilayer-Gitter

In diesem Kapitel soll der zuvor untersuchte Mechanismus für Ferromagnetismus im GS an einem zweidimensionalen System geprüft werden. Das frustrierte Bilayergitter, siehe Abbildung 2.11, ist das zweidimensionale Analogon der frustrierten eindimensionalen Leiter. Es wird sich zeigen, dass die Ergebnisse praktisch das gleiche Verhalten aufweisen wie die frustrierte Leiter. Deshalb werden die wesentlichen Ergebnisse nachfolgend nur kurz zusammengefasst.

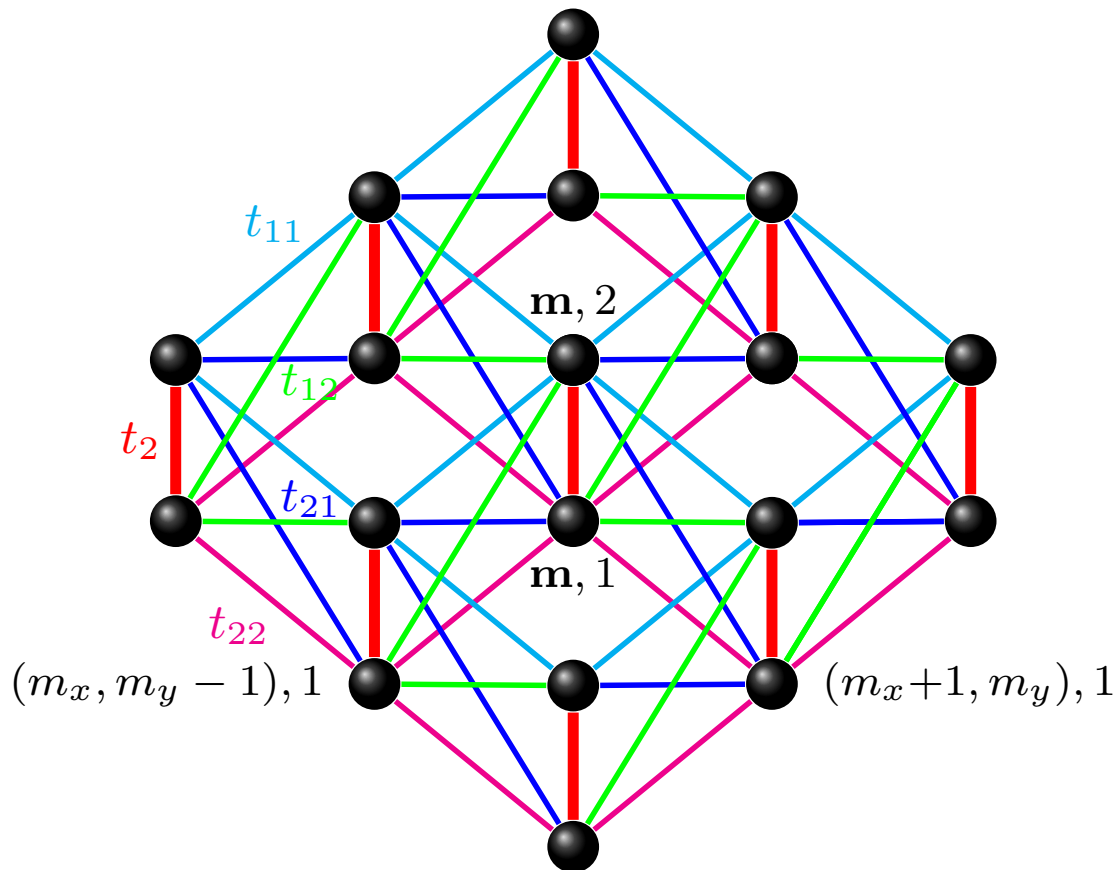


Abbildung 2.11.: Darstellung des zweidimensionalen Bilayers. Mit dem Index $\mathbf{m} = (m_x, m_y)$ sind die Einheitszellen nummeriert. Die nachfolgende Zahl in der Abbildung bezeichnet die Gitterplätze innerhalb der Einheitszelle. Die Kopplung der Elektronenfallen sind rot dargestellt (t_2). Die vier verschiedenen Kopplungen t_{11} (cyan), t_{12} (grün), t_{21} (blau) und t_{22} (magenta) verbinden die Elektronenfallen miteinander.

Die Parameter können wegen der Analogie zur frustrierten Leiter wie in Gleichung (2.7) gewählt werden, das heißt Gleichung (2.7) gilt auch in diesem Fall für alle folgenden Betrachtungen. Damit wie in den vorhergehenden Modellen das leicht dispersive Band am energetisch günstigsten ist, muss für alle folgenden, nach Abbildung 2.11 definierten Hüfelemente, $t_{11} + t_{12} + t_{21} + t_{22} < t_2$ gelten. Das flache Band ist dann wieder realisiert durch $t_l = t_f$ und $\delta_f = \delta_l = 0$. Bedingt durch die zweidimensionale Geometrie ist der technische Aufwand zur Berechnung der PT, aber auch der ED, um ein Vielfaches größer.

Das kleinste vorstellbare Modell, entsprechend Kapitel 2.3.2 für die frustrierte Leiter, ist ein Modell mit 5 Elektronenfallen (eine davon ist zentral). Dadurch bedingt werden zum einen nur die kleinstmöglichen Gitter für die ED genommen: 16 Gitterpunkte (PRB) und 10 Gitterpunkte (ORB). Andererseits ist auch die Möglichkeit der Anwendbarkeit der PT begrenzt. Nachfolgend werden die Ergebnisse innerhalb der PT4 für das Modell bestehend aus 10 Gitterpunkten ($\mathcal{N} = 5$ Zellen) mit ORB betrachtet, dafür können jedoch wegen des Aufwandes lediglich die Unterräume $S = 5/2$ und $S = 3/2$, also

$$E_S = -5t_2 + E_S^{(2)} + E_S^{(4)} + \dots, \quad (2.17)$$

$$E_{qi}(U) = -5t_2 + E_{qi}^{(2)}(U) + E_{qi}^{(4)}(U) + \dots, i = 1, 2, 3, 4, \quad (2.18)$$

betrachtet werden (ein Sextuplett und vier Quadrupletts). Aus den vorhergehenden Kapiteln wurde jedoch deutlich, dass, wenn energetische Übergänge auftreten, diese hinsichtlich des Spins der Zustände nahe um einen Punkt U_c konzentriert sind, siehe zum Beispiel Abbildung A.1. Die expliziten Formeln sind in Anhang A.4.1 gegeben. Es ist an dieser Stelle hervorzuheben, dass das Resultat für PT2 auch in dem zweidimensionalen Modell auf ein $U_c^{(2)}$ nach Gleichung (2.13) führt. Trotz dieser Einschränkung sind die Übereinstimmungen beider Zugänge nach Abbildung 2.12 gut (in der ED werden die 5 Dubletts mit $S = 1/2$ berücksichtigt). Wie sich herausstellt, ist der energetische Übergang von dem Sextuplett zu den Quadrupletts und den Dubletts identisch. Vergleicht man die Ergebnisse der ED verschiedener Randbedingungen miteinander, so fällt eine größere Diskrepanz auf. Einerseits sind hier die Gitter so dimensioniert, dass Randeffekte einen größeren Einfluss auf die Ergebnisse haben (dieser Effekt ist in Abbildung 2.9 deutlich schwächer ausgeprägt). Andererseits kann zwar das angeführte kleinste Modell nur grobe Aussagen über das unendliche Gitter treffen, die prinzipiellen Abhängigkeiten aus den vorangegangenen Kapiteln werden jedoch wiedergefunden.

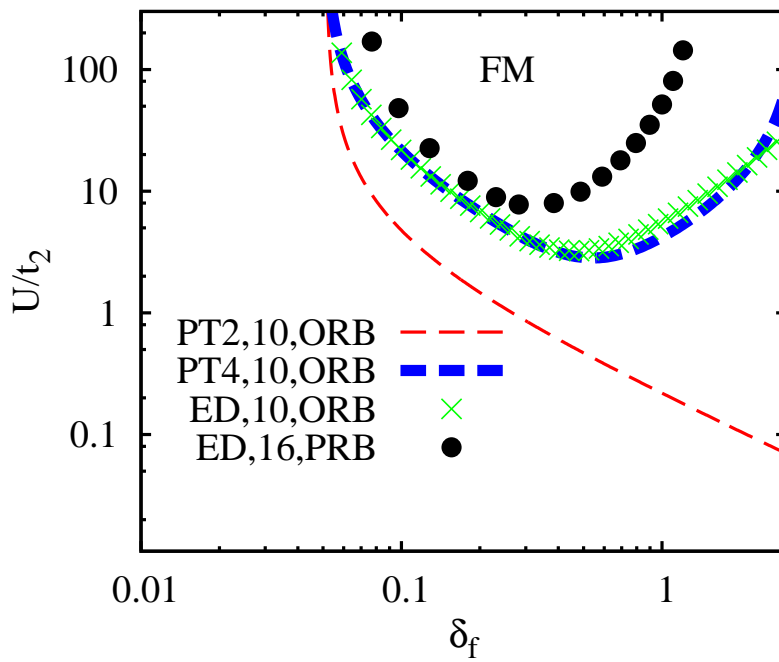


Abbildung 2.12.: Phasendiagramm (die Phasengrenze ist der kritische Schwellwert U_c/t_2 als Funktion von δ_f) für das Bilayer-Modell mit $t_2 = 5$, $t_l = 1.025$, $t_f = 0.975$ und $\delta_l = 0$ innerhalb der PT im Vergleich mit Daten der ED für unterschiedliche Größe der Gitter ($\mathcal{N}N = 10, 16$ Gitterpunkte) variierender Randbedingungen (ORB beziehungsweise PRB).

Zusammenfassung Kapitel 2.3: Dispersionsgetriebener FM

In diesem Abschnitt der Arbeit wurde der dispersionsgetriebene FM im Hubbard-Modell mittels der ED und der PT an einigen Beispielen verschiedener Gitter untersucht. Für die frustrierte Diamant-Kette in Kapitel 2.3.1 wurde das bekannte Ergebnis der PT vierter Ordnung reproduziert und um die sechste Ordnung erweitert. Außerdem wurde die PT auf ein um eine Elektronenfalle vergrößerte Diamant-Kette angewandt. Es zeigte sich, dass die analytische Formel für den kritischen Schwellwert $U_c^{(4)}$ innerhalb der PT4 auch für größere Gitter Gültigkeit besitzt. Dies erklärt die gute Übereinstimmung mit den ED-Daten längerer Ketten. Die sechste Ordnung PT verbessert die Übereinstimmung geringfügig und liefert eine nichttriviale Abhängigkeit des Terms $U_c^{(6)}(t_2)/t_2$ von t_2 , die sich ebenfalls in den Daten der ED wiederfinden lässt. In Kapitel 2.3.2 wurde die PT und die ED auf das Modell der frustrierten Leiter angewandt. Es wurde eine kompakte Formel $U_c^{(2)}/t_2 = (5|t_l - t_f| + \sqrt{9(t_l - t_f)^2 + 16(t_l^2 \delta_l^2 + t_f^2 \delta_f^2)})|t_l - t_f| / (-(t_l - t_f)^2 + t_l^2 \delta_l^2 + t_f^2 \delta_f^2)$ innerhalb der PT2 gefunden, die ebenfalls für größere Gitterausdehnungen ($\mathcal{N} = 2, 3, 4$) Bestand hat. Die Phasengrenzen werden durch eine Ellipse beschrieben. Der Parameterraum ist im Gegensatz zur Diamant-Kette größer. Es zeigt sich außerdem, dass bei speziellen Konfigurationen der Kopplungen der GS sofort ferromagnetisch ordnet ($U_c \approx 0$, semi-symmetrische Abweichung), oder nie (symmetrische Abweichung). Die in weiten Bereichen des Parameterraums gute Übereinstimmung von ED und PT bei geringen *finite-size*-Effekten lassen auf die Gültigkeit und die Relevanz für den GS-Ferromagnetismus des thermodynamisch großen Systems schließen. Ein interessantes Resultat ist, dass sich dieselbe Gleichung $U_c^{(2)}$ für das zweidimensionale Bilayer-Gitter in Kapitel 2.3.3 finden lässt und wesentliche Eigenschaften der frustrierten Leiter wiedergefunden werden. Durch die Größe des Gitters und der hohen Zahl der Zustände konnten zwar nur die Unterräume mit $S = 5/2, 3/2$ berücksichtigt werden, aber die betrachteten Daten der ED zeigen stets einen instantanen Übergang von voll polarisierten zu Zuständen mit geringstem Spin. Es bleibt zu konstatieren, dass es sich bei diesem neuen Mechanismus des dispersionsgetriebenen FM um einen universellen Mechanismus handelt, der in Systemen mit isolierten Elektronenfällen und beliebiger Dimension auftreten kann.

Ein geeignetes effektives quantenmechanisches Modell zur Untersuchung von Festkörpern mit lokalisierten Spins ist das bereits in der Einleitung erwähnte Heisenberg-Modell [5]

$$\begin{aligned}\hat{H} &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta}, \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} (\hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^z + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-), \\ \text{mit} \quad \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha}^2 &= S(S+1) \quad \forall m, \alpha.\end{aligned}$$

Alle griechischen Indizes bezeichnen die Spins in der Elementarzelle $\alpha = 1, 2, \dots, N$, wohingegen die lateinischen Summationsindizes über alle Elementarzellen laufen $m = 1, 2, \dots, \mathcal{N}$. Die Zahl der Gitterplätze, also der Spins, ist somit $N\mathcal{N}$. Die Spin-Operatoren gehorchen der bekannten Algebra $[\hat{S}_{m\alpha}^+, \hat{S}_{n\beta}^-]_- = 2\delta_{m\alpha, n\beta} \hat{S}_{m\alpha}^z$ und $[\hat{S}_{m\alpha}^z, \hat{S}_{n\beta}^\pm]_- = \pm\delta_{m\alpha, n\beta} \hat{S}_{m\alpha}^\pm$, wobei $\hat{S}_{m\alpha}^\pm = \hat{S}_{m\alpha}^x \pm i\hat{S}_{m\alpha}^y$ ist. Ausgehend von der Geometrie des Festkörpers müssen Annahmen bezüglich der Austauschkopplungen $J_{m\alpha, n\beta}$ gemacht werden. Physikalisch einleuchtend ist, dass die Wechselwirkungsstärke mit dem Abstand abnimmt, weswegen sich in der Praxis oftmals auf kurzreichweitige Wechselwirkungen, beispielsweise zwischen nächsten Nachbarn (J_1) oder übernächsten Nachbarn (J_2), beschränkt wird. Davon abgeleitet werden diese Modelle J_1 - J_2 -... Modelle genannt. Die Komplexität des Vielteilchencharakters bleibt auch unter diesen Vereinfachungen erhalten und man ist bis auf wenige Ausnahmefälle auf Näherungslösungen angewiesen. Zahlreiche Methoden haben sich im Laufe der Zeit etabliert, um die Eigenschaften des GS verschiedener Netzwerke aus Spins zu bestimmen, aber auch um die magnetischen Isolatoren bei tiefen oder hohen Temperaturen zu beschreiben. Auszugsweise erwähnt seien hier die folgenden Verfahren:

- ED: Diese Methode basiert, wie auch schon in Kapitel 2.2 erwähnt, auf der exakten Diagonalisierung eines endlichen Systems, siehe [18, 22]. Verglichen mit dem unendlich großen Gitter leidet sie unter *finite-size*-Effekten und wird vornehmlich

auf den Fall $T = 0$ angewandt. Es existieren keine prinzipiellen Einschränkungen des konkret verwendeten Modells beziehungsweise des unterliegenden Gitters. Für höherdimensionale Gitter wachsen jedoch die *finite-size*-Effekte an und die Methode ist weniger effizient.

- CCM: Die *coupled-cluster*-Methode (CCM) ist ein Verfahren, das präzise Daten für die Energie des GS, aber auch für den Ordnungsparameter des angesetzten Modellzustandes liefern kann, siehe beispielsweise [22]. Durch Beachtung aller möglichen sogenannten fundamentalen Konfigurationen auf endlichen Gebieten kann nach bewährten Extrapolationsschemata auf unendlich große *cluster* geschlossen werden. Es existieren zahlreiche Ergebnisse, aus denen hervorgeht, dass die CCM eine weitestgehend universelle (hinsichtlich der Wahl vom Wechselwirkungsmodell, der Parameterwahl, der Spinquantenzahl und der Gitterdimensionalität) und genaue Methode ist, auch wenn sie keinem Variationsprinzip unterliegt.
- FTLM: Basierend auf dem Lanczos-Verfahren schlägt die *finite-temperature*-Lanczos-Methode (FTLM) vor, die Zustandssumme für sehr große Systeme systematisch zu approximieren [23–25]. Dafür wird die exakte Summation über eine Orthonormalbasis ersetzt durch eine Summation über eine Auswahl von (zufallsgenerierten) Vektoren, die als Initialvektoren des Lanczos-Verfahrens dienen. Ein wichtiger Schritt des Iterationsverfahrens ist die Diagonalisierung kleinerer Unterräume des Hamiltonians im sogenannten Krylow-Raum, welche die Lanczos-Eigenenergien liefert und somit den Zugang zu den Messgrößen ermöglicht. Die Resultate stimmen ab einer gewissen Näherungsstufe mit den exakten Ergebnissen der betrachteten magnetischen Moleküle in [24] nahezu überein. Durch das vielversprechende und relativ neue Verfahren bieten sich hier womöglich auch in Zukunft interessante Anwendungsmöglichkeiten an. Eine aktuelle Veröffentlichung behandelt hierzu den Antiferromagneten (AFM) auf dem Kagome-Gitter mit $N = 42$ Gitterplätzen [25].
- (L)SWT: In der Spinwellentheorie (SWT) wird eine Bosonisierung der Spin-Operatoren vorgenommen. Die Ordnung der Näherung um einen (klassisch) geordneten Zustand kann dann als Berücksichtigung verschiedener Multi-Magnon-Wechselwirkungen verstanden werden [10]. In der linearen Spinwellentheorie (LSWT) betrachtet man harmonische Fluktuationen nicht wechselwirkender Magnonen um den gewählten Zustand. Typischerweise liefert diese analytische Methode für Modelle mit semiklassischer magnetischer Ordnung bei geringen Temperaturen gute Resultate.
- QMC: Die Quanten-Monte-Carlo-Methode (QMC) gestattet die numerisch präzise Bestimmung thermodynamischer Größen innerhalb eines akkurat definierbaren Fehlers für beliebige Spinquantenzahlen S (wobei eine für den Algorithmus wichtige Abbildung vom Quantensystem auf ein klassisches System vonnöten ist [26]). Für

frustrierte Modelle leidet diese Methode jedoch im Allgemeinen an dem sogenannten Vorzeichen-Problem und ist nicht anwendbar.

- DMRG: Die Dichtematrix-Renormierungsgruppe (DMRG) ist eine vielfach verwendete variationelle Technik und bedient sich der Zerlegung des gesamten Gitters in Blöcke, die durch sukzessive Vergrößerung auf das unendlich große Gitter schließen lassen [27]. Sie gilt als eine der effizientesten Verfahren für eindimensionale Probleme. Für höherdimensionale Gitter ist das Verfahren jedoch wegen der stark ansteigenden Komplexität nicht geeignet. Aktuell kommt der DMRG in der Literatur besondere Aufmerksamkeit zu, da eine geschickte Formulierung des Netzwerks aus Spins für zweidimensionale Gitter die Möglichkeit bietet, die DMRG entsprechend auch hier anwendbar zu machen [28]. Es besteht die Möglichkeit, eindimensionale röhrenartige Systeme (Tori) mit möglichst großen Durchmessern zu betrachten, um die Methode anzuwenden. Die Ergebnisse für den AFM mit $S = 1/2$ auf dem Kagome-Gitter finden sich zum Beispiel in [29] und zeichnen sich durch ihre sehr hohe Präzision aus.

In den nachfolgenden Kapiteln 3.2 und 3.3 werden zwei weitere Verfahren (die rotationsinvariante Greenfunktionstheorie (RGM) und die Hochtemperaturentwicklung (HTE)) vorgestellt, die auf verschiedene, sofern nicht explizit anders erwähnt, unendlich ausgehende Gittertypen angewendet werden.

3.1 Strukturfaktor

Eine Möglichkeit, einen Festkörper experimentell hinsichtlich seiner magnetischen Ordnung zu untersuchen, bieten Streuexperimente. Als Strahlenquelle werden Neutronen wegen ihrer Ladungsneutralität, Stabilität und des vorhandenen Spins von $S = 1/2$ bevorzugt. Diese werden beispielsweise durch Spallation mit schweren Elementen als Target-Material erzeugt. Die Europäische Spallationsquelle ERIC, deren Inbetriebnahme im Jahr 2019 geplant ist, beabsichtigt linearbeschleunigte Protonen mit einer Energie von 2 GeV auf ein Wolframtarget treffen zu lassen, um somit eine Neutronen-Produktionsrate von $\sim 10^{18} s^{-1}$ zu gewährleisten [30].

Bei inelastischen Streuprozessen [31, 32] hat der magnetische Anteil des (doppelt) differentiellen Wirkungsquerschnitts folgende Abhängigkeit

$$\frac{d^2\sigma_m}{d\omega d\Omega} \propto \sum_{k,l \in (x,y,z)} \left(\delta_{k,l} - \frac{q_k q_l}{q^2} \right) \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle \hat{S}_{\mathbf{q}}^k(t) \hat{S}_{-\mathbf{q}}^l \rangle, \quad (3.1)$$

siehe zum Beispiel [33], wobei der energetische Faktor

$$\begin{aligned} S_{\mathbf{q}}(\omega) &= \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle \hat{S}_{\mathbf{q}}(t) \hat{S}_{-\mathbf{q}} \rangle \\ &= \frac{1}{N\mathcal{N}} \sum_{m\alpha, n\beta} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta})} \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\omega t} \langle \hat{S}_{m\alpha}(t) \hat{S}_{n\beta} \rangle, \end{aligned} \quad (3.2)$$

dynamischer Strukturfaktor genannt wird. Experimentell von Bedeutung ist diese Größe auch vor allem deswegen, da diese sowohl als Funktion der Energie ω , als auch als Funktion des Quasiimpulses Aufschluss über die elementaren magnetischen Anregungen geben kann. Der mit der Zahl aller Spins normierte statische Strukturfaktor ist definiert als die Fourier-Transformierte aller möglichen Spin-Spin-Korrelationsfunktionen

$$S_{\mathbf{q}} = \frac{1}{N\mathcal{N}} \sum_{m\alpha, n\beta} \langle \hat{S}_{m\alpha} \hat{S}_{n\beta} \rangle e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta})}.$$

Die theoretische Beschreibung des statischen Strukturfaktors ist im Rahmen der in dieser Arbeit genutzten Methoden, siehe nachfolgende Kapitel 3.2 und 3.3, ohne zusätzliche Annahmen berechenbar und lässt sich durch Integration über ω aus dem dynamischen Strukturfaktor gewinnen: $S_{\mathbf{q}} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega S_{\mathbf{q}}(\omega)$. Die auftretende Doppelsumme lässt sich bei Gittersymmetrie als einfache Summe über die N Spins der Elementarzelle schreiben:

$$S_{\mathbf{q}} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha, n\beta} \langle \hat{S}_{0\alpha} \hat{S}_{n\beta} \rangle \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{0\alpha, n\beta}). \quad (3.3)$$

Hier wurde die Definition $\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta} = \mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta}$ des relativen Abstandsvektors zwischen den Spins $\hat{\mathbf{S}}_{m\alpha}$ und $\hat{\mathbf{S}}_{n\beta}$ eingeführt und die triviale Relation $\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta} = -\mathbf{r}_{n\beta,m\alpha}$ genutzt. Vergleicht man den Strukturfaktor mit Systemen unterschiedlicher Spinquantenzahl, so muss darauf geachtet werden, dass sowohl $S_{\mathbf{q}}$, als auch die Temperaturskala auf die charakteristische Skala $S(S+1)$ renormiert werden. Dies ist auch durch den wichtigen Grenzfall völliger Unordnung des Systems im Grenzfall hoher Temperaturen eine naheliegende Normierung. Der Strukturfaktor ergibt sich hier zu:

$$\begin{aligned} S_{\mathbf{q}}(\beta \rightarrow 0^+) &= \frac{1}{N} \sum_{\alpha} \langle (\hat{\mathbf{S}}_{0\alpha})^2 \rangle \\ &= S(S+1). \end{aligned}$$

Oftmals ist dem Experiment kein monokristallines Gitter zugänglich. Die zu untersuchende Probe liegt dann als Polykristall vor. Bei (Neutronen-)Streuexperimenten spricht man vom sogenannten *powder-averaging*. Da ein zugänglicher Messwert der Impulsübertrag des Streustrahls ist, ergibt sich der Vergleich mit der Theorie durch das Bilden des sphärischen Mittels des Streuvektors \mathbf{q}

$$\begin{aligned} \tilde{S}_{\mathbf{q}} &= \int \frac{d\Omega_{\mathbf{q}}}{4\pi} S_{\mathbf{q}} \\ &= \frac{1}{4\pi N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \int_0^{2\pi} \int_0^{\pi} d\theta d\phi \sin(\theta) \cos(q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}| \cos(\angle(\mathbf{q}, \mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}))) \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \int_0^{\pi} d\theta \sin(\theta) \cos(q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}| \cos(\theta)) \\ &= -\frac{1}{2N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \frac{\sin(q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}| \cos(\theta))}{q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}|} \Big|_0^{\pi} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \frac{\sin(q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}|)}{q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}|}. \end{aligned} \tag{3.4}$$

Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass sich die Mittelung wegen der Summe auf eine Mittelung der Summanden überträgt. Der Vektor \mathbf{q} kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit in die z-Achse gelegt werden, weswegen der Winkel $\angle(\mathbf{q}, \mathbf{r}_{0\alpha,n\beta})$ mit dem Polarwinkel identifiziert werden kann. Der rotationsinvariante Hochtemperatur-Limes bleibt auch hier erwartungsgemäß

$$\tilde{S}_{\mathbf{q}}(\beta \rightarrow 0^+) = S(S+1).$$

Hierbei können sich die Informationen, die man durch den sphärisch gemittelten Strukturfaktor erhält, von denen des skalaren Strukturfaktors unterscheiden, siehe hierzu [34]. Findet man beispielsweise für das J_1 - J_2 -Modell auf dem *honeycomb*-Gitter bei tiefen

Temperaturen deutliche Hinweise auf eine sogenannte Ring-Flüssigkeitsphase für einen Einkristall, so wird durch den Mittelungsprozess¹ teilweise lediglich ein einzelner Peak an jener Stelle im Spektrum des Strukturfaktors ersichtlich.

Eine andere Möglichkeit der Darstellung ist die des Strukturfaktors als Matrix mit den folgenden Matrixelementen, siehe hierzu beispielsweise [29, 35–39],

$$S_{\mathbf{q}}^{\alpha,\beta} = \frac{1}{N} \sum_n \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}). \quad (3.5)$$

Im Hochtemperatur-Limes ist diese Matrix diagonal

$$S_{\mathbf{q}}^{\alpha,\beta}(\beta \rightarrow 0^+) = \frac{S(S+1)}{N} \delta_{\alpha,\beta}.$$

Die Analyse der Eigenwerte beim Vorliegen des Strukturfaktors als Matrix liefert eine Aussage über die magnetische Ordnung. Der größte Eigenwert entspricht dann der favorisierten Spinstruktur. Die korrespondierenden Eigenvektoren erlauben eine zusätzliche Interpretation der Spin-Spin-Korrelationen innerhalb der Elementarzelle. Vergleicht man die Werte für den Strukturfaktor miteinander (also den skalaren Wert $S_{\mathbf{q}}$ mit den Eigenwerten von $S_{\mathbf{q}}^{\alpha,\beta}$), so muss auf den Normierungsfaktor geachtet werden. Es ist klar, dass Gleichung (3.3) mit Gleichung (3.5) den folgenden Zusammenhang hat:

$$S_{\mathbf{q}} = \sum_{\alpha,\beta} S_{\mathbf{q}}^{\alpha,\beta}.$$

Bei einem magnetischen Phasenübergang bilden sich Maxima in $S_{\mathbf{q}}$ an den Stellen der sogenannten magnetischen Ordnungsvektoren \mathbf{Q} aus. Diese sind in Beziehung zu mindestens einer bestimmten vom System favorisierten magnetischen Konfiguration der Spins zu setzen, wobei sich die Ausrichtung oftmals klassisch interpretieren lässt. Eine entsprechende Korrelationslänge $\xi_{\mathbf{Q}}$ leitet sich konventionsgemäß vom Strukturfaktor über das sogenannte zweite Moment von $S_{\mathbf{q}}$

$$\xi_{\mathbf{Q}} = \sqrt{-S_{\mathbf{q}}^{-1} \left. \frac{\partial^2 S_{\mathbf{q}}}{2\partial \mathbf{q}^2} \right|_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q}}} \quad (3.6)$$

ab [40–42].² Geht man davon aus, dass die Maxima des Strukturfaktors an diesen Stellen $\mathbf{q} \approx \mathbf{Q}$ zum Beispiel durch eine Cauchy-Lorentz-Verteilung $S_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} \approx S_{\mathbf{q}}(1 + (\mathbf{q}\xi_{\mathbf{Q}})^2)^{-1}$ beschrieben werden, so sieht man, dass $\xi_{\mathbf{Q}}$ ein Parameter dieser Funktion ist und die gewünschten Eigenschaften aufweist. Vom paramagnetischen Regime kommend, $T \rightarrow T_c + 0$, ist die folgende Relation $\chi_{\mathbf{Q}} \propto \beta S_{\mathbf{Q}}$ zwischen der wellenlängenabhängigen Suszeptibilität

¹Experimentell wird hiermit natürlich das Vorliegen des Kristalls als polykristalline Probe gemeint.

²Es ist davon auszugehen, dass in [42] der Faktor $1/\sqrt{2}$ in der Formel für $\xi_{\mathbf{Q}}$ wegen eines Druckfehlers fehlt, da auch das in [42] erwähnte Beispiel aus der Ginzburg-Landau-Theorie eines Korrekturfaktors von $1/\sqrt{2}$ bedarf, um dem gezeigten Resultat zu entsprechen.

und dem Strukturfaktor erfüllt [43]. Sowohl für den FM als auch für den AFM auf dem einfach kubischen Gitter gibt es in [6] eine gute Herleitung der genannten Größe innerhalb einer Greenfunktionsmethode niedrigster Ordnung. Die in dieser Arbeit angewandte (rotationsinvariante) Greenfunktionsmethode wird im folgenden Kapitel vorgestellt.

3.2 Rotationsinvariante Greenfunktionsmethode (RGM)

Die Greensfunktionsmethode (GFM) ist ein wohl etablierter Apparat, um (Quanten)-Vielteilchenprobleme in der Physik zu behandeln. Dieses Kapitel soll die rotationsinvariante Greenfunktionsmethode (RGM) vorstellen. Sie liefert einen Zugang zu zahlreichen experimentellen Messgrößen für den gesamten Temperaturbereich. Historisch gesehen wurde dieser bedeutende theoretische Beitrag 1972 von Kondo und Yamaji geleistet und auf das eindimensionale Modell der Kette mit $S = 1/2$ angewandt, um die kurzreichweitige Ordnung (SRO) bei $T > 0$ zu beschreiben [44]. Die RGM wurde im Jahre 1973 von Rhodes und Scales auf beliebige Werte der Spinquantenzahl S erweitert [45]. Mit der Berücksichtigung eines Kondensatterms schlugen Shimahara und Takada 1991 vor, Phasen mit LRO zu beschreiben [46]. Im Laufe der Zeit wurde die RGM weiterentwickelt und auf zahlreiche Quantenspinsysteme angewandt [46–60] und bietet heutzutage die Möglichkeit, beispielsweise Phasenübergänge konsistent zu beschreiben, oder aber stark frustrierte Quantenspinsysteme zu untersuchen. Zwar müssen in den meisten Fällen nichtlineare Gleichungssysteme, die Mehrfachintegrale enthalten, numerisch gelöst werden, jedoch erlaubt es der analytische Zugang, viele physikalische Größen zu untersuchen. In [61] wurde die RGM für Systeme mit $S = 1/2$ für Modelle mit nicht-primitiven Elementarzellen grundlegend formuliert und auf das geschichtete Kagome-Gitter angewandt. Anisotrope Modelle mit äußerem Feld und beliebigem Spin $S \geq 1/2$ und primitiver Elementarzellen wurden in [62] untersucht. Dabei wurden einerseits die ferromagnetische lineare Spinkette (und die Zusatzterme mit Feld $h \sum_{\mathbf{R}} \hat{S}_{\mathbf{R}}^z$ beziehungsweise mit einer sogenannten *single-ion* Anisotropie der Form $D \sum_{\mathbf{R}} \left(\hat{S}_{\mathbf{R}}^z \right)^2$ im Hamiltonian) und das Quadratgitter (mit *single-ion* Anisotropie) für $S > 1/2$ untersucht. Andererseits wurde der Einfluss von räumlicher Anisotropie über eine variable Kopplung J_{\perp} für geschichtete quasizweidimensionale FM und AFM für $S \geq 1/2$ ermittelt. Die Berücksichtigung einer frustrierenden zusätzlichen Kopplung nächster Nachbarn $J_2 > 0$ wurde für $S = 1/2$ sowohl auf der linearen Spinkette mit ferromagnetischem GS, als auch für das zweidimensionale Quadratgitter mit ferromagnetischem GS, aber auch im antiferromagnetischen Regime der kollinear gestreiften Phase in [63] studiert. In diesem Kapitel soll die RGM für Heisenberg-Modelle mit beliebiger Kopplung für (nicht-)primitive Elementarzellen allgemein hergeleitet werden. Dabei wird ein alternativer (kürzerer) Zugang zu den Gleichungssystemen der RGM aufgezeigt. Außerdem werden Ausdrücke für Messgrößen angegeben, die in der Literatur bisher weniger untersucht wurden. Zum Ende dieses Kapitels werden einige universelle Grenzfälle betrachtet, deren Erfüllen für die Theorie der RGM von Bedeutung sind, aber bisher nicht allgemein gezeigt worden sind.

Prinzipiell kann eine von drei möglichen zweizeitigen Greenschen Funktionen

$$\begin{aligned}
 G^r(t, t') &= \langle\langle \hat{A}(t); \hat{B}(t') \rangle\rangle^r = -i\Theta(t-t')\langle[\hat{A}(t), \hat{B}(t')]_\eta\rangle, \\
 G^a(t, t') &= \langle\langle \hat{A}(t); \hat{B}(t') \rangle\rangle^a = i\Theta(t'-t)\langle[\hat{A}(t), \hat{B}(t')]_\eta\rangle, \\
 G^k(t, t') &= \langle\langle \hat{A}(t); \hat{B}(t') \rangle\rangle^k = -i\langle\hat{T}_\eta \hat{A}(t) \hat{B}(t')\rangle
 \end{aligned} \tag{3.7}$$

zur Beschreibung genutzt werden, siehe zum Beispiel [6]. Diese sind die sogenannte retardierte, avancierte oder kausale Greensche Funktion ($\Theta(x)$ bezeichnet hier die Heaviside-Sprungfunktion). In der Definition besteht die Freiheit, sich für $\eta = -1$, die der Kommutatorvariante in Gleichung (3.7) entspricht, oder für $\eta = +1$, die der Antikommutatorvariante entspricht, zu entscheiden. Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, dass \hat{T}_η der sogenannte Wicksche-Zeitordnungsoperator ist, der durch

$$\hat{T}_\eta = \Theta(t-t')\hat{A}(t)\hat{B}(t') + \eta\Theta(t'-t)\hat{B}(t')\hat{A}(t), \tag{3.8}$$

definiert ist. In der Praxis der RGM hat sich die Verwendung der retardierten Greenschen Funktionen durchgesetzt, die im Folgenden Ausgangspunkt der weiteren Betrachtungen sein sollen. Ebenso wird in den weiteren Ausführungen $\eta = -1$ gewählt. Die Operatoren in Heisenberg-Darstellung gehorchen der Gleichung $i\partial_t \hat{A}(t) = [\hat{A}(t), \hat{H}]_-$, in der ersichtlich ist, dass der Hamiltonian die Dynamik festlegt. Damit folgt für die wichtige Bewegungsgleichung der Greenschen Funktion

$$i\partial_t G^r(t, t') = i\partial_t \langle\langle \hat{A}(t); \hat{B}(t') \rangle\rangle^r = \delta(t-t')\langle[\hat{A}(t), \hat{B}(t')]_-\rangle + \langle\langle [\hat{A}(t), \hat{H}]_-; \hat{B}(t') \rangle\rangle^r. \tag{3.9}$$

Mit einer zeitlichen Fourier-Transformation $G^r(t, t') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega G^r(\omega) e^{-i\omega(t-t')}$ folgt die Darstellung der Bewegungsgleichung im Frequenzraum

$$\omega \langle\langle \hat{A}; \hat{B} \rangle\rangle_\omega^r = \langle[\hat{A}, \hat{B}]_-\rangle + \langle\langle [\hat{A}, \hat{H}]_-; \hat{B} \rangle\rangle_\omega^r. \tag{3.10}$$

Nun werden die Operatoren entsprechend des in diesem Abschnitt der Arbeit untersuchten Modells durch Spin-Operatoren ersetzt. Zunächst sei noch einmal darauf hingewiesen, dass die Spins im Heisenberg-Modell auf Punkten \mathbf{R} des Gitters lokalisiert sind. Es besteht nun die Möglichkeit, entweder die mit der longitudinalen Suszeptibilität verknüpften Greenschen Funktionen $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{R}}^z; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle\rangle$, oder die Greenschen Funktionen $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{R}}^+; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^- \rangle\rangle$, die mit einer transversalen Suszeptibilität verknüpft sind, zu wählen. Es ist klar, dass der Informationsgehalt durch die Rotationsinvarianz des Hamiltonians auf jeden Fall durch das Bestimmen lediglich einer der beiden Funktionen keiner Einschränkung unterliegt. Die Herleitung der wesentlichen für die RGM benötigten Gleichungen über die Greensche Funktionen des Typs $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{R}}^z; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle\rangle$ ist kompakter, weswegen sich im weiteren Verlauf für

diese entschieden wird. Die Bewegungsgleichung hat nun die folgende Form

$$\begin{aligned} \omega \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{R}}^z; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle \rangle_{\omega} &= \langle [\hat{S}_{\mathbf{R}}^z, \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z]_{-} \rangle + \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{R}}^z, \hat{H}]_{-}; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle \rangle_{\omega}, \\ \omega \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{R}}^z, \hat{H}]_{-}; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle \rangle_{\omega} &= \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{R}}^z, \hat{H}]_{-}, \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle \rangle_{-} + \langle \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{R}}^z, \hat{H}]_{-}, \hat{H} \rangle \rangle_{-}; \hat{S}_{\mathbf{R}'}^z \rangle \rangle_{\omega}. \end{aligned} \quad (3.11)$$

Es ist ersichtlich, dass das Aufstellen der Bewegungsgleichung eine neue sogenannte höhere Greensche Funktion erzeugt. Für diese lässt sich abermals eine Bewegungsgleichung aufstellen, die ihrerseits eine höhere Greensche Funktion enthält. Diese Gleichungshierarchie ist typisch für ein Vielteilchenproblem und kann im Allgemeinen nur dann unterbrochen werden, wenn Approximationen vorgenommen werden. Je nachdem in welcher Stufe n die Entkopplung vorgenommen wird, spricht man von Entkopplung n -ter Ordnung/Stufe. Wird die Bewegungsgleichung in der ersten Stufe entkoppelt, so entspricht dies der sogenannten Random-Phase-Approximation [6, 64, 65], siehe hierzu Anhang B.³ Die Entkopplung in erster Ordnung erweist sich jedoch ohne zusätzliche Annahmen nur dann als nützlich, wenn das System LRO aufweist ($T \leq T_c$), da die Greensche Funktion proportional zur jeweiligen (Untergitter)-Magnetisierung ist. Eine Folge ist, dass auch das Spinwellenspektrum proportional zum magnetischen Ordnungsparameter wird. Dennoch lassen sich für viele Modelle experimentell bestätigte Vorhersagen bezüglich der temperaturabhängigen Magnetisierung treffen. Für den dreidimensionalen FM beispielsweise ergibt sich im Limes tiefer Temperaturen das korrekte Blochsche $T^{3/2}$ -Gesetz der totalen Magnetisierung, das durch einen Korrekturterm $\propto T^{5/2}$ mit den Resultaten genauerer Theorien übereinstimmt [6]. Durch das Entkoppeln in zweiter Stufe kann davon ausgegangen werden, dass die Lösungen ein detaillierteres Bild der Physik liefern. Beispielsweise können auch die SRO und das kritische Verhalten oberhalb einer kritischen Temperatur ($T > T_c$) adäquat beschrieben werden. Eine grundlegende Annahme, die bei dem Approximationsschema der RGM gemacht wird, ist, dass der thermodynamische Erwartungswert des Operators $\hat{S}_{m\alpha}^z$ an jedem Gitterpunkt verschwindet, also $\langle \hat{S}_{m\alpha}^z \rangle = 0$ gilt. Die Überführung in ein geschlossenes Gleichungssystem erfolgt im Impulsraum nach einer räumlichen Fourier-Transformation

$$\begin{aligned} \hat{S}_{m\alpha}^z &= \frac{1}{\sqrt{\mathcal{N}}} \sum_{\mathbf{q}} \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_{m\alpha}), \\ \hat{S}_{m\alpha}^{\pm} &= \frac{1}{\sqrt{\mathcal{N}}} \sum_{\mathbf{q}} \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^{\pm} \exp(\mp i\mathbf{q}\mathbf{R}_{m\alpha}). \end{aligned} \quad (3.12)$$

In erster Ordnung lautet die Bewegungsgleichung nun

$$\omega \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega} = \langle [\hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z, \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z]_{-} \rangle + \langle \langle [\hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z, \hat{H}]_{-}; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega}, \quad (3.13)$$

³Diese wird im Rahmen eines Heisenberg-Modells auch Tyablikov-Entkopplung genannt.

wobei der erste Erwartungswert aufgrund der fundamentalen Vertauschungsrelation der Spinkomponenten verschwindet

$$\begin{aligned} \langle [\hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z, \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z]_- \rangle &= \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{m,n} \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta})) \underbrace{\langle [\hat{S}_{m\alpha}^z, \hat{S}_{n\beta}^z]_- \rangle}_{=0} \\ &= 0. \end{aligned}$$

Der Satz an Greenschen Funktionen, den es zu bestimmen gilt, ist als Matrix darstellbar $G_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{zz}(\omega) = \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega}$. Für die verbleibende Greensche Funktion auf der rechten Seite von Gleichung (3.13) wird erneut die Bewegungsgleichung angewandt und man erhält

$$\omega \langle \langle i\dot{\hat{S}}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega} = \langle [i\dot{\hat{S}}_{\mathbf{q}\alpha}^z, \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z]_- \rangle - \langle \langle \ddot{\hat{S}}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega}. \quad (3.14)$$

Es gilt nun, die entsprechenden Kommutatoren auszuwerten. Für den ersten Teil dieser Gleichung benötigt man zunächst den Ausdruck für $i\dot{\hat{S}}_{l\gamma}^z = [\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{H}]_-$ und man erhält

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{H}]_- &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} [\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^z + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-]_- \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} [\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-]_- \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} \left(\underbrace{[\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{S}_{m\alpha}^+]_-}_{\delta_{l\gamma, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^+} \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{m\alpha}^+ \underbrace{[\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{S}_{n\beta}^-]_-}_{-\delta_{l\gamma, n\beta} \hat{S}_{n\beta}^-} \right) \\ &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{l\gamma, n\beta} (\hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^-). \end{aligned}$$

Danach müssen für die Gleichung

$$[[\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{H}]_-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- = \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{l\gamma, n\beta} \left([\hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- - [\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- \right),$$

zwei weitere Kommutatoren ausgewertet werden. Für diese folgt

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- &= \hat{S}_{l\gamma}^+ \underbrace{[\hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_-}_{\delta_{n\beta, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^-} + \underbrace{[\hat{S}_{l\gamma}^+, \hat{S}_{m\alpha}^z]_-}_{-\delta_{l\gamma, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^+} \hat{S}_{n\beta}^- \\ &= \delta_{n\beta, m\alpha} \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \delta_{l\gamma, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- &= \hat{S}_{n\beta}^+ \underbrace{[\hat{S}_{l\gamma}^-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_-}_{\delta_{l\gamma, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^-} + \underbrace{[\hat{S}_{n\beta}^+, \hat{S}_{m\alpha}^z]_-}_{-\delta_{n\beta, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^+} \hat{S}_{l\gamma}^- \\ &= \delta_{l\gamma, m\alpha} \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \delta_{n\beta, m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^-. \end{aligned}$$

Somit verbleibt der Ausdruck

$$\begin{aligned} [[\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{H}]_-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{l\gamma, n\beta} \delta_{n\beta, m\alpha} \left(\hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^- \right) \\ &\quad - \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{l\gamma, n\beta} \delta_{l\gamma, m\alpha} \left(\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \right), \\ &= J_{m\alpha, l\gamma} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^- - \delta_{l\gamma, m\alpha} \sum_{n\beta} J_{m\alpha, n\beta} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \end{aligned}$$

dessen thermodynamischer Erwartungswert

$$\langle [[\hat{S}_{l\gamma}^z, \hat{H}]_-, \hat{S}_{m\alpha}^z]_- \rangle = J_{m\alpha, l\gamma} c_{m\alpha, l\gamma} - \delta_{l\gamma, m\alpha} \sum_{n\beta} J_{m\alpha, n\beta} c_{m\alpha, n\beta},$$

mit $c_{m\alpha, n\beta} = \langle \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \rangle$ entspricht. An dieser Stelle wurde impliziert, dass die Rotationsinvarianz des Heisenberg-Modells die Äquivalenz aller Mittelwerte von $\hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^z$, $\hat{S}_{m\alpha}^y \hat{S}_{n\beta}^y$ und $\hat{S}_{m\alpha}^x \hat{S}_{n\beta}^x$ der Spin-Spin-Korrelationsfunktionen fordern lässt. Demzufolge gilt also

$$\langle \hat{S}_{m\alpha} \hat{S}_{n\beta} \rangle = 3 \langle \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^z \rangle = 3 c_{m\alpha, n\beta}^{zz} = \frac{3}{2} c_{m\alpha, n\beta}. \quad (3.15)$$

Nach der räumlichen Fourier-Transformation folgt für den Ausdruck

$$\begin{aligned} \langle [i\dot{\hat{S}}_{q\alpha}^z, \hat{S}_{-q\beta}^z]_- \rangle &= \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{m,n} \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta})) \left(J_{n\beta, m\alpha} c_{n\beta, m\alpha} - \delta_{n\beta, m\alpha} \sum_{l\gamma} J_{n\beta, l\gamma} c_{n\beta, l\gamma} \right) \\ &= \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{m,n} \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}) J_{m\alpha, n\beta} c_{m\alpha, n\beta} - \frac{\delta_{\alpha, \beta}}{\mathcal{N}} \sum_{m, l\gamma} J_{m\alpha, l\gamma} c_{m\alpha, l\gamma}. \end{aligned}$$

An dieser Stelle wurde Gebrauch von $\delta_{n\beta, m\alpha} = \delta_{\beta, \alpha} \delta_{n, m}$ gemacht und der Relativvektor $\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta} = \mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{n\beta}$ benutzt. Dies liefert die für die RGM wichtige Definition der Momentenmatrix über das Element

$$M_{q\alpha\beta}^{zz} = \langle [i\dot{\hat{S}}_{q\alpha}^z, \hat{S}_{-q\beta}^z]_- \rangle. \quad (3.16)$$

Für ein konkretes Modell muss diese $N \times N$ -Matrix aufgestellt und das Eigensystem bestimmt werden. Im Folgenden werden die N Eigenvektoren und Eigenwerte durch die

Notation

$$M_{\mathbf{q}}^{zz}|j\mathbf{q}\rangle = m_j^{zz}|j\mathbf{q}\rangle, \quad j = 1, 2, \dots, N,$$

gekennzeichnet. Die Momentenmatrix besteht aus Kombinationen der Kopplungskonstanten $J_{m\alpha, n\beta}$ des jeweiligen Heisenberg-Modells und deren korrespondierenden Spin-Spin-Korrelationsfunktionen $c_{m\alpha, n\beta}$. Es besteht auch die Möglichkeit, eine Momentenmatrix $M_{\mathbf{q}}^{+-}$ bezüglich der Greenschen Funktion $G_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega)$ aufzustellen, die aufgrund der Rotationsymmetrie mit $2M_{\mathbf{q}}^{zz} = M_{\mathbf{q}}^{+-} = M_{\mathbf{q}}$ anzugeben ist. Der zweite Term von Gleichung (3.13) erfordert die Auswertung von

$$\begin{aligned} -\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z &= [[\hat{S}_{m\alpha}^z, \hat{H}]_-, \hat{H}]_- \\ &= \frac{1}{4} \sum_{n\beta, l\gamma, k\delta} J_{m\alpha, n\beta} J_{l\gamma, k\delta} [\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^z + \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^-]_- \\ &\quad - \frac{1}{4} \sum_{n\beta, l\gamma, k\delta} J_{m\alpha, n\beta} J_{l\gamma, k\delta} [\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^z + \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^-]_-. \end{aligned}$$

Mit

$$\begin{aligned} [AB, CD]_- &= A[B, C]_- D + AC[B, D]_- \\ &\quad + [A, C]_- DB + C[A, D]_- B, \end{aligned}$$

werden die Kommutatorrelationen

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^z]_- &= \hat{S}_{m\alpha}^+ [\hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z]_- \hat{S}_{k\delta}^z + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z [\hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{k\delta}^z]_- \\ &\quad + [\hat{S}_{m\alpha}^+, \hat{S}_{l\gamma}^z]_- \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z [\hat{S}_{m\alpha}^+, \hat{S}_{k\delta}^z]_- \hat{S}_{n\beta}^- \\ &= \delta_{n\beta, l\gamma} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^- \hat{S}_{k\delta}^z + \delta_{n\beta, k\delta} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^- \\ &\quad - \delta_{m\alpha, l\gamma} \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{n\beta}^- - \delta_{m\alpha, k\delta} \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^-]_- &= \hat{S}_{m\alpha}^+ [\hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{l\gamma}^+]_- \hat{S}_{k\delta}^- + \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^+ [\hat{S}_{n\beta}^-, \hat{S}_{k\delta}^-]_- \\ &\quad + [\hat{S}_{m\alpha}^+, \hat{S}_{l\gamma}^+]_- \hat{S}_{k\delta}^- \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{l\gamma}^+ [\hat{S}_{m\alpha}^+, \hat{S}_{k\delta}^-]_- \hat{S}_{n\beta}^- \\ &= -2\delta_{n\beta, l\gamma} \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^- + 2\delta_{m\alpha, k\delta} \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{n\beta}^-, \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} [\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^z]_- &= \hat{S}_{n\beta}^+ [\hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{l\gamma}^z]_- \hat{S}_{k\delta}^z + \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z [\hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{k\delta}^z]_- \\ &\quad + [\hat{S}_{n\beta}^+, \hat{S}_{l\gamma}^z]_- \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{m\alpha}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z [\hat{S}_{n\beta}^+, \hat{S}_{k\delta}^z]_- \hat{S}_{m\alpha}^- \\ &= \delta_{m\alpha, l\gamma} \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^- \hat{S}_{k\delta}^z + \delta_{m\alpha, k\delta} \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^- \\ &\quad - \delta_{n\beta, l\gamma} \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{m\alpha}^- - \delta_{n\beta, k\delta} \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^-, \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}
 [\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^-]_- &= \hat{S}_{n\beta}^+ [\hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{l\gamma}^+]_- \hat{S}_{k\delta}^- + \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^+ [\hat{S}_{m\alpha}^-, \hat{S}_{k\delta}^-]_- \\
 &+ [\hat{S}_{n\beta}^+, \hat{S}_{l\gamma}^+]_- \hat{S}_{k\delta}^- \hat{S}_{m\alpha}^- + \hat{S}_{l\gamma}^+ [\hat{S}_{n\beta}^+, \hat{S}_{k\delta}^-]_- \hat{S}_{m\alpha}^- \\
 &= -2\delta_{m\alpha, l\gamma} \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{k\delta}^- + 2\delta_{n\beta, k\delta} \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{k\delta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-,
 \end{aligned}$$

ausgewertet. Durch Einsetzen erhält man schließlich

$$\begin{aligned}
 -\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma} J_{m\alpha, n\beta} J_{n\beta, l\gamma} (\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \hat{S}_{l\gamma}^z - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{l\gamma}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \\
 &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma} J_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, l\gamma} (\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{l\gamma}^- - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{m\alpha}^-).
 \end{aligned}$$

An dieser Stelle wurde explizit genutzt, dass $J_{m\alpha, m\alpha} \equiv 0$ gilt. Außerdem wurden die Summen bezüglich der auftretenden Kronecker-Delta Symbole ausgewertet. Die verbliebenen Indizes wurden so umbenannt, dass die Terme weiter zusammengefasst werden können. Nun werden Terme gleicher Summationsindizes (die auf einen Faktor $J_{m\alpha, n\beta}^2$ in der Summe führen) aus den beiden Summen abgespalten. Dies führt zu folgendem Ausdruck

$$\begin{aligned}
 -\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{m\alpha, n\beta}^2 (\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \hat{S}_{m\alpha}^z - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^- + \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \\
 &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{m\alpha, n\beta}^2 (\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \quad (3.17) \\
 &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma \neq m\alpha} J_{m\alpha, n\beta} J_{n\beta, l\gamma} (\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \hat{S}_{l\gamma}^z - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{l\gamma}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \\
 &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma \neq n\beta} J_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, l\gamma} (\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{l\gamma}^- - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{m\alpha}^-).
 \end{aligned}$$

Der Operator $\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z$ besteht demnach aus verschiedenen Kombinationen von drei Spin-Operatoren \hat{S}_j^κ (mit $\kappa = +, -, z$). Damit Gleichung (3.13) in ein geschlossenes Gleichungssystem überführt werden kann, muss eine Näherung durchgeführt werden. Für $S = 1/2$ Systeme gelten die Operator-Identitäten

$$\begin{aligned}
 (\hat{S}_{m\alpha}^z)^2 &= \frac{1}{4}, \\
 (\hat{S}_{m\alpha}^-)^2 &= (\hat{S}_{m\alpha}^+)^2 = 0, \\
 \hat{S}_{m\alpha}^z &= \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \frac{1}{2},
 \end{aligned} \quad (3.18)$$

mit denen Gleichung (3.17), unter Berücksichtigung der für alle Spinquantenzahlen gültigen Operator-Identität

$$\left(\hat{\mathbf{S}}_{m\alpha}\right)^2 = \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \hat{S}_{m\alpha}^z + (\hat{S}_{m\alpha}^z)^2, \quad (3.19)$$

die Form

$$\begin{aligned} -\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{m\alpha,n\beta}^2 (\hat{S}_{m\alpha}^z - \hat{S}_{n\beta}^z) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma \neq m\alpha} J_{m\alpha,n\beta} J_{n\beta,l\gamma} (\hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- \hat{S}_{l\gamma}^z - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{l\gamma}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^- - \hat{S}_{l\gamma}^+ \hat{S}_{n\beta}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{n\beta, l\gamma \neq n\beta} J_{m\alpha,n\beta} J_{m\alpha,l\gamma} (\hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{m\alpha}^z \hat{S}_{l\gamma}^- - \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{n\beta}^- + \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{m\alpha}^+ \hat{S}_{n\beta}^- - \hat{S}_{n\beta}^+ \hat{S}_{l\gamma}^z \hat{S}_{m\alpha}^-) \end{aligned} \quad (3.20)$$

annimmt. Das an dieser Stelle vorgestellte Entkopplungsschema schlägt vor, die längsten Operator-Produkte dergestalt zu nähern, dass sich diese als Kombination von einfachen Zwei-Spin-Korrelationsfunktionen und einem verbleibenden Spin-Operator darstellen lassen. Dieses Verfahren ist der wesentliche Teil der Approximation, den die RGM macht. Die Vorschrift lautet

$$\hat{S}_i^\delta \hat{S}_j^\beta \hat{S}_k^\gamma \xrightarrow{i \neq j \neq k \neq i} \alpha_{i,j}^{\delta,\beta} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_j^\beta \rangle \hat{S}_k^\gamma + \alpha_{i,k}^{\delta,\gamma} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_j^\beta + \alpha_{j,k}^{\beta,\gamma} \langle \hat{S}_j^\beta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_i^\delta, \quad (3.21)$$

wobei an dieser Stelle $\{\delta, \beta, \gamma\} = \{+, -, z\}$ und $\{i, j, k\} = \{m\alpha, n\beta, l\gamma\}$ bezeichnen. Es sollte hier erwähnt werden, dass durch die Abspaltung nur irreduzible Kombinationen von Spin-Operatoren auftreten, die sich hinsichtlich des Gitterpunktes, an dem sie wirken, unterscheiden. Es ist klar, dass die Ersetzung mit einem Fehler einhergeht, weswegen eine Klasse von Korrektur-Größen, die sogenannten Vertexparameter $\alpha_{i,j}^{\delta,\beta}$, in das Schema eingeführt wird. Durch diese Parameter können Bedingungen eingeführt werden, die die physikalische Lösung gewährleisten sollen. Da Erwartungswerte der Form $\langle \hat{S}_i^+ \hat{S}_j^z \rangle = \langle \hat{S}_i^- \hat{S}_j^z \rangle$ wegen der Kommutatorrelation $[\hat{S}^z, \hat{H}]_- = 0$, wobei $\hat{S}^z = \sum_{m\alpha} \hat{S}_{m\alpha}^z$, verschwinden, ergibt sich nach Anwendung der Vorschrift in Gleichung (3.21) auf (3.20)

$$\begin{aligned} -\ddot{\hat{S}}_{m\alpha}^z &= \frac{1}{2} \sum_{n\beta} J_{m\alpha,n\beta}^2 (\hat{S}_{m\alpha}^z - \hat{S}_{n\beta}^z) \\ &+ \sum_{n\beta, l\gamma \neq m\alpha} J_{m\alpha,n\beta} J_{n\beta,l\gamma} (\alpha_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} \hat{S}_{l\gamma}^z - \alpha_{m\alpha,l\gamma} c_{m\alpha,l\gamma} \hat{S}_{n\beta}^z) \\ &+ \sum_{n\beta, l\gamma \neq n\beta} J_{m\alpha,n\beta} J_{m\alpha,l\gamma} (\alpha_{n\beta,l\gamma} c_{n\beta,l\gamma} \hat{S}_{m\alpha}^z - \alpha_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} \hat{S}_{l\gamma}^z). \end{aligned} \quad (3.22)$$

Die Erwartungshaltung an die Vertexparameter ist, dass sich diese untereinander ähnlich verhalten wie die jeweiligen zu diesen in Beziehung stehenden Korrelationsfunktionen

$c_{m\alpha,n\beta}$. Die Annahme, dass $\alpha_{n\beta,l\gamma}^{+-} = \alpha_{n\beta,l\gamma}^{zz} = \alpha_{n\beta,l\gamma}$ ($\forall\{n\beta, l\gamma\}$) gilt, wird demnach durch die Rotationssymmetrie begründet. Ohnehin zeigt sich in der Praxis, dass nur wenige Vertexparameter voneinander unterschieden werden können, müssen doch Gleichungen im gesamten Temperaturbereich zu deren Bestimmung bereitgestellt werden. Es zeigt sich, dass die Vertexparameter für den voll polarisierten ferromagnetischen kollinearen Zustand gegen den Wert $\alpha_{n\beta,l\gamma}^{FM}(T=0) = 3/2$ ($\forall\{n\beta, l\gamma\}$) konvergieren. Ebenso nehmen alle Vertexparameter im Hochtemperatur-Limes den Wert $\alpha_{n\beta,l\gamma}(T \rightarrow \infty) = 1$ ($\forall\{n\beta, l\gamma\}$) an. Da die Vertexparameter als Quantenkorrektur der Entkopplung verstanden werden können, ist dieser Wert leicht als Indikator der durch die Näherung korrekten Beschreibung zu interpretieren. Bei hohen Temperaturen verschwindet der Einfluss der Wechselwirkungen und das Heisenberg-System konvergiert gegen den Limes isolierter Spins, zu deren Beschreibung die Entkopplungsprozedur keiner Korrektur über die Vertexparameter bedarf. Im Rahmen dieser Arbeit werden mithilfe der RGM ebenfalls Heisenberg-Systeme mit $S \geq 1$ untersucht, weswegen ein weiteres Schema der Form

$$\begin{aligned} \hat{S}_i^\delta \hat{S}_j^\beta \hat{S}_k^\gamma &\xrightarrow{i \neq j \neq k \neq i} \alpha_{i,j}^{\delta,\beta} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_j^\beta \rangle \hat{S}_k^\gamma + \alpha_{i,k}^{\delta,\gamma} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_j^\beta + \alpha_{j,k}^{\beta,\gamma} \langle \hat{S}_j^\beta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_i^\delta, \\ \hat{S}_i^\delta \hat{S}_i^\beta \hat{S}_k^\gamma &\xrightarrow{i \neq k} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_i^\beta \rangle \hat{S}_k^\gamma + \lambda_{i,k}^{\delta,\gamma} \langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_i^\beta + \lambda_{i,k}^{\beta,\gamma} \langle \hat{S}_i^\beta \hat{S}_k^\gamma \rangle \hat{S}_i^\delta, \end{aligned} \quad (3.23)$$

vorgelegt wird. Ausgehend von Gleichung (3.17) werden nun auch Operatorkombinationen, bei denen zwei Operatoren am gleichen Ort wirken, im Entkopplungsschema berücksichtigt. Dies ist der Grund für das Einführen einer weiteren Klasse von Vertexparametern für die ebenfalls, wie oben diskutiert, $\lambda_{n\beta,l\gamma}^{+-} = \lambda_{n\beta,l\gamma}^{zz} = \lambda_{n\beta,l\gamma}$ ($\forall\{n\beta, l\gamma\}$) gilt. Lediglich dem Term mit dem Erwartungswert $\langle \hat{S}_i^\delta \hat{S}_i^\beta \rangle$ wird kein weiterer Vertexparameter zugeordnet, da sich dieser, sofern er nicht identisch verschwindet, aus Gleichung (3.19) ergibt. Schlussendlich ergibt sich aus Gleichung (3.17) über eine räumliche Fourier-

Transformation nach Gleichung (3.12)

$$\begin{aligned}
 -\hat{\ddot{S}}_{\mathbf{q}\alpha}^z &= \sum_{n\beta} J_{m\alpha,n\beta}^2 (\lambda_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} + \frac{2}{3} S(S+1)) \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \\
 &- \sum_{n\beta} J_{m\alpha,n\beta}^2 (\lambda_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} + \frac{2}{3} S(S+1)) \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) \hat{S}_{\mathbf{q}\beta}^z \\
 &+ \sum_{n\beta, l\gamma \neq m\alpha} J_{m\alpha,n\beta} J_{n\beta, l\gamma} \alpha_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, l\gamma}) \hat{S}_{\mathbf{q}\gamma}^z \\
 &- \sum_{n\beta, l\gamma \neq m\alpha} J_{m\alpha,n\beta} J_{n\beta, l\gamma} \alpha_{m\alpha, l\gamma} c_{m\alpha, l\gamma} \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}) \hat{S}_{\mathbf{q}\beta}^z \\
 &+ \sum_{n\beta, l\gamma \neq n\beta} J_{m\alpha,n\beta} J_{m\alpha, l\gamma} \alpha_{n\beta, l\gamma} c_{n\beta, l\gamma} \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \\
 &- \sum_{n\beta, l\gamma \neq n\beta} J_{m\alpha,n\beta} J_{m\alpha, l\gamma} \alpha_{m\alpha, n\beta} c_{m\alpha, n\beta} \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, l\gamma}) \hat{S}_{\mathbf{q}\gamma}^z, \\
 &= \sum_{\gamma} F_{\mathbf{q}\alpha\gamma}^{zz} \hat{S}_{\mathbf{q}\gamma}^z.
 \end{aligned} \tag{3.24}$$

Vergleicht man mit der Entkopplung für Spin-1/2 Systeme, so stellt man fest, dass diese konsistent ineinander übergehen, wenn gilt: $S = 1/2 \curvearrowright \lambda_{m\alpha, n\beta} \equiv 0 \quad \forall \{m\alpha, n\beta\}$. Der Hochtemperatur-Limes ergibt sich hier zu $\lambda_{m\alpha, n\beta}(\infty) = 1 - 3[4S(S+1)]^{-1} \quad \forall \{m\alpha, n\beta\}$. Man kann zeigen, dass die Übereinstimmung der wesentlichen Messgrößen mit der HTE in der niedrigsten Ordnung durch die angegebene Wahl gewährleistet ist.⁴ Die Entwicklung wurde beispielsweise in [51] vorgenommen. Dabei wurde die HTE einer Operatoridentität genutzt, deren Gültigkeit modellunabhängig Bestand hat. Wie man erkennen kann, lässt die Vorschrift nach Gleichung (3.23) die Darstellung von $\hat{\ddot{S}}_{\mathbf{q}}$ als lineares Gleichungssystem mit der sogenannten Frequenzmatrix $F_{\mathbf{q}}^{zz}$ zu. Diese ist ebenso wie die bereits vorgestellte Momentenmatrix von fundamentaler Bedeutung für die Anwendung der RGM. Eine notwendige Bedingung für die Praxis ist, dass Momentenmatrix und Frequenzmatrix kommutieren, also das gleiche Eigenvektorsystem besitzen

$$\begin{aligned}
 [F_{\mathbf{q}}, M_{\mathbf{q}}]_- &= 0, \\
 \curvearrowright F_{\mathbf{q}}^{zz} |j\mathbf{q}\rangle &= (\omega_{j\mathbf{q}}^{zz})^2 |j\mathbf{q}\rangle, \quad j = 1, 2, \dots, N.
 \end{aligned} \tag{3.25}$$

Die Eigenwerte können als die Quadrate der N Äste der Spinwellen-Dispersionsrelationen identifiziert werden. Ebenso kann, wie auch schon bei der Einführung der Momentenmatrix weiter oben diskutiert, eine Frequenzmatrix $F_{\mathbf{q}}^{+-}$ bezüglich der Greenschen Funktion $G_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega)$ aufgestellt werden. Diese ist wegen der Rotationssymmetrie zu $F_{\mathbf{q}}^{zz}$ äquivalent und es kann konstatiert werden: $F_{\mathbf{q}}^{zz} = F_{\mathbf{q}}^{+-} = F_{\mathbf{q}}$. Demzufolge sind auch die Eigenwerte, respektive die Dispersionsrelationen der Spinwellen, identisch: $\curvearrowright \omega_{j\mathbf{q}}^{zz} = \omega_{j\mathbf{q}}^{+-} = \omega_{j\mathbf{q}} \quad \forall j$.

⁴Das Curiesche Gesetz wird innerhalb der RGM sogar intrinsisch und unabhängig von der Wahl der Parameter erfüllt.

Nun ist die Greensche Funktion mit den Gleichungen (3.13) und (3.14) in kompakter Form, mithilfe der Definitionen (3.16) und (3.24), implizit bestimmt

$$\begin{aligned}
 \omega^2 \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_\omega &= M_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{zz} + \sum_{\gamma} F_{\mathbf{q}\alpha\gamma}^{zz} \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\gamma}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_\omega, \\
 \curvearrowright \sum_{\gamma} (F_{\mathbf{q}\alpha\gamma}^{zz} - \omega^2 \delta_{\alpha,\gamma}) \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\gamma}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_\omega &= -M_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{zz}, \\
 (F_{\mathbf{q}}^{zz} - \omega^2 \mathbb{I}) G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) &= -M_{\mathbf{q}}^{zz},
 \end{aligned} \tag{3.26}$$

wobei \mathbb{I} der Einheitsmatrix entspricht. Die Greensche Funktion hat ebenfalls das gleiche Eigenvektorsystem

$$G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) |j\mathbf{q}\rangle = g_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) |j\mathbf{q}\rangle, \quad j = 1, 2, \dots, N,$$

weswegen sich die N Eigenwerte $g_{j\mathbf{q}}^{zz}$ zu

$$\begin{aligned}
 \langle j\mathbf{q} | (F_{\mathbf{q}}^{zz} - \omega^2 \mathbb{I}) G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) |j\mathbf{q}\rangle &= -\langle j\mathbf{q} | M_{\mathbf{q}}^{zz} |j\mathbf{q}\rangle, \\
 \curvearrowright g_{j\mathbf{q}}^{zz}(\omega) &= \frac{1}{2} \frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega^2 - \omega_{j\mathbf{q}}^2},
 \end{aligned}$$

ergeben. Aus Symmetriegründen gilt natürlich auch hier $2g_{j\mathbf{q}}^{zz}(\omega) = g_{j\mathbf{q}}^{+-}(\omega) = g_{j\mathbf{q}}(\omega) \forall j$ (ebenso $2G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) = G_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega) = G_{\mathbf{q}}(\omega)$). In Spektraldarstellung folgt die nützliche Schreibweise

$$G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) = \sum_j g_{j\mathbf{q}}^{zz}(\omega) |j\mathbf{q}\rangle \langle j\mathbf{q}|. \tag{3.27}$$

Ein Element der Matrix der Greenschen Funktionen kann demnach mit

$$\begin{aligned}
 \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_\omega &= \langle \alpha | G_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) | \beta \rangle \\
 &= \sum_j g_{j\mathbf{q}}^{zz}(\omega) \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle \\
 &= \sum_j \left(\frac{A_{j\mathbf{q}\alpha\beta}}{\omega - \omega_{j\mathbf{q}}} - \frac{B_{j\mathbf{q}\alpha\beta}}{\omega + \omega_{j\mathbf{q}}} \right),
 \end{aligned}$$

angegeben werden, wobei sich die Koeffizienten $A_{j\mathbf{q}\alpha\beta}$ und $B_{j\mathbf{q}\alpha\beta}$ durch eine Partialbruchzerlegung zu

$$A_{j\mathbf{q}\alpha\beta} = B_{j\mathbf{q}\alpha\beta} = \frac{m_{j\mathbf{q}} \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle}{4\omega_{j\mathbf{q}}},$$

ergeben. Es sei an dieser Stelle angemerkt, dass die Pole $\omega_{j\mathbf{q}}$ der Greenschen Funktionen $\langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_\omega$ eine Interpretation als Anregungsenergien der Spinwellen des Systems erlauben. Nun können die Korrelationsfunktionen im Impulsraum über das Spektraltheo-

rem⁵ mittels der Dirac-Formel $\lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \frac{f(x)}{x \pm i\varepsilon} = \hat{P} \frac{f(x)}{x} \mp i\pi f(x)\delta(x)$, wobei \hat{P} den Hauptwert der darauf angewandten Funktion liefert, berechnet werden

$$\langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle = \frac{i}{2\pi} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{\langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega+i\varepsilon} - \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega-i\varepsilon}}{\exp(\beta\omega) - 1}, \quad (3.28)$$

mit $\exp(\beta\omega) = \exp(\omega/T)$. Schließlich ergibt sich

$$\begin{aligned} \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle &= \frac{i}{2\pi} \sum_j A_{j\mathbf{q}\alpha\beta} \lim_{\varepsilon \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{\exp(\beta\omega) - 1} \left\{ \frac{1}{\omega - \omega_{j\mathbf{q}} + \varepsilon} - \frac{1}{\omega - \omega_{j\mathbf{q}} - \varepsilon} \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{\omega + \omega_{j\mathbf{q}} + \varepsilon} + \frac{1}{\omega + \omega_{j\mathbf{q}} - \varepsilon} \right\} \end{aligned} \quad (3.29)$$

und damit

$$\begin{aligned} \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle &= \sum_j A_{j\mathbf{q}\alpha\beta} (1 + 2n(\omega_{j\mathbf{q}})), \\ &= c_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{zz}, \\ &= \sum_j \frac{m_{j\mathbf{q}}}{4\omega_{j\mathbf{q}}} (1 + 2n(\omega_{j\mathbf{q}})) \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle, \end{aligned} \quad (3.30)$$

wobei $n(\omega_{j\mathbf{q}}) = (\exp(\beta\omega_{j\mathbf{q}}) - 1)^{-1}$ der Bose-Einstein-Verteilungsfunktion entspricht. Es ist klar, dass auch hier gilt $\langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^+ \hat{S}_{\mathbf{q}\beta}^- \rangle = c_{\mathbf{q}\alpha\beta} = c_{\mathbf{q}\beta\alpha} = 2\langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle$.

3.2.1 Gleichungssysteme und physikalische Größen

Oftmals genügen die unbekanntenen Größen der GFM Gleichungen, die selbstkonsistent erfüllt werden müssen. Die unbekanntenen Korrelationsfunktionen im Rahmen der RGM werden über eine inverse Fourier-Transformation bestimmt

$$c_{m\alpha, n\beta} = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}). \quad (3.31)$$

Für jede unbekanntene Größe dieses Typs lässt sich demnach zwanglos eine Bestimmungsgleichung aufstellen. Weitere Gleichungen müssen für die Vertexparameter $\alpha_{i,j}$ und $\lambda_{i,j}$

⁵An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass durch die Wahl der Kommutatorvariante des Spektraltheorems ($\eta = -1$) prinzipiell eine Konstante $C_{zz\mathbf{q}}^{\alpha\beta}$ berücksichtigt werden muss. Diese kann über die Beziehung $C_{zz\mathbf{q}}^{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \lim_{\omega \rightarrow 0} \omega \langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z; \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle \rangle_{\omega}$ bestimmt werden und ist in regulären Fällen gleich Null. Tritt magnetische Fernordnung auf, so zeigen sich „gaplose“ Anregungen im Spektrum und ein Term in $\langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^z \hat{S}_{-\mathbf{q}\beta}^z \rangle$ tritt auf, der mit einem Ordnungsparameter verknüpft ist. Diese Betrachtungen werden in Kapitel 3.2.1 näher ausgeführt.

bereitgestellt werden. Eine zusätzliche Gleichung wird durch die Summenregel gestellt

$$c_{m\alpha, m\alpha} = \frac{2}{3}S(S+1). \quad (3.32)$$

Für $S \geq 1$ hat es sich in der Praxis etabliert, siehe beispielsweise [51, 56, 59], das Verhältnis

$$r_{i,j}(T) = \frac{\lambda_{i,j}(T) - \lambda_{i,j}(\infty)}{\alpha_{i,j}(T) - \alpha_{i,j}(\infty)} = r_{i,j}(0), \quad (3.33)$$

als temperaturunabhängig anzunehmen. Nach diesem Schema können auch weitere Gleichungen gewonnen werden, die beispielsweise das Verhältnis von zwei unterschiedlichen Parametern α_1 und α_2 , oder λ_1 und λ_2 fixieren. Es ist anzumerken, dass die Unterscheidung möglichst vieler Vertexparameter nicht immer zu einer Verbesserung der Resultate führen muss. Dies kann zum einen daran liegen, dass möglicherweise künstlich eingeführte Gleichungen die physikalischen Verhältnisse stören. Andererseits ist es möglich, dass das Einbeziehen von Resultaten anderer Methoden, etwa durch die Grundzustandsenergie, zu keiner physikalischen Lösung des (nichtlinearen) selbstkonsistenten Gleichungssystems führt. Für die sogenannte Minimalversion der RGM werden alle Vertexparameter einer Sorte gleichgesetzt: $\alpha_{i,j} = \alpha$ und $\lambda_{i,j} = \lambda$. In diesem Fall kann durch die Gleichungen (3.31), (3.32) und (3.33) das entsprechende Modell beschrieben und beispielsweise die spezifische Wärme $c_V = \frac{3}{4}\partial_T \left(\sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} c_{m\alpha, n\beta} \right) = \partial_T U$ aus einer einfachen (numerischen) Ableitung bestimmt werden. Magnetische Fernordnung wird innerhalb der RGM durch die Langreichweitigkeit der Korrelationsfunktionen beschrieben. Hierfür wird in der Summe aus Gleichung (3.31) ein Kondensatterm $C_{\mathbf{Q}\alpha\beta}$ abgespalten, da dieser beim Übergang zum unendlich ausgedehnten Festkörper sein Gewicht unter dem Integral verliert. Diese Vorgehensweise, die in ihrer Systematik an die Bose-Einstein-Kondensation erinnert, wurde erstmals von Shimahara und Takada vorgeschlagen [46].⁶ Der Ordnungsparameter $M_{\alpha\beta}$, der die langreichweitige Korrelation zwischen den beteiligten Spins α und β der Elementarzelle angibt, wobei der jeweilige Ordnungsparameter M_δ des Untergitters δ dann mit $M_{\delta\delta}$ anzugeben wäre, ergibt sich dann zu

$$\begin{aligned} M_{\alpha\beta}^2 &= \lim_{|\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}| \rightarrow \infty} |3c_{m\alpha, n\beta}/2| \\ &= \lim_{|\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}| \rightarrow \infty} |3 \sum_{\mathbf{Q}} C_{\mathbf{Q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{Q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta})/2|, \end{aligned} \quad (3.34)$$

⁶Je nach betrachtetem Modell kann es erforderlich sein, mehrere Kondensatterme abzuspalten. Wieviele Kondensatterme abzuspalten sind, hängt natürlich vom Gitter und der Erwartungshaltung bezüglich des magnetischen Ordnungsvektors \mathbf{Q} ab. Ist die Situation bei einem Ferromagneten (FM) eindeutig ($\mathbf{Q} = \mathbf{0}$), so müssen etwa in der gestreiften Phase des Quadratgitters die Ordnungsvektoren $(0, \pi)$ und $(\pi, 0)$ beachtet werden [58].

wobei

$$c_{m\alpha,n\beta} = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{Q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) + \sum_{\mathbf{Q}} C_{\mathbf{Q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{Q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}), \quad (3.35)$$

$$C_{\mathbf{Q}\alpha\beta} = \frac{c_{\mathbf{Q}\alpha\beta}}{\mathcal{N}}, \quad (3.36)$$

entsprechend der Vorbetrachtungen.⁷ Die Beschreibung der Phase mit Kondensat ($T < T_c$) setzt die Kenntnis vom magnetischen Ordnungsvektor \mathbf{Q} voraus. Hierfür bietet es sich an, den Strukturfaktor im paramagnetischen Regime ($T > T_c$) auf entsprechende Maxima zu untersuchen. Der skalare Strukturfaktor im Rahmen der RGM lässt sich nach Kapitel 3.1 angeben zu

$$\begin{aligned} S_{\mathbf{q}} &= \frac{3}{2N\mathcal{N}} \sum_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) \\ &= \frac{3}{2N} \sum_{\alpha,n\beta} c_{0\alpha,n\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}) \\ &= \frac{3}{2N\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q}',\alpha,n\beta} c_{\mathbf{q}'\alpha\beta} \cos((\mathbf{q}' - \mathbf{q})\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}) \\ &= \frac{3}{2N} \sum_{\alpha,\beta} c_{\mathbf{q}\alpha\beta}. \end{aligned} \quad (3.37)$$

Weitere Möglichkeiten, eine Aussage über die magnetische Struktur zu treffen, sind einerseits der Zugang über die klassisch zu erwartende Ordnung, aber auch über die Anwendung alternativer Methoden. Eine davon, die HTE, wird in den nächsten Kapiteln vorgestellt. Die Existenz mindestens eines nichtverschwindenden Kondensatterms $C_{\mathbf{Q}\alpha\beta}$ erfordert die Divergenz der entsprechenden statischen Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{Q}\alpha\beta}^{+-} = \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi_{\mathbf{Q}\alpha\beta}^{+-}(\omega)$ mit

$$\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega) = 2\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{zz}(\omega) = -\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^+; \hat{S}_{\mathbf{q}\beta}^- \rangle\rangle_{\omega}, \quad (3.38)$$

die bis auf das Vorzeichen mit der Greenschen Funktion übereinstimmt. Oft stellt es sich heraus, dass verschiedene Kondensatterme $C_{\mathbf{Q}\alpha\beta}/C_{\mathbf{Q}\gamma\delta}$ in einem einfachen Verhältnis zueinander stehen, das über das Verhältnis der korrespondierenden Suszeptibilitäten $\lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (\mathbf{Q},0)} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega)$ und $\lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (\mathbf{Q},0)} \chi_{\mathbf{q}\gamma\delta}^{+-}(\omega)$ berechnet werden kann.⁸ Als Ausdruck für die verallgemeinerte wellenlängenabhängige Suszeptibilität wird die normierte Summe

$$\chi_{\mathbf{q}} = \frac{1}{2N} \sum_{\alpha,\beta} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}, \quad (3.39)$$

⁷Mit der symbolischen Schreibweise „ $\sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{Q}}$ “ ist hier natürlich der ganze Satz $\{\mathbf{Q}\}$ gemeint.

⁸Die Schreibweise „ $\lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (\mathbf{Q},0)}$ “ soll hier als „ $\lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q}} \lim_{\omega \rightarrow 0}$ “ verstanden werden. Die Reihenfolge ist von Bedeutung, da bei Umkehrung relevante Terme verschwinden können.

genutzt, mit der sich für die experimentell wichtige uniforme Suszeptibilität

$$\begin{aligned}\chi_{\mathbf{0}} &= \frac{1}{2N} \sum_{\alpha,\beta} \lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (\mathbf{0},0)} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega) \\ &= \frac{1}{2N} \sum_{\alpha,\beta,j} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \left[\frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega_{j\mathbf{q}}^2} \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle \right],\end{aligned}\quad (3.40)$$

ergibt. Hierbei wurde der Zusammenhang $\langle \langle \hat{S}_{\mathbf{q}\alpha}^+; \hat{S}_{\mathbf{q}\beta}^- \rangle \rangle_{\omega} = \sum_j \frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega^2 - \omega_{j\mathbf{q}}^2} \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle$ genutzt. Die Bedeutung des Vorfaktors $1/2$ wird im nächsten Kapitel evident und stellt die Vergleichbarkeit mit der häufig genutzten Definition für die Nullfeldsuszeptibilität, die ein infinitesimales Magnetfeld in z -Richtung vorsieht ($\chi_0 = \frac{1}{\mathcal{N}NT} \sum_{m\alpha,n\beta} c_{m\alpha,n\beta}^{zz}$), her. Weitere Gleichungen können, je nach betrachtetem Modell, durch die Forderung von Isotropie gewonnen werden, zum Beispiel durch:

$$\lim_{q_x \rightarrow 0} \sum_{\alpha,\beta} \chi_{(q_x,0,0)\alpha\beta}^{+-} \equiv \lim_{q_y \rightarrow 0} \sum_{\alpha,\beta} \chi_{(0,q_y,0)\alpha\beta}^{+-}, \quad (3.41)$$

siehe hierzu auch Kapitel 3.4.2 (Isotropieforderung). Der Übergang in eine magnetisch ferngeordnete Phase ist durch das Vorhandensein eines kritischen Bereiches gekennzeichnet. In der RGM lässt magnetische LRO das Vorhandensein von „gaplosen“ Anregungen $\omega_{j'\mathbf{Q}} = 0$ ($\sum_{j'} 1 = \Omega$) für ein bestimmtes \mathbf{Q} fordern. Um das Verhältnis von Strukturfaktor und Suszeptibilität in diesem Bereich zu prüfen, wird $n(\omega_{j'\mathbf{Q}})$ um $\omega_{j'\mathbf{Q}} = 0$ für $T \simeq T_c + 0$ entwickelt

$$\begin{aligned}S_{\mathbf{Q}}(T_c + 0) &= \frac{3}{2N} \sum_{\alpha,\beta,j} \frac{m_{j\mathbf{Q}}}{2\omega_{j\mathbf{Q}}} (1 + 2n(\omega_{j\mathbf{Q}})) \langle \alpha | j\mathbf{Q} \rangle \langle j\mathbf{Q} | \beta \rangle \\ &\simeq \frac{3}{2N} \sum_{\alpha,\beta,j'} \frac{m_{j'\mathbf{Q}}}{\omega_{j'\mathbf{Q}}^2} T_c \langle \alpha | j'\mathbf{Q} \rangle \langle j'\mathbf{Q} | \beta \rangle \\ &\simeq 3T_c \chi_{\mathbf{Q}}(T_c + 0), \\ T_c &= \frac{S_{\mathbf{Q}}(T_c + 0)}{3\chi_{\mathbf{Q}}(T_c + 0)}.\end{aligned}\quad (3.42)$$

Der geforderte Zusammenhang aus Kapitel 3.1 wird also im Rahmen der RGM erfüllt.⁹ Es ist an dieser Stelle zu bemerken, dass für das entsprechende Verhältnis von uniformer Suszeptibilität χ_0 und Strukturfaktor am Punkt $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ eine Aufteilung der Summe über

⁹Aus $\chi_{\mathbf{Q}}(T \rightarrow T_c + 0) \rightarrow \infty$ folgt, dass in der Entwicklung für Ω verschwindende Moden die Summe mit einem zu vernachlässigbaren Fehler auf nichtverschwindende Äste ausgeweitet und die Identifizierung mit $\chi_{\mathbf{Q}}$ erfolgen kann.

die akustischen (Index ac) und optischen Äste (Index o) sinnvoll ist

$$S_0 = \underbrace{\frac{3}{2N} \sum_{\alpha, \beta, o} \frac{m_{o0}}{2\omega_{o0}} (1 + 2n(\omega_{o0})) \langle \alpha | o0 \rangle \langle o0 | \beta \rangle}_{0?} + \frac{3T}{2N} \sum_{\alpha, \beta, ac} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \left[\frac{m_{ac\mathbf{q}}}{\omega_{ac\mathbf{q}}^2} \langle \alpha | ac\mathbf{q} \rangle \langle ac\mathbf{q} | \beta \rangle \right] \quad (3.43)$$

$$= 3T\chi_0. \quad (3.44)$$

Der zu fordernde Zusammenhang kann genau dann allgemein erfüllt werden, wenn die erste Teilsumme verschwindet. Vergleicht man mit Gleichung (3.40), in der die Summation über alle Zweige erfolgt, so legt dies die Vermutung nahe, dass die Eigenvektoren der optischen Zweige die Relation $\sum_{\alpha, \beta} \langle \alpha | o0 \rangle \langle o0 | \beta \rangle = 0$ erfüllen.¹⁰ Üblicherweise wird im Rahmen der RGM zur Entwicklung der Korrelationslänge

$$\xi_{\mathbf{Q}} = \sqrt{-\chi_{\mathbf{Q}}^{-1} \frac{\partial^2 \chi_{\mathbf{q}}}{2\partial \mathbf{q}^2} \Big|_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q}}} \quad (3.45)$$

die Suszeptibilität, die in der Umgebung des kritischen Punktes proportional zum skalaren Strukturfaktor wird, in der Umgebung des magnetischen Ordnungsvektors entwickelt (hierzu sei auf die Erläuterungen im Kapitel 3.1 verwiesen), siehe zum Beispiel in [50–52, 54–59].

Für inelastische Streuexperimente ist der dynamische Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}(\omega) = 3S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega) = 3S_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega)/2$ von Bedeutung und zugänglich über das Fluktuations-Dissipations-Theorem

$$S_{\mathbf{q}}(\omega) = \frac{3}{1 - e^{-\beta\omega}} \Im(\chi_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega)), \quad (3.46)$$

mit

$$\chi_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega) = \frac{1}{N} \sum_{\alpha, \beta} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega). \quad (3.47)$$

Mit $\Im(\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega)) = (\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega + i\varepsilon) - \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega - i\varepsilon))/(2i)$, unter Beachtung von (3.29), lässt sich

$$S_{\mathbf{q}}(\omega) = \frac{3\pi}{2N} \frac{1}{1 - e^{-\beta\omega}} \sum_{\alpha, \beta, j} \frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega_{j\mathbf{q}}} \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle [\delta(\omega - \omega_{j\mathbf{q}}) - \delta(\omega + \omega_{j\mathbf{q}})] \quad (3.48)$$

folgern.¹¹ Dieses Ergebnis ist gerade dann für den Vergleich mit dem Experiment qualifiziert, wenn die scharfen Delta-Distributionen aufgeweicht werden. Dies kann beispielsweise

¹⁰Bei der konkreten Betrachtung einiger Modelle zeigt sich, dass $\sum_{\alpha} \langle \alpha | o0 \rangle = 0$ temperaturunabhängig gilt und die Elemente der (unnormierten) Vektoren aus der Menge $\{-1, 1, 0\}$ bestehen.

¹¹Für Gitter mit einer einelementigen Basis ($N = 1$) reduziert sich die genannte Größe auf den Ausdruck $S_{\mathbf{q}}(\omega) = \frac{3\pi}{2} \frac{1}{1 - e^{-\beta\omega}} \frac{m_{\mathbf{q}}}{\omega_{\mathbf{q}}} [\delta(\omega - \omega_{\mathbf{q}}) - \delta(\omega + \omega_{\mathbf{q}})]$.

mit der Darstellung $\delta(x, \varepsilon \approx 0) = \frac{1}{\pi} \frac{\varepsilon}{x^2 + \varepsilon^2}$ umgesetzt werden.

In den nachfolgenden Kapiteln werden die entsprechenden Gleichungen der RGM für unendlich ausgedehnte Gitter numerisch gelöst. Wenn im Folgenden Gleichungen der Form $c_{m\alpha, n\beta} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta})$ angegeben sind, so sind hiermit entsprechend des thermodynamischen Limes die Integrale über die (erste) Brillouin-Zone $c_{m\alpha, n\beta} = \frac{1}{V_{BZ}} \int_{BZ} dV_{BZ} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta})$ auszuwerten.

3.2.2 Eigenschaften im Hochtemperatur-Limes

Im Hochtemperatur-Limes verschwinden die langreichweitigen Korrelationen der Spins, und die Korrekturen über die Vertexparameter haben erwartungsgemäß keinen Einfluss auf die Elemente der Frequenzmatrix $F_{\mathbf{q}\alpha\beta} = \frac{2}{3}S(S+1) \left(\sum_{n\gamma} J_{m\alpha, n\gamma}^2 \delta_{\alpha, \beta} - \sum_n J_{m\alpha, n\beta}^2 \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}) \right)$. Die Dispersionsrelationen sind nunmehr lediglich, nebst den Austauschkopplungen, von der Geometrie des Systems abhängig. Zumindest für den Punkt $\mathbf{q} = \mathbf{0}$ ist $|\psi^{(1)\mathbf{0}}\rangle = 1/\sqrt{N}(1, 1, \dots, 1)^T$ immer Eigenvektor dieser Matrix zum Eigenwert $\omega_{(1)\mathbf{0}}^2 = 0$. Ob dies der einzige Eigenvektor zu diesem Eigenwert ist, ist nicht unmittelbar offensichtlich. Zumindest kann das gesamte Eigenwertspektrum im Falle gleicher Austauschkopplungen $J_{m\alpha, n\beta} = J(1 - \delta_{m\alpha, n\beta})$ mit den entarteten Eigenvektoren $|\psi^{(N \geq j > 1)\mathbf{0}}\rangle = 1/\sqrt{2}(1, 0, 0, \dots, 0, \underbrace{-1}_j, 0, \dots, 0)^T$ der Eigenwerte $\omega_{(N \geq j > 1)\mathbf{0}}^2 = \frac{2}{3}S(S+1)J^2NN$ angegeben werden. Unabhängig davon, dass die Eigenvektoren im Allgemeinen nicht angegeben werden können, ist im Limes $T \rightarrow \infty$ das Zusammenspiel der Eigenwerte und Eigenvektoren dergestalt, dass bekannte paramagnetische Resultate, wie etwa das aus Kapitel 3.1, reproduziert werden müssen. Daran anknüpfend stellt man schnell fest, dass durch $c_{\mathbf{q}\alpha\beta}(T \rightarrow \infty) \sim (1 - \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{0}}) \sum_j \frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega_{j\mathbf{q}}^2} T \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle + \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{0}} \sum_{ac} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \left[\frac{m_{ac\mathbf{q}}}{\omega_{ac\mathbf{q}}^2} \langle \alpha | ac\mathbf{q} \rangle \langle ac\mathbf{q} | \beta \rangle \right] \equiv \sum_j \frac{m_{j\mathbf{q}}}{\omega_{j\mathbf{q}}^2} T \langle \alpha | j\mathbf{q} \rangle \langle j\mathbf{q} | \beta \rangle = T\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}$ das Curie-Gesetz mit

$$\begin{aligned} S_{\mathbf{q}}(T \rightarrow \infty) &= S(S+1) \\ &= \frac{3}{2N} \sum_{\alpha, \beta} c_{\mathbf{q}\alpha\beta}(T \rightarrow \infty), \\ \leadsto \chi_{\mathbf{q}}(T \rightarrow \infty) &\sim \frac{S(S+1)}{3T}, \end{aligned} \quad (3.49)$$

erfüllt ist.

3.2.3 Eigenschaften im Tieftemperatur-Limes (FM)

Der ferromagnetische GS ist gekennzeichnet durch die Parallelität aller Spins $\langle \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle = 3c_{m\alpha, n\beta}/2 = S^2$ ($n\beta \neq m\alpha$). Nebst der im Kapitel 3.2 erwähnten exakten Lösung für die Vertexparameter $\lambda_{m\alpha, n\beta} = 2 - 1/S$, $\alpha_{m\alpha, n\beta} = 3/2$ sind auch die Kondensatterme $C_{\mathbf{Q}\alpha\beta} = C = 2S^2/3$ mit $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ unabhängig von den Indizes α bzw. β . Dies bedeutet für

den Ordnungsparameter, der hier der totalen Magnetisierung entspricht, $M_{\alpha\beta} = M = S$. Für tiefe Temperaturen soll nun eine allgemeine Entwicklung der Magnetisierung und der spezifischen Wärme für (mindestens) dreidimensionale Ferromagneten vorgenommen werden. Aus Gleichung (3.35) und Gleichung (3.32) folgt zunächst

$$c_{m\alpha,n\beta} = \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) + C, \quad (3.50)$$

$$\begin{aligned} c_{m\alpha,m\alpha} &= \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha} + C \\ &= \frac{2}{3} S(S+1), \end{aligned} \quad (3.51)$$

$$\leadsto C = \frac{2}{3} S(S+1) - \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}, \quad (3.52)$$

$$\leadsto c_{m\alpha,n\beta} \simeq \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha} (\cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) - 1) + \frac{2}{3} S(S+1), \quad (3.53)$$

wobei hier die für tiefe Temperaturen sicherlich gute Näherung $C_{\alpha\beta}(T \rightarrow 0) = C(T \rightarrow 0)$ gemacht wurde. Es wird ferner davon ausgegangen, dass der Eigenvektor $|\psi^{(1)}\mathbf{0}\rangle = 1/\sqrt{N}(1, 1, \dots, 1)^T$ im ferromagnetischen Fall mit der typisch quadratischen Dispersionsrelation für große Wellenlängen $\partial^2 \omega_{\mathbf{q}} / \partial q_i^2 |_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} = 2\rho_i$ (beispielsweise betrachtet man in Systemen, bei denen sich ein kartesisches Koordinatensystem anbietet: $i = \{x, y, z\}$) verknüpft ist und der einzig relevante in diesem Limes ist, wobei ρ_i den Spin-Stiffness-Parameter, im Folgenden SpinstEIFigkeit genannt, in i -Richtung bezeichnet. Die Unabhängigkeit von den Indizes $c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0} \alpha \beta} \simeq c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0} \alpha \alpha}$ bei tiefen Temperaturen ist für den FM nachvollziehbar. Außerdem wird eine Abschätzung der Form $c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0} \alpha \alpha} \simeq \frac{2}{3} S(1 + 2n(\omega_{(1)\mathbf{q}}))$ durchgeführt, deren Ziel es ist, eine lediglich explizite Temperaturabhängigkeit zu gewährleisten. Für die Magnetisierung ergibt sich dann im thermodynamischen Limes $\mathcal{N} \rightarrow \infty$

$$M \simeq S \left(1 - \frac{1}{SV_{BZ}} \int_{BZ} dV_{BZ} \frac{1}{e^{\omega_{(1)\mathbf{q}}/T} - 1} \right). \quad (3.54)$$

Analog folgt für die Korrelationsfunktionen im Ortsraum

$$c_{m\alpha,n\beta} = \frac{2}{3} S \left(\frac{1}{V_{BZ}} \int_{BZ} dV_{BZ} \left(1 + \frac{2}{e^{\omega_{(1)\mathbf{q}}/T} - 1} \right) (\cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) - 1) + (S+1) \right), \quad (3.55)$$

und somit für die spezifische Wärme

$$c_V = \frac{S}{V_{BZ}} \partial_T \int_{BZ} dV_{BZ} \left(\sum_{m\alpha,n\beta} J_{m\alpha,n\beta} \frac{1}{e^{\omega_{(1)\mathbf{q}}/T} - 1} (\cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta}) - 1) \right), \quad (3.56)$$

wobei eine schwache Abhängigkeit der magnetischen Anregungen $\omega_{(1)\mathbf{q}}(T \rightarrow 0) \simeq \omega_{(1)\mathbf{q}}(T = 0)$ von der Temperatur angenommen wurde. Für den reinen D -dimensionalen anisotropen FM ist die typische Dispersion am Punkt $\mathbf{q} \approx \Gamma = (0, 0, 0)$ der Form $\omega_{(1)\mathbf{q} \approx \Gamma}(T = 0) = \sum_{i=1}^D \rho_i q_i^2$ wesentlich für die Beschreibung der Tieftemperatureigenschaften der Messgrößen. Für Gleichung (3.54) bietet sich eine approximative Erweiterung des Integrationsgebietes auf den gesamten \mathbb{R}^D an, die typischerweise vorgenommen wird, wenn niedrigliegende Anregungen die signifikante Physik beinhalten. Mit einer Substitution der Form $\tau_i = \sqrt{\rho_i q_i^2 / T}$ folgt für die Funktionaldeterminante $|\frac{d(q_1, q_2, \dots, q_D)}{d(\tau_1, \tau_2, \dots, \tau_D)}| = T^{\frac{D}{2}} \prod_{i=1}^D (\rho_i)^{-\frac{1}{2}}$ und somit

$$M \simeq S \left(1 - \frac{T^{\frac{D}{2}} \prod_{i=1}^D (\rho_i)^{-\frac{1}{2}}}{SV_{BZ}} \int \dots \int_{\mathbb{R}^D} d\tau_1 d\tau_2 \dots d\tau_D \frac{1}{e^{\sum_{i=1}^D \tau_i^2} - 1} \right). \quad (3.57)$$

Diese Integrale werden üblicherweise mit der Transformation auf D -dimensionale Kugelkoordinaten gelöst und es folgt

$$M \simeq S \left(1 - \frac{\pi^{\frac{D}{2}} T^{\frac{D}{2}} \prod_{i=1}^D (\rho_i)^{-\frac{1}{2}} \zeta\left(\frac{D}{2}\right)}{SV_{BZ}} \right), \quad (3.58)$$

mit $D > 2$, wobei $\zeta\left(\frac{D}{2}\right)$ die riemannsche ζ -Funktion ist. Die Einschränkung $D > 2$ ist konsistent und gleichbedeutend damit, dass eine entsprechende Entwicklung wegen des Mermin-Wagner-Theorems für $D \leq 2$ nicht möglich ist [66]. Für $D = 3$ folgt hieraus das bekannte Bloch-Gesetz der Magnetisierung $M(T \rightarrow +0) - M(0) \propto T^{3/2}$. Interessant ist zudem, dass mit dem Verschwinden einer der (zwingend positiven) Spinsteifigkeiten ρ_i , die gesamte Magnetisierung zusammenbricht. Für die spezifische Wärme hingegen müssen weitere Annahmen bei der Entwicklung des Terms $(\cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}) - 1)$ für kleine $|\mathbf{q}| \ll 1$ gemacht werden. Ein einleuchtender Schritt ist der Ansatz, dass eine Entwicklung gemäß $\sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} (\cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta}) - 1) \stackrel{|\mathbf{q}| \ll 1}{\approx} \sum_j B_j q_j^2$ möglich ist. Dann ergibt sich

$$c_V = \frac{S}{V_{BZ}} \partial_T \left[T^{\frac{D+2}{2}} \prod_{i=1}^D (\rho_i)^{-\frac{1}{2}} \int \dots \int_{\mathbb{R}^D} \prod_i d\tau_i \left(\frac{\sum_i \left(\frac{B_i}{\rho_i} \right) \tau_i^2}{e^{\sum_i \tau_i^2} - 1} \right) \right],$$

wobei sich dieser Ausdruck mit

$$\begin{aligned} \int \dots \int_{\mathbb{R}^D} \prod_i d\tau_i \left(\frac{\sum_i \left(\frac{B_i}{\rho_i} \right) \tau_i^2}{e^{\sum_i \tau_i^2} - 1} \right) &= \int \dots \int_{\mathbb{R}^D} \prod_i d\tau_i \left(\left(\frac{B_1}{\rho_1} \right) \frac{\tau_1^2}{e^{\sum_i \tau_i^2} - 1} + \left(\frac{B_2}{\rho_2} \right) \frac{\tau_2^2}{e^{\sum_i \tau_i^2} - 1} + \dots \right) \\ &= \sum_k \left(\frac{B_k}{\rho_k} \right) \int \dots \int_{\mathbb{R}^{D-1}} \prod_{i \neq j} d\tau_i \left(\int_{\mathbb{R}} d\tau_j \frac{\tau_j^2}{e^{\sum_{i \neq j} \tau_i^2 + \tau_j^2} - 1} \right), \end{aligned}$$

vereinfachen lässt. Dadurch lässt sich schließlich

$$\int_{\mathbb{R}} d\tau_j \frac{\tau_j^2}{e^{\sum_{i \neq j}^D \tau_i^2 + \tau_j^2} - 1} = \frac{\sqrt{\pi}}{4} \text{Li}_{\frac{3}{2}}(e^{\sum_{i \neq j}^D \tau_i^2}), \quad (3.59)$$

auswerten, wobei $\text{Li}_s(z) = \sum_{i=1}^{\infty} z^i / i^s$ den sogenannten Polylogarithmus bezeichnet, und es verbleibt ein Integral, das durch die Transformation auf $(D-1)$ -dimensionale Kugelkoordinaten die einfache Form

$$\int_{\mathbb{R}^D} \prod_i^D d\tau_i \left(\frac{\sum_i^D \left(\frac{B_i}{\rho_i} \right) \tau_i^2}{e^{\sum_i^D \tau_i^2} - 1} \right) = \frac{\pi^{\frac{D}{2}}}{2\Gamma(\frac{D-1}{2})} \sum_i^D \left(\frac{B_i}{\rho_i} \right) \int_0^{\infty} d\tau \tau^{D-2} \text{Li}_{\frac{3}{2}}(e^{-\tau^2}), \quad (3.60)$$

annimmt, wobei $\Gamma(\frac{D-1}{2})$ die eulersche Gammafunktion bezeichnet. Zusammengefasst verbleibt also

$$c_V = T^{\frac{D}{2}} \frac{S(2+D) \pi^{\frac{D}{2}} \prod_{i=1}^D (\rho_i)^{-\frac{1}{2}} \sum_i^D \left(\frac{B_i}{\rho_i} \right)}{4V_{BZ} \Gamma(\frac{D-1}{2})} \int_0^{\infty} d\tau \tau^{D-2} \text{Li}_{\frac{3}{2}}(e^{-\tau^2}), \quad (3.61)$$

mit der für $D=3$ typischen Tieftemperaturproportionalität $c_V \sim T^{\frac{3}{2}}$. Wenn im weiteren Verlauf Größen wie die innere Energie oder die spezifische Wärme gezeigt werden, so wird in den Darstellungen eine Normierung auf die Zahl der Spins impliziert.

3.3 Hochtemperaturentwicklung (HTE)

Die HTE liefert einen systematischen Ansatz, thermodynamische Größen aus dem paramagnetischen Limes kommend zu beschreiben. Sie ist eine vergleichsweise alte Methode, die bis in das Jahr 1937 zurückreicht und von W. Opechowski vorgeschlagen wurde [67]. Angewendet auf Heisenberg-Modelle mit einer einfachen Kopplung nächster Nachbarn wurde zunächst der Einfluss verschiedener simpler Gittertypen intensiv untersucht. Allgemeine Formeln für die uniforme Suszeptibilität χ_0 und die spezifische Wärme c_V bis zur sechsten Ordnung für beliebige Gitter und Spinquantenzahl S konnten im Jahre 1958 von Rushbrooke et. al. angegeben werden [68]. In den 1970ern war bekannt, dass die Momente $\text{Tr}(\hat{H}^n) = \sum_{\mu_1 < \nu_1, \dots, \mu_n < \nu_n} \prod_i J_{\mu_i, \nu_i} \text{Tr}(\prod_i \hat{S}_{\mu_i} \hat{S}_{\nu_i})$ bei Heisenberg-Modellen mit nur einer einzigen Art der Kopplung $J_{\mu_i, \nu_i} = J$, die zur Berechnung benötigt werden, als Summe über Klassen verschiedener Graphen \mathcal{G}_ν dargestellt werden können [69]. Diese Graphen besitzen zwei wichtige Vorfaktoren in den allgemeinen Gleichungen. Ein Faktor ist die sogenannte Konstante des Gitters, welche angibt, wie oft der spezielle Graph \mathcal{G}_ν in das Gitter eingebettet werden kann. Der andere Faktor ist ein universelles Polynom $p_\nu(r)$ mit der Variablen $r = S(S+1)$. Basierend auf diesen Überlegungen konnte 2001 ein allgemeiner Ausdruck der HTE-Reihe der uniformen Suszeptibilität dritter Ordnung beliebig gekoppelter Systeme aufgestellt werden, indem der oben genannte erste Vorfaktor bestimmt wurde [70]. Diesem Zugang folgend wurde im Jahre 2011 ein Programm veröffentlicht, das die HTE-Reihe von uniformer Suszeptibilität $\chi_0 = \sum_n c_n \beta^n$ und spezifischer Wärme $c_V = \sum_n d_n \beta^n$ eines Netzwerkes aus Spins beliebiger Spinquantenzahl S der 8. Ordnung berechnet [69]. Die Zahl der Graphen, die zu berücksichtigen sind, steigt super-exponentiell an und so müssen in dieser Ordnung bereits 1139 verschiedene Graphen berücksichtigt werden [69]. Dennoch konnte das Programm in den darauffolgenden Jahren auf die 11. Ordnung der genannten Größen erweitert werden [71]. Dabei werden die Ergebnisse mit höherer Ordnung naturgemäß besser, da der Gültigkeitsbereich der Reihe größer wird. Die Erweiterung der Reihe ist gerade bei stark frustrierten Spinsystemen notwendig, um exotische Phasen zu studieren. Experimentell von Bedeutung ist dies außerdem, um durch einen Vergleich der Maxima in der spezifischen Wärme oder der Suszeptibilität bei moderaten Temperaturen das hypothetisch zugrunde gelegte Modell zu überprüfen. Demgegenüber steht der stark ansteigende Aufwand und die verfahrensbedingte Divergenz der entwickelten Größen bei tiefen Temperaturen. Es besteht die Möglichkeit, den Konvergenzradius der einfachen Potenzreihe mittels einer sogenannten Padé-Approximation zu erweitern. Diese approximiert die Reihe durch eine rationale Funktion der Form $\text{Padé}_{[L,M]}(\sum_n c_n \beta^n) = \sum_{n=0}^L a_n \beta^n / \sum_{n=0}^M b_n \beta^n$, so dass die HTE jener Funktion wiederum die ursprüngliche Taylor-Reihe reproduziert. Nachfolgend werden entsprechende Padé-Reihen mit $[L, M]$ symbolisiert. Die typischerweise gute Beschreibung der reinen HTE-Reihe bis zu einer Temperatur von $T/S(S+1) \approx 1.5J$ kann durch diese Transformation auf Regionen $T/S(S+1) \approx 0.5J$ verbessert werden, wobei J der

charakteristischen Austauschkopplung des Spinsystems entspricht [72]. Erfahrungsgemäß liefern Transformationen der Form $M \sim L$ die besten Resultate.

3.3.1 Strukturfaktor aus der HTE

Eine andere Größe, deren Entwicklungsterme bis zur neunten Ordnung über ein ähnliches Programm berechnet werden konnten und zur Verfügung standen, sind die Korrelationsfunktionen $\langle \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle$ eines Spinsystems, dessen Netzwerk durch eine Definitionsdatei, siehe hierzu zum Beispiel [71], beschrieben werden muss.¹² Ein Ziel dieser Arbeit ist es, ein Programm zu erstellen, das es ermöglicht, den tensoriellen Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{\alpha,\beta} = \frac{1}{N} \sum_n \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta})$, skalaren Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta})$ und sphärisch gemittelten Strukturfaktor $\tilde{S}_{\mathbf{q}} = \frac{1}{N} \sum_{\alpha,n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{0\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle \frac{\sin(q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}|)}{q|\mathbf{r}_{0\alpha,n\beta}|}$ aus den Korrelationsfunktionen eines beliebigen Heisenbergsystems zu berechnen. Dieser Schritt ist naheliegend, da sich die jeweilige Ordnung der entsprechenden HTE-Reihe der genannten Größen direkt aus der Temperaturabhängigkeit der Korrelationsfunktionen ergibt. Für die Durchführung wurde ein *bash*-Skript geschrieben, das neben der Information über das Kopplungsnetzwerk eine zusätzliche Datei ausliest, in der die Ortsvektoren der Gitterpunkte aufgeführt sind, mit denen die benötigten Relativvektoren bestimmt werden können, siehe hierzu Anhang 3.3.1. In den nachfolgenden Kapiteln werden die Ergebnisse dieser Entwicklungen an konkreten Modellen ausgewertet. Der Vorteil bei Kenntnis dieser Größen zeigt sich unter anderem bei der Beschreibung von magnetischer Fernordnung und besteht darin, dass kritische Temperaturen T_c auch für Antiferromagneten¹³ innerhalb der HTE aus $S_{\mathbf{q}} = \sum_n s_{\mathbf{q},n} \beta^n$ berechnet werden können. So gilt dann für das Maximum in $S_{\mathbf{Q}}$ an der Stelle des beschreibenden magnetischen Ordnungsvektors \mathbf{Q} bei $T \rightarrow T_c + 0$: $S_{\mathbf{Q}}(T \rightarrow T_c + 0) \rightarrow \infty$. Setzt man kritisches Verhalten nach $S_{\mathbf{Q}}(T \rightarrow T_c + 0) \propto (T - T_c)^{-\gamma}$ voraus, so ergibt sich im Limes $n \rightarrow \infty$ für das Verhältnis $s_{\mathbf{q},n}/s_{\mathbf{q},n-1} \propto T_c + (\gamma - 1)T_c/n$ eine lineare Abhängigkeit von $1/n$. Die entsprechenden kritischen Werte des Phasenübergangs lassen sich dann über einen Fit bestimmen. Unter anderen Werken findet man zum Beispiel in [73] detaillierte Beschreibungen und weitere Informationen zur Analyse der HTE-Reihen bei Phasenübergängen. Eine weitere Alternative besteht in der Analyse der Nullstellen des Nenners eines Padé-Approximants. Die Methode der sogenannten differentiellen Approximanten (DA), siehe hierzu beispielsweise [74–77], sieht vor, für die divergente Größe die Gültigkeit einer Differentialgleichung der Form $\sum_{\nu=0}^K L_{\nu}(\beta) S_{\mathbf{Q}}^{(\nu)}(\beta) + R(\beta) = 0$ anzunehmen, wobei $S_{\mathbf{Q}}^{(\nu)}(\beta)$ die ν -te Ableitung von $S_{\mathbf{Q}}(\beta)$ und $L_{\nu}(\beta)$, sowie $R(\beta)$ Polynome beliebiger Ordnung sind. Das Ziel ist es einerseits die Koeffizienten der verwendeten Polynome zu ermitteln. Andererseits gewinnt man

¹²Während der Erstellung dieser Arbeit wurde dieses Programm erweitert. Mittlerweile ist es möglich, mit eben jenem Programm die 10.te Ordnung für beliebige Werte des Spins und für $S = 1/2$ die 12.te Ordnung berechnen zu lassen.

¹³Für den FM gelten nachfolgende Betrachtungen für die korrespondierende uniforme Suszeptibilität $\chi_0 = \beta S_0/3$.

durch die anschließende Analyse der Nullstellen des Polynoms, das mit der höchsten Ableitung von $S_{\mathbf{Q}}(\beta)$ zusammenhängt, $L_K(\beta_c) = 0$, einen Wert für die kritische Temperatur aus $S_{\mathbf{Q}}$. Der zugehörige kritische Exponent ergibt sich nach kurzer Rechnung zu $\gamma = K - 1 - \frac{L_{K-1}(\beta_c)}{L'_K(\beta_c)}$. Die Anzahl möglicher Differentialgleichungen, die untersucht werden können, nimmt mit der Ordnung zu. Bei der Erstellung einer Tabelle, die die kritischen Parameter zusammenfasst¹⁴, werden die jeweiligen Approximanten in der Literatur oftmals durch $[M/N_0; N_1; N_2; \dots; N_K]$ symbolisiert. Hierbei bezeichnet K die gegebene Ordnung der Differentialgleichung, M die Ordnung von $R(\beta)$ und N_ν jene von $L_\nu(\beta)$. Andere bekannte Verfahren, wie zum Beispiel die der sogenannten DLog-Padé-Methode, sind in diesem Schema ebenfalls enthalten: $K = 1$, $R(\beta) \equiv 0$, $L_0 = P_L$ und $L_1 = -Q_M$.¹⁵ Besteht Unkenntnis über den magnetischen Ordnungsvektor \mathbf{Q} , so bietet die HTE durch den Strukturfaktor auch immer eine Möglichkeit der vorurteilsfreien Analyse durch das Auffinden von Maxima im Strukturfaktor bei hohen und moderaten Temperaturen. Ebenso kann die Untersuchung von selbst im Grundzustand magnetisch ungeordneten Spinsystemen Aufschluss über die Entwicklung möglicher einzelner konkurrierender Strukturen, oder aber einer ganzen Mannigfaltigkeit von Strukturen geben. Es wird sich in den folgenden Kapiteln zeigen, dass die HTE auch in der Lage ist, Aussagen über den (temperaturabhängigen) Quantenwinkel der inkommensurablen Spiral-Korrelationen einer frustrierten linearen Spinkette zu treffen.

¹⁴Oftmals lassen sich unphysikalische Resultate ausschließen, etwa wenn β_c negativ oder imaginär ist.

¹⁵Für die üblichen Padé-Approximanten setze man hier: $K = 0$, $R(\beta) = P_L$ und $L_0 = -Q_M$.

3.4 Frustrierte Spinketten

3.4.1 Die isolierte frustrierte Kette

Die eindimensionale Spin-1/2 Kette mit antiferromagnetisch gekoppelten nächsten Nachbarn ist bis in den Grundzustand ungeordnet. Quantenfluktuationen destabilisieren einen langreichweitig geordneten Zustand. Der eigentliche Grundzustand ist eine komplizierte Überlagerung von Wellenfunktionen, die H. Bethe 1931 exakt angeben konnte [78]. Trotz der exakt angebbaren Lösung bei $T = 0$ ist die Thermodynamik sehr schwer zu erhalten. In [44] wurde beispielsweise die antiferromagnetische Spin-1/2 Kette mit der RGM untersucht. Die Fragestellung, wie sich eine konkurrierende antiferromagnetische Wechselwirkung $J_2 > 0$ auf den Quantenwinkel benachbarter Spins ($S = 1/2$) im Grundzustand auswirkt, wurde in [79] mittels der CCM¹⁶ untersucht. Der klassische Verdrillungswinkel benachbarter Spin-Paare $\hat{\mathbf{S}}_{m\alpha}\hat{\mathbf{S}}_{n\alpha} = S^2\cos(\phi_{m,n})$ kann im Grundzustand durch Minimierung der Energie im Limes $\mathcal{N} \rightarrow \infty$ mit $\phi_{i,i+j} = j\phi$ angegeben werden

$$\begin{aligned} U &= \frac{1}{2} \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} \langle \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} \rangle = J_1 \mathcal{N} S^2 \cos(\phi_{i,i+1}) + J_2 \mathcal{N} S^2 \cos(\phi_{i,i+2}) \\ &= J_1 \mathcal{N} S^2 \cos(\phi) + J_2 \mathcal{N} S^2 \cos(2\phi), \\ \frac{\partial U}{\partial \phi} &= 0 \curvearrowright \phi^{cl} = \arccos\left(-\frac{J_1}{4J_2}\right), \text{ mit } J_2 \geq \left|\frac{J_1}{4}\right|. \end{aligned}$$

Es ist ersichtlich, dass für Werte $4|J_2| < |J_1|$ ein kollinearer Zustand angenommen wird. Oberhalb des angegebenen Schwellwerts $J_2^{cl} = |J_1|/4$ bestimmt $J_2 > J_2^{cl}$ den Winkel des kommensurablen Spiralzustands. Dieser Winkel kann durch Quantenfluktuationen vom klassischen Wert abweichen. Die Kette wird im extremen Quantenfall $S = 1/2$ durch ein Quantenspinsingulett mit spiralartigen Korrelationen beschrieben [80–84]. Einen möglichen Zugang, die magnetische Konfiguration des Quantenspinsystems zu studieren, bietet die HTE. Die analytischen Ausdrücke für den Strukturfaktor nach Kapitel 3.3.1 werden mit zunehmender Ordnung drastisch länger. Deswegen werden an dieser Stelle lediglich die ersten drei Entwicklungsterme der HTE-Reihe des Strukturfaktors für die

¹⁶Es sei nochmals betont, dass die CCM ein geeignetes Verfahren ist, um präzise numerische Daten am absoluten Temperaturnullpunkt, wie zum Beispiel der Grundzustandsenergie, stark frustrierter Quantenspinsysteme zu berechnen.

Spinquantenzahlen $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}$ exemplarisch durch

$$\begin{aligned}
\bar{S}_{q_x, S=1/2} &= \frac{3}{4} - \frac{3}{8T} (J_1 \cos(q_x) + J_2 \cos(2q_x)) \\
&+ \frac{3}{32T^2} (-J_1(J_1 - 2J_2) \cos(q_x) + (J_1 - J_2)(J_1 + J_2) \cos(2q_x)) \\
&+ \frac{3}{32T^2} (J_2(2J_1 \cos(3q_x) + J_2 \cos(4q_x))) \\
&+ \frac{1}{128T^3} (-3J_1^3 \cos(3q_x) + J_1(5J_1^2 + 6J_1J_2 + 4J_2^2) \cos(q_x)) \\
&+ \frac{1}{128T^3} (2J_1^2J_2 \cos(3q_x) - 9J_1^2J_2 \cos(4q_x)) \\
&+ \frac{1}{128T^3} (-9J_1J_2^2 \cos(5q_x) + 2J_2^3 \cos(4q_x) - 3J_2^3 \cos(6q_x)) \\
&+ \frac{1}{128T^3} ((2J_1^3 + 4J_1^2J_2 + 5J_2^3) \cos(2q_x) - 7J_1J_2^2 \cos(3q_x)) \\
&+ \dots + \frac{s_{q_x, S=1/2, 9}}{T^9},
\end{aligned} \tag{3.62}$$

$$\begin{aligned}
\bar{S}_{q_x, S=1} &= 2 - \frac{8}{3T} (J_1 \cos(q_x) + J_2 \cos(2q_x)) \\
&+ \frac{2}{9T^2} ((8J_1^2 - 3J_2^2) \cos(2q_x) + J_1(16J_2 - 3J_1) \cos(q_x)) \\
&+ \frac{2}{9T^2} (8J_2(2J_1 \cos(3q_x) + J_2 \cos(4q_x))) \\
&+ \frac{8}{27T^3} (-4J_1^3 \cos(3q_x) + J_1(5J_1^2 + 3J_1J_2 - 3J_2^2) \cos(q_x)) \\
&+ \frac{8}{27T^3} (J_1^2J_2 \cos(3q_x) - 12J_1^2J_2 \cos(4q_x) + (J_1^3 - 3J_1^2J_2 + 5J_2^3) \cos(2q_x)) \\
&+ \frac{8}{27T^3} (-11J_1J_2^2 \cos(3q_x) - 12J_1J_2^2 \cos(5q_x) + J_2^3 \cos(4q_x) - 4J_2^3 \cos(6q_x)) \\
&+ \dots + \frac{s_{q_x, S=1, 9}}{T^9},
\end{aligned} \tag{3.63}$$

und

$$\begin{aligned}
\bar{S}_{q_x, S=3/2} = & \frac{15}{4} - \frac{75}{8T} (J_1 \cos(q_x) + J_2 \cos(2q_x)) \\
& - \frac{75}{32T^2} ((J_2^2 - 5J_1^2) \cos(2q_x) + J_1(J_1 - 10J_2) \cos(q_x)) \\
& + \frac{75}{32T^2} (5J_2(2J_1 \cos(3q_x) + J_2 \cos(4q_x))) \\
& + \frac{5}{128T^3} (J_1 (369J_1^2 + 150J_1J_2 - 500J_2^2) \cos(q_x)) \\
& + \frac{5}{128T^3} ((50J_1^3 - 500J_1^2J_2 + 369J_2^3) \cos(2q_x)) \\
& + \frac{5}{128T^3} (-25J_1 (15J_1^2 - 2J_1J_2 + 43J_2^2) \cos(3q_x)) \\
& + \frac{5}{128T^3} (-25 (J_2 ((45J_1^2 - 2J_2^2) \cos(4q_x) + 15J_2(3J_1 \cos(5q_x) + J_2 \cos(6q_x)))) \\
& + \dots + \frac{S_{q_x, S=3/2, 9}}{T^9},
\end{aligned} \tag{3.64}$$

vorgestellt. Offensichtlich ist der lineare Term in $\beta = 1/T$ der gegebenen analytischen Ausdrücke nicht verantwortlich für eine Verschiebung vom klassischen Wert ϕ^{cl} . Beachtet man zudem die Normierung des Strukturformfaktors \bar{S}_{q_x} mittels $S(S+1)$ und die auf die Spinquantenzahl normierte Temperaturskala $T/S(S+1)$ so sieht man, dass die lineare HTE des Strukturformfaktors unabhängig vom Spin S ist. Korrekturen zur klassischen Physik treten hier ab der zweiten Ordnung auf. Die vollständigen (analytischen) Ausdrücke bis zur 9ten Ordnung der Spinquantenzahlen $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}, 5, 100$ wurden hierfür numerisch ausgewertet.

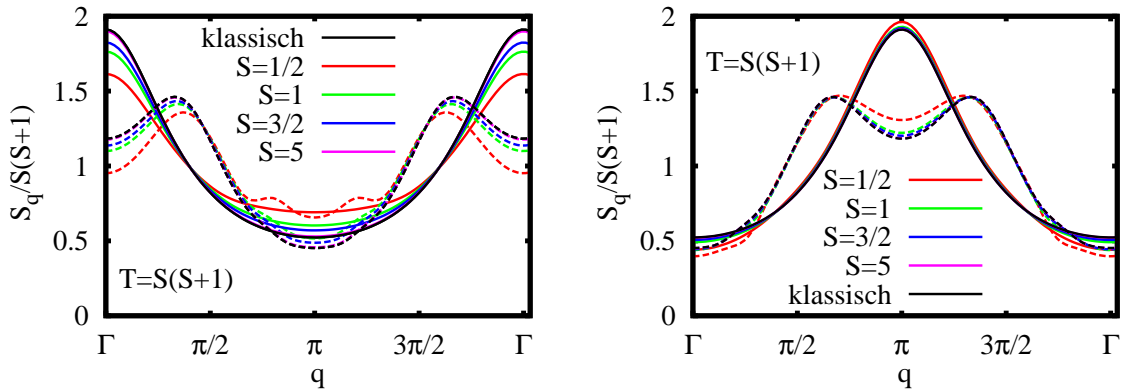


Abbildung 3.1.: Normierter Strukturformfaktor $S_q/S(S+1)$ aus der HTE der Ordnung 9 der linearen Kette mit Wechselwirkung nächster Nachbarn ($J_1 = -1$ ferromagnetisch - links; $J_1 = 1$ antiferromagnetisch - rechts) und übernächster Nachbarn ($J_2 = 0$ durchgezogene Linien; $J_2 = 0.5$ gestrichelte Linien) bei einer Temperatur von $T = S(S+1)$ für die Spinquantenzahlen $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}, 5$ und 100 (klassisch) in der Brillouin-Zone.

In Abbildung 3.1 lässt sich erkennen, dass die Maxima q_{max} in $S_q/S(S+1)$ eine Aussage über die bevorzugte magnetische Ordnung $\phi = q_{max}$ treffen lassen. Es ist ersichtlich, dass

die Werte eine nichttriviale Abhängigkeit von der Spinquantenzahl besitzen. Zudem ist zu bemerken, dass die Maxima in der Abbildung für den Antiferromagneten ($J_1 > 0$) bei geringerer Spinquantenzahl größer sind. Beim FM ($J_1 < 0$) zeigt sich hier gerade das entgegengesetzte Verhalten.

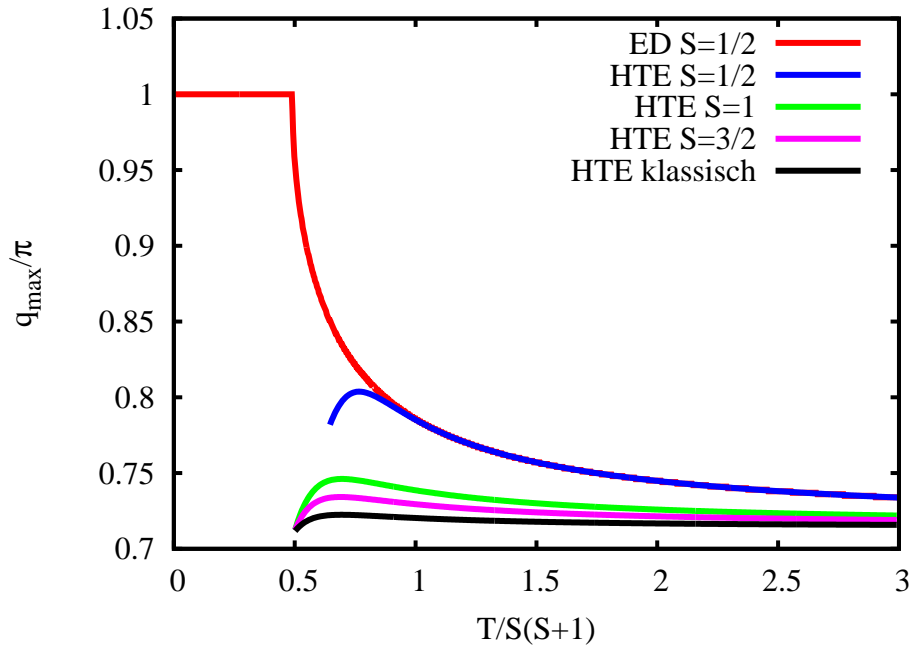


Abbildung 3.2.: Daten für die Maxima q_{max}/π des Strukturfaktors S_q der antiferromagnetischen Kette ($J_1 = 1, J_2 = 0.4$) im Verlauf der normierten Temperatur $T/S(S+1)$ aus der ED ($\mathcal{N} = 20$; rot) im Vergleich mit der HTE (blau) für die Spinquantenzahlen $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}$ und 100 (klassisch).

Im Vergleich mit der ED¹⁷ in Abbildung 3.2 zeigt sich eine Übereinstimmung der reinen HTE-Reihe für Spin-1/2 bis zu einer Temperatur von $T \sim S(S+1)$. Dies stimmt mit der empirischen Erwartungshaltung früherer Ergebnisse allgemeiner HTE-Resultate überein. Die Werte für q_{max}/π sind bei gleicher normierter Temperatur und gegebener Parameterwahl sukzessive nach der Spinquantenzahl S geordnet, wobei der Wert für $S = 1/2$ am größten ist.

¹⁷Die Daten der ED, in denen $\mathcal{N} = 20$ Gitterplätze berücksichtigt wurden, sind hierbei bezüglich der 9ten Ordnung HTE äquivalent zum unendlich ausgedehnten Gitter.

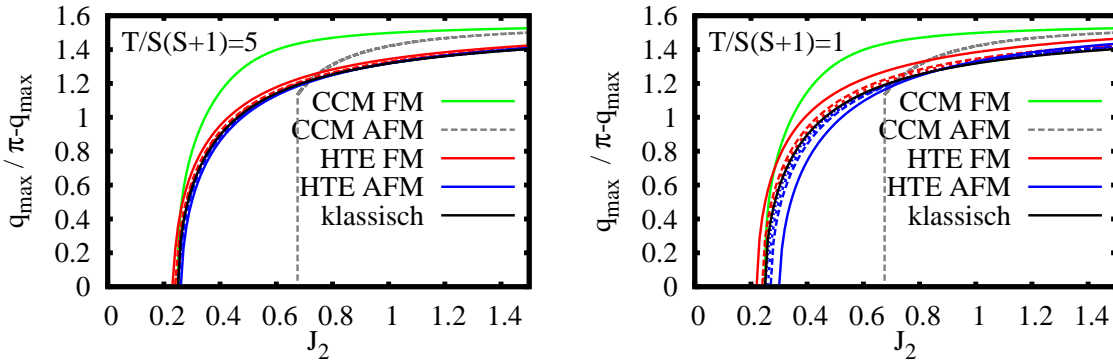


Abbildung 3.3.: Darstellung der Ergebnisse für q_{max} (FM $J_1 = -1$) beziehungsweise $q_{max} - \pi$ (AFM $J_1 = 1$) als Funktion der antiferromagnetischen Kopplung übernächster Nachbarn $J_2 > 0$ aus der HTE 9ter Ordnung bei zwei verschiedenen Temperaturen $T/S(S+1) = 5$ (links) und $T/S(S+1) = 1$ (rechts) für die Spinquantenzahlen $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}, 5$ (durchgezogen...gestrichelt, kontinuierlich geordnet). Zum Vergleich angegeben ist der klassische Spiralwinkel bei $T = 0$ und der Quantenwinkel für $S = 1/2$ aus der CCM ($T = 0$), entnommen aus [79].

Aufgetragen als Funktion der frustrierenden Kopplung $J_2 > 0$ erkennt man in Abbildung 3.3 zunächst die Tendenz, dass sich die Ergebnisse höherer Temperatur dem klassischen Resultat annähern. Dies ist durch die Dominanz der thermischen Fluktuationen zu verstehen, die den Quantencharakter abschwächen. Es zeigt sich zudem, dass schon die 9te Ordnung HTE bei moderaten Temperaturen im Stande ist, die Tendenz des kritischen Wertes $J_2^c(S = 1/2, T = 0) > J_2^{cl}$ für den Antiferromagneten zu detektieren.

3.4.2 Gekoppelte quasiaendimensionale frustrierte Ketten

Es existiert eine große Klasse von magnetischen Isolatoren, die sich hinreichend gut durch das Modell der frustrierten linearen Heisenberg-Spin-Kette mit J_1 - J_2 Wechselwirkung beschreiben lässt. Einige der sogenannten *edge-shared cuprates*, zum Beispiel LiVCuO_4 , LiCu_2O_2 , NaCu_2O_2 , $\text{Li}_2\text{ZrCuO}_4$, $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$, und Li_2CuO_2 , lassen sich adäquat mit einem ferromagnetischen $J_1 < 0$ und einem antiferromagnetischen $J_2 > 0$ beschreiben [85–104]. In realen Festkörpern kann man im Gegensatz zum idealisierten Modell eine verschwindende Kopplung in andere Raumrichtungen nicht ausschließen. Dies wiederum kann zu Phasenübergängen führen [66], deren magnetische Ordnungstemperaturen $T_c > 0$ experimentell bestimmbar sind. So konnten zum Beispiel in [85, 86, 96] für das Material $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$ die folgenden Parameter $J_1 \approx -93$ K, $J_2 \approx 4.7$ K und $T_c \approx 30$ K bestimmt werden. Um diesen Phasenübergängen Rechnung zu tragen, müssen kleine Kopplungen in beispielsweise einfachster geometrischer Überlegung zwischen nächsten Nachbarn in kartesischer y -Richtung (J_y), beziehungsweise z -Richtung (J_z), berücksichtigt werden. Da die Zwischenkettenkopplungen gegenüber der dominanten Kopplung entlang der Ketten $|J_y/J_1| \ll 1$ klein sein sollen, ist anzunehmen, dass die kritische Temperatur $|T_c/J_1|$ ebenfalls klein ist. Es ist davon auszugehen, dass die relevante Physik in der Umgebung

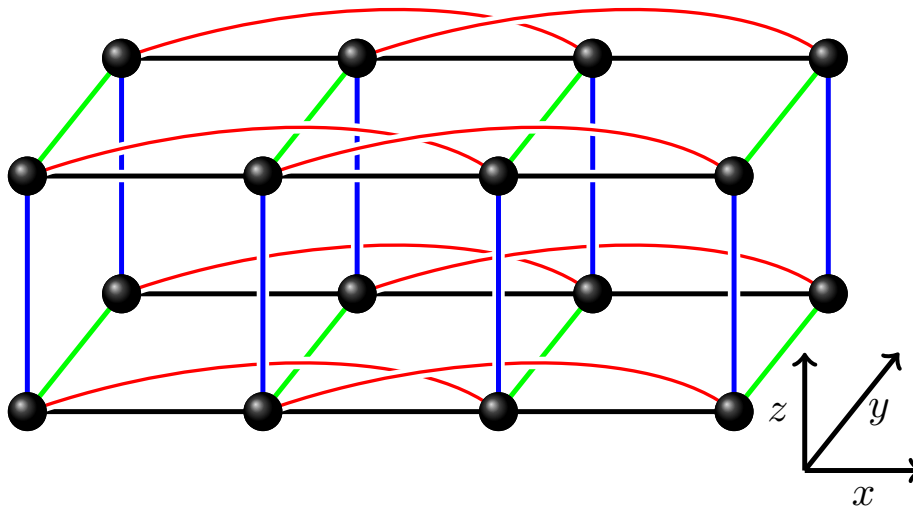


Abbildung 3.4.: Exemplarische Darstellung des Modells der linearen J_1 - J_2 -Ketten (J_1 - schwarz; J_2 - rot), die in y -Richtung mit $J_{\perp,y}$ (grün) und in z -Richtung mit $J_{\perp,z}$ (blau) gekoppelt sind.

dieser Temperatur und der Einfluss der Zwischenkettenkopplung auf diese durch eine gewöhnliche HTE nicht zugänglich ist. Es gibt nur wenige Methoden, die in der Lage sind, frustrierte dreidimensionale Systeme im gesamten Temperaturbereich zu betrachten. Eine davon ist die in Kapitel 3.2 vorgestellte RGM, welche die Möglichkeit liefert, auch geringe Ordnungstemperaturen zu ermitteln und die Tieftemperaturphysik adäquat zu beschreiben. Es soll nun untersucht werden, welchen Einfluss sowohl antiferromagnetische als auch ferromagnetische Zwischenkettenkopplungen bei Anwesenheit von Bindungs-Frustration innerhalb der Kette auf die Thermodynamik nehmen. Die Ergebnisse der nachfolgenden Untersuchungen wurden in [105] veröffentlicht.

Das zugrundeliegende Gitter ist das einfach kubische Gitter mit dem Heisenberg-Hamiltonian

$$H = J_1 \sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle, x} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} + J_2 \sum_{[m\alpha, n\beta], x} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} + J_{\perp, y} \sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle, y} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta} + J_{\perp, z} \sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle, z} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta}, \quad (3.65)$$

wobei die spitzen (eckigen) Klammern an den Summationsindizes die einfache Summation über nächste (übernächste) Nachbarn in die jeweilige (kartesische) Richtung, siehe Abbildung 3.4, symbolisieren. Die Parameter der Austauschkopplungen werden folgend so gewählt, dass die Korrelationen in Kettenrichtung im GS kollinear ferromagnetisch sind: $J_1 = -1$ und $J_2 < J_2^{cl}$. Die Elementarzelle ist primitiv $N = 1$ ($\alpha = \beta = 1$) und somit reduzieren sich die in Kapitel 3.2 definierte Momentenmatrix für das Spin-1/2 System ($\lambda_{m,n} \equiv 0$, siehe Kapitel 3.2)

$$M_{\mathbf{q}} = 4J_1 c_{100}(\cos(q_x) - 1) + 4J_2 c_{200}(\cos(2q_x) - 1) + 4J_{\perp, y} c_{010}(\cos(q_y) - 1) + 4J_{\perp, z} c_{001}(\cos(q_z) - 1), \quad (3.66)$$

wobei $c_{hkl} \equiv c_{\mathbf{R}} = \langle \hat{S}_0^+ \hat{S}_{\mathbf{R}}^- \rangle$, $\mathbf{R} = h\mathbf{e}_x + k\mathbf{e}_y + l\mathbf{e}_z$ ist, und die Frequenzmatrix, die mit dem Quadrat der Dispersionsrelationen magnetischer Anregungen zu identifizieren ist,

$$\begin{aligned} \omega_{\mathbf{q}}^2 = & \sum_n J_n^2 (1 - \cos(\mathbf{r}_n \mathbf{q})) (1 + 2p_{2\mathbf{r}_n} - 2p_{\mathbf{r}_n}) \\ & - \sum_n J_n^2 (1 - \cos(\mathbf{r}_n \mathbf{q})) (4\cos(\mathbf{r}_n \mathbf{q}) p_{\mathbf{r}_n}) \\ & + \sum_{n \neq m} J_n J_m (1 - \cos(\mathbf{r}_n \mathbf{q})) (4p_{\mathbf{r}_n + \mathbf{r}_m} - 4\cos(\mathbf{r}_m \mathbf{q}) p_{\mathbf{r}_n}) \\ & + 2J_1 J_2 (1 - \cos(q_x)) (3 + 2\cos(q_x)) (p_{(1,0,0)} - p_{(3,0,0)}), \end{aligned} \quad (3.67)$$

auf einfache skalare Größen. Hierbei wurden die folgenden Notationen

$$J_3 = J_{\perp,y}, \quad J_4 = J_{\perp,z}, \quad \mathbf{r}_1 = (1, 0, 0), \quad \mathbf{r}_2 = (2, 0, 0), \quad \mathbf{r}_3 = (0, 1, 0), \quad \mathbf{r}_4 = (0, 0, 1), \quad (3.68)$$

$$p_{(n,0,0)} = \alpha_x c_{n00}, \quad p_{(m,n,0)} = \alpha_y c_{mn0}, \quad p_{(0,n,m)} = (\alpha_y + \alpha_z) c_{0nm} / 2, \quad p_{(m,0,n)} = \alpha_z c_{m0n},$$

verwendet. Dabei wurden einerseits Korrelationsfunktionen c_{mnl} , die aus Symmetriegründen identisch sein müssen, gleichgesetzt. Andererseits wurde die Anzahl der Vertexparameter $\alpha_{m,n}$ auf drei reduziert. Aufgrund der oben genannten Kollinearität bei $T = 0$ entlang der Kette und somit der Gleichheit der langreichweitigen Korrelationsfunktionen ist das Gleichsetzen der mit diesen verknüpften Vertexparameter für endliche Temperaturen eine physikalisch begründbare Approximation. Es wird sich zeigen, dass neben der Summenregel $c_0 = 2S(S+1)/3$ und den Selbstkonsistenzgleichungen der Korrelationsfunktionen zwei zusätzliche Gleichungen, die sogenannten Isotropieforderungen nach Kapitel 3.2.1 Gleichung (3.41), aufgestellt werden können. Demnach bietet es sich an, auch die korrespondierenden Vertexparameter der korrelierten Spins, die räumlich in y -Richtung (α_y) beziehungsweise z -Richtung (α_z) voneinander getrennt sind, gleichzusetzen. Die Entwicklung von $\omega_{\mathbf{q}}^2$ um $\mathbf{q} \approx \Gamma = (0, 0, 0)$ liefert $\frac{\partial \omega_{\mathbf{q}}}{\partial q_i} |_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} = v_i$

$$v_x^2 = J_1^2 \left(-3p_{100} + p_{200} + \frac{1}{2} \right) \quad (3.69)$$

$$\begin{aligned} & + J_1 (2J_{\perp,y} (p_{110} - p_{100}) - 2J_{\perp,z} p_{100} + 2J_{\perp,z} p_{101} + 3J_2 p_{100} - 8J_2 p_{200} + 5J_2 p_{300}) \\ & + 2J_2 (-4J_{\perp,y} p_{200} + 4J_{\perp,y} p_{210} - 4J_{\perp,z} p_{200} + 4J_{\perp,z} p_{201} - 6J_2 p_{200} + 2J_2 p_{400} + J_2), \\ 2v_y^2 / J_{\perp,y} = & -4J_1 p_{010} + 4J_1 p_{110} - 6J_{\perp,y} p_{010} + 2J_{\perp,y} p_{020} - 4J_{\perp,z} p_{010} \\ & + 4J_{\perp,z} p_{011} - 4J_2 p_{010} + 4J_2 p_{210} + J_{\perp,y}, \end{aligned} \quad (3.70)$$

$$\begin{aligned} 2v_z^2 / J_{\perp,z} = & -4J_1 p_{001} + 4J_1 p_{101} - 4J_{\perp,y} p_{001} + 4J_{\perp,y} p_{011} - 6J_{\perp,z} p_{001} \\ & + 2J_{\perp,z} p_{002} - 4J_2 p_{001} + 4J_2 p_{201} + J_{\perp,z}, \end{aligned} \quad (3.71)$$

(Spinwellengeschwindigkeiten für $i = x, y, z$) und $\frac{\partial^2 \omega_{\mathbf{q}}}{2\partial q_i^2} |_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} = \rho_i$

$$24\rho_x^2 = J_1^2(30p_{100} - 2p_{200} - 1) + 16J_2(4(J_{\perp,y}p_{200} - J_{\perp,y}p_{210} + J_{\perp,z}p_{200} - J_{\perp,z}p_{201}) + J_2(30p_{200} - 2p_{400} - 1)) \quad (3.72)$$

$$+ 2J_1(2J_{\perp,y}(p_{100} - p_{110}) + 2J_{\perp,z}p_{100} - 2J_{\perp,z}p_{101} + 33J_2p_{100} + 80J_2p_{200} - 17J_2p_{300}),$$

$$36\rho_y^2 = -6J_{\perp,y}(J_1(p_{110} - p_{010}) - J_{\perp,z}p_{010} + J_{\perp,z}p_{011} - J_2p_{010} + J_2p_{210}) - J_{\perp,y}^2(3(p_{020} - 15p_{010}) + \frac{3}{2}), \quad (3.73)$$

$$36\rho_z^2 = -6J_{\perp,z}(J_1(p_{101} - p_{001}) - J_{\perp,y}p_{001} + J_{\perp,y}p_{011} - J_2p_{001} + J_2p_{201}) - J_{\perp,z}^2(3(p_{002} - 15p_{001}) + \frac{3}{2}), \quad (3.74)$$

(Spinsteifigkeiten für $i = x, y, z$). Als Indikator für die Stabilität der ferngeordneten Phase sind v_i bei Berücksichtigung antiferromagnetischer Zwischenkettenkopplungen ($J_{\perp,y} > 0, J_{\perp,z} > 0$) und ρ_i bei Berücksichtigung ferromagnetischer Zwischenkettenkopplungen ($J_{\perp,y} < 0, J_{\perp,z} < 0$) von Bedeutung. In beiden Fällen zeigt sich deutlich die Symmetrieeigenschaft $(v_y, \rho_y) \stackrel{z \leftrightarrow y}{\leftrightarrow} (v_z, \rho_z)$. Die uniforme statische Suszeptibilität ergibt sich nach Kapitel 3.2.1 zu $\chi_0 = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \chi_{\mathbf{q}}, \chi_{\mathbf{q}} = \chi_{\mathbf{q}}(\omega = 0) = \chi_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega = 0)/2$:

$$\lim_{q_x \rightarrow 0} \chi(q_x = 0, q_y = 0, q_z) = \chi_0^{(1)} = -\frac{2c_{001}}{\Delta_0^{(1)}}, \quad (3.75)$$

$$\text{mit } \Delta_0^{(1)} = -4J_1p_{001} + 4J_1p_{101} - 4J_{\perp,y}p_{001} + 4J_{\perp,y}p_{011} - 6J_{\perp,z}p_{001} + 2J_{\perp,z}p_{002} - 4J_2p_{001} + 4J_2p_{201} + J_{\perp,z}, \quad (3.76)$$

$$\lim_{q_y \rightarrow 0} \chi(q_x = 0, q_y, q_z = 0) = \chi_0^{(2)} = -\frac{2c_{010}}{\Delta_0^{(2)}}, \quad (3.77)$$

$$\text{mit } \Delta_0^{(2)} = -4J_1p_{010} + 4J_1p_{110} - 6J_{\perp,y}p_{010} + 2J_{\perp,y}p_{020} - 4J_{\perp,z}p_{010} + 4J_{\perp,z}p_{011} - 4J_2p_{010} + 4J_2p_{210} + J_{\perp,y}, \quad (3.78)$$

$$\lim_{q_x \rightarrow 0} \chi(q_x, q_y = 0, q_z = 0) = \chi_0^{(3)} = \frac{2J_1c_{100} + 8J_2c_{200}}{\Delta_0^{(3)}}, \quad (3.79)$$

$$\text{mit } \Delta_0^{(3)} = J_1^2(6p_{100} - 2p_{200} - 1) + 4J_1J_{\perp,y}(p_{100} - p_{110}) + 2J_1(2J_{\perp,z}p_{100} - 2J_{\perp,z}p_{101} - 3J_2p_{100} + 8J_2p_{200} - 5J_2p_{300}) + 16J_2(J_{\perp,y}p_{200} - J_{\perp,y}p_{210} + J_{\perp,z}p_{200} - J_{\perp,z}p_{201}) + 4J_2^2(6p_{200} - 2p_{400} - 1). \quad (3.80)$$

Dabei können durch Forderung nach Isotropie ($\chi_0^{(1)} = \chi_0^{(2)}$ und $\chi_0^{(2)} = \chi_0^{(3)}$) zwei zusätzliche Gleichungen aufgestellt werden. Mit den Korrelationsfunktionen im \mathbf{q} -Raum $c_{\mathbf{q}} = \langle S_{\mathbf{q}}^+ S_{-\mathbf{q}}^- \rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}}[1 + 2n(\omega_{\mathbf{q}})]$ kann nun für alle Parameterbereiche eine Selbstkonsistenzgleichung der unbekanntenen Korrelationsfunktion im Ortsraum über $c_{\mathbf{R}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{Q}} c_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}} + e^{i\mathbf{Q}\mathbf{R}} C_{\mathbf{Q}}$ aufgestellt werden. Für den magnetischen Ordnungsvektor $C_{\mathbf{Q}}$

in der ferngeordneten Phase muss man beachten, dass $\mathbf{Q} = (0, Q_y, Q_z)$, mit $Q_y = 0$ ($Q_z = 0$) für ferromagnetische Kopplungen $J_{\perp,y} < 0$ ($J_{\perp,z} < 0$) und $Q_y = \pi$ ($Q_z = \pi$) für antiferromagnetische Kopplungen $J_{\perp,y} > 0$ ($J_{\perp,z} > 0$) gilt. Die Phase mit LRO ($C_{\mathbf{Q}} \neq 0$, $T < T_c$) ist verbunden mit der Divergenz der jeweiligen Suszeptibilität, also beispielsweise $\Delta_{\mathbf{0}}^{(1)} = 0$ für $J_{\perp,y} < 0$ und $J_{\perp,z} < 0$, oder $\Delta_{(0,\pi,\pi)} = 0$ für $J_{\perp,y} > 0$ und $J_{\perp,z} > 0$, wobei sich $\Delta_{(0,\pi,\pi)}$ entsprechend aus

$$\chi_{(0,\pi,\pi)} = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow (0,\pi,\pi)} \chi_{\mathbf{q}} = -\frac{2(J_{\perp,y}c_{010} + J_{\perp,z}c_{001})}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}}, \quad (3.81)$$

$$\begin{aligned} \Delta_{(0,\pi,\pi)} &= 4J_{\perp,y}(-J_1p_{010} + J_1p_{110} + J_{\perp,z}(p_{001} + p_{010} + 2p_{011}) - J_2p_{010} + J_2p_{210}) \\ &\quad + J_{\perp,z}(-4J_1p_{001} + 4J_1p_{101} + 2J_{\perp,z}p_{001} + 2J_{\perp,z}p_{002} - 4J_2p_{001} + 4J_2p_{201} + J_{\perp,z}) \\ &\quad + J_{\perp,y}^2(2p_{010} + 2p_{020} + 1), \end{aligned} \quad (3.82)$$

erhalten lässt. Man überzeugt sich schnell, dass auch $\Delta_{(0,\pi,\pi)}$ unter der Transformation $z \leftrightarrow y$ invariant ist. Für die entsprechenden Korrelationslängen in Kettenrichtung $\xi_{\mathbf{Q}}^{(x)}$ beziehungsweise senkrecht dazu $\xi_{\mathbf{Q}}^{(y)}, \xi_{\mathbf{Q}}^{(z)}$ muss die jeweilige Suszeptibilität nach Kapitel 3.2 um den Ordnungsparameter \mathbf{Q} entwickelt werden. Dies liefert

$$\begin{aligned} (2\xi_{\mathbf{0}}^{(x)})^2 &= -\frac{J_1^2(2p_{100} + 2p_{200} + 1) + 128J_2^2p_{200}}{\Delta_{\mathbf{0}}^{(3)}} \\ &\quad + \frac{J_1(4J_{\perp,y}(p_{100} - p_{110}) + 4J_{\perp,z}(p_{100} - p_{101}) - 2J_2(15p_{100} + 16p_{200} + p_{300}))}{\Delta_{\mathbf{0}}^{(3)}} \\ &\quad - \frac{J_1c_{100}}{J_1c_{100} + 4J_2c_{200}}, \end{aligned} \quad (3.83)$$

$$(\xi_{\mathbf{0}}^{(y)})^2 = \frac{2J_{\perp,y}p_{010}}{\Delta_{\mathbf{0}}^{(2)}}, \quad (3.84)$$

$$(\xi_{\mathbf{0}}^{(z)})^2 = \frac{2J_{\perp,z}p_{001}}{\Delta_{\mathbf{0}}^{(1)}}, \quad (3.85)$$

Tabelle 3.1.: Übersicht der unbekanntnen Größen und das zur Bestimmung verwendete nichtlineare Gleichungssystem der RGM nach Kapitel 3.2.1.

Unbekannte Größen	$T < T_c$ ($T > T_c$)	$T = T_c$
$c_{\mathbf{R}}$	$c_{\mathbf{R}} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}$	$c_{\mathbf{R}} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}$
α_x	Summenregel	Summenregel
α_y, α_z	Isotropieforderung	Isotropieforderung
T_c	\times	$\chi_{\mathbf{Q}}^{-1} = 0$
$C_{\mathbf{Q}}$	$\chi_{\mathbf{Q}}^{-1} = 0$ ($C_{\mathbf{Q}} = 0$)	$C_{\mathbf{Q}} = 0$

für den ferromagnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ und

$$\begin{aligned}
(2\xi_{(0,\pi,\pi)}^{(x)})^2 &= \frac{J_1^2(-6p_{100} + 2p_{200} + 1) + 2J_1(2J_{\perp,y}(2p_{010} + p_{100} + p_{110}))}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} \\
&+ \frac{J_1^2(2J_{\perp,z}(2p_{001} + p_{100} + p_{101}) + J_2(3p_{100} - 8p_{200} + 5p_{300}))}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} \\
&+ \frac{16J_2(J_{\perp,y}(2p_{010} + p_{200} + p_{210}) + J_{\perp,z}(2p_{001} + p_{200} + p_{201}))}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} \\
&+ \frac{4J_2^2(-6p_{200} + 2p_{400} + 1)}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} - \frac{J_1 c_{100} + 4J_2 c_{200}}{J_{\perp,y} c_{010} + J_{\perp,z} c_{001}}, \tag{3.86}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
(4\xi_{(0,\pi,\pi)}^{(y)})^2 &= -\frac{J_{\perp,z} c_{001}}{J_{\perp,y} c_{010} + J_{\perp,z} c_{001}} + \frac{3J_{\perp,z}^2(p_{002} + p_{001} + \frac{1}{2})}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} \\
&+ \frac{6J_{\perp,z}(J_1(p_{101} - p_{001}) - J_{\perp,y}(p_{001} - p_{011}) - J_2(p_{001} - p_{201})) - 12J_{\perp,y}^2 p_{010}}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}}, \tag{3.87}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
(4\xi_{(0,\pi,\pi)}^{(z)})^2 &= \frac{J_{\perp,z} c_{001}}{J_{\perp,y} c_{010} + J_{\perp,z} c_{001}} - \frac{3J_{\perp,z}^2(p_{002} + 5p_{001} + \frac{1}{2})}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}} \\
&- \frac{6J_{\perp,z}(J_1(p_{101} - p_{001}) + J_{\perp,y}(2p_{010} + p_{001} + p_{011}) - J_2 p_{001} + J_2 p_{201})}{\Delta_{(0,\pi,\pi)}}, \tag{3.88}
\end{aligned}$$

für den Ordnungsvektor $\mathbf{Q} = (0, \pi, \pi)$. In Tabelle 3.1 ist exemplarisch dargestellt, welche Gleichungssysteme im thermodynamischen Limes es zu lösen gilt, um die unbekanntnen Größen zu bestimmen.

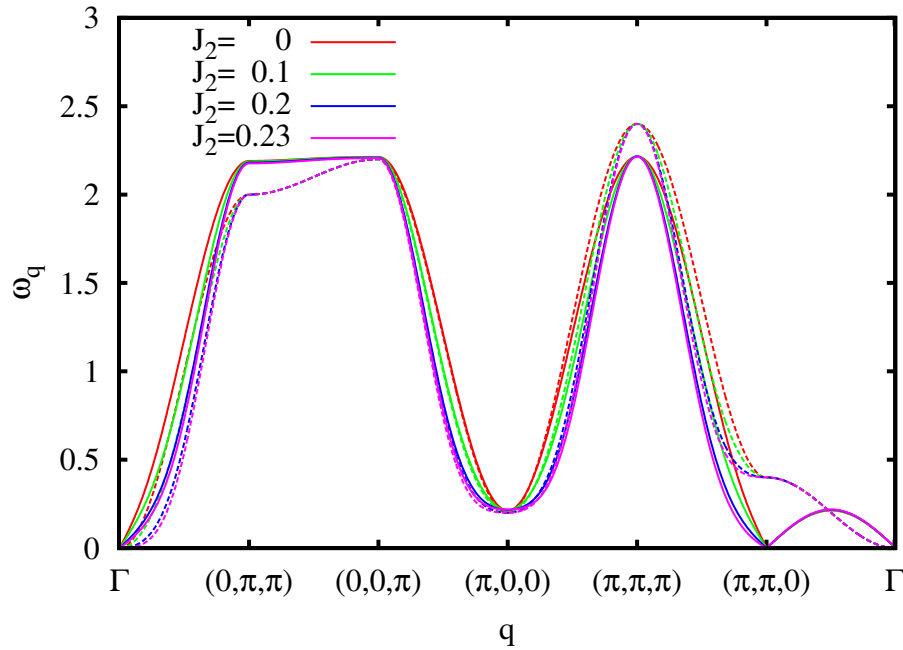


Abbildung 3.5.: Spinwellendispersionsrelation $\omega_{\mathbf{q}}$ als Funktion des Wellenvektors \mathbf{q} am Temperaturnullpunkt $T = 0$ entlang ausgewählter Pfade durch die Brillouin-Zone für verschiedene Werte der frustrierenden Intrakettenkopplung über nächster Nachbarn J_2 (gestrichelt: FM $J_{\perp} = -0.1$; durchgezogen: AFM $J_{\perp} = 0.1$).

RESULTATE AM TEMPERATURNULLPUNKT $T = 0$

Die Lösung (FM : $c_{\mathbf{R}} = \frac{1}{3} (\frac{1}{2} + \delta_{\mathbf{R},\mathbf{0}})$, $\alpha_{\{x,y,z\}} = \frac{3}{2}$, $M = \sqrt{\frac{3}{2} C_0} = \frac{1}{2}$) für das Gleichungssystem im Fall rein ferromagnetischer Zwischenkettenkopplungen ist identisch mit der in Kapitel 3.2.3 beschriebenen. Für den voll polarisierten FM verschwinden außerdem die Spinwellengeschwindigkeiten $v_{\{x,y,z\}}(\text{FM}) = 0$ und die Spinsteifigkeit nimmt die einfache Form $\rho_x(\text{FM}) = (|J_1| - 4J_2)/2$ in Kettenrichtung und $\rho_{\gamma}(\text{FM}) = J_{\perp,\gamma}/2$ ($\gamma = y, z$) in Richtung senkrecht zur Kettenrichtung an. Die Steifigkeiten stimmen mit denen aus der linearen Spinwellentheorie überein [10]. Die Spinwellendispersionsrelation in Abbildung 3.5 zeigt eine diffizile Abhängigkeit von den Kopplungsstärken. Das Maximum im Spinwellenspektrum beim magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q} = (\pi, \pi, \pi)$ ist verknüpft mit energetisch ungünstigen Anregungszuständen antiparalleler Spinkonfigurationen in jede Raumrichtung. Für ein antiferromagnetisches $J_{\perp,y} = J_{\perp} = J_{\perp,z} = 0.1$ flacht das Maximum zu einem nahezu konstanten Plateau im Bereich $\mathbf{q} = (\pi, 0, 0) \dots (\pi, \pi, 0)$ ab. Sowohl für $J_{\perp} = -0.1$, als auch für $J_{\perp} = 0.1$ zeigt das Spektrum dort, wie auch im Bereich $\mathbf{q} = \Gamma \dots (0, 0, \pi)$, fast keine Abhängigkeit von der frustrierenden Kopplung J_2 in Kettenrichtung.

Im Gegensatz zum klassischen ferromagnetischen GS bei $J_{\perp} < 0$ ist der Zustand für $J_{\perp} > 0$ ein nichtklassisch antiferromagnetischer Quantenzustand mit einer „gaplosen“

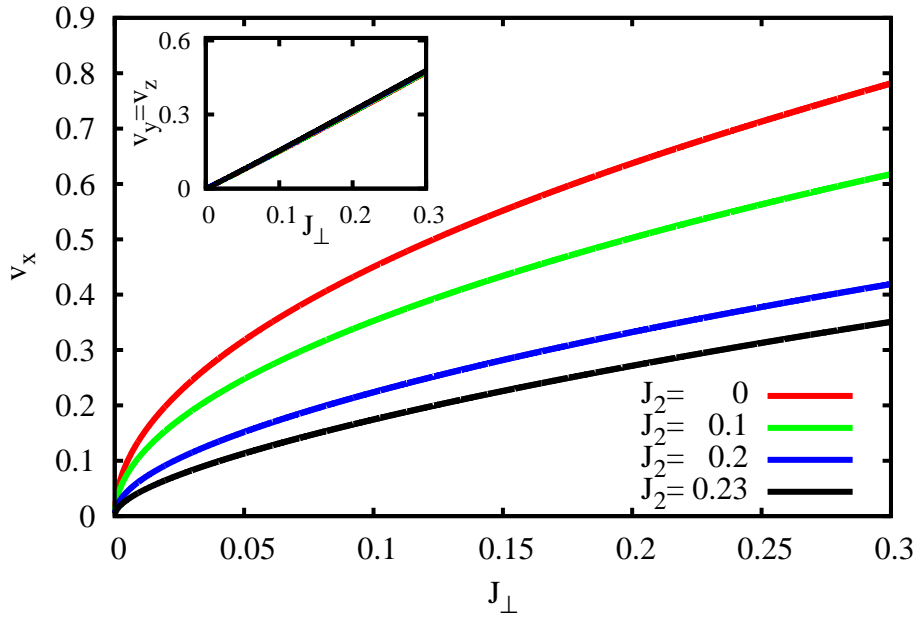


Abbildung 3.6.: Spinwellengeschwindigkeit im GS v_x (in Kettenrichtung) und $v_y = v_z$ (senkrecht zur Kettenrichtung, eingebettetes Diagramm) als Funktion der antiferromagnetischen Kopplung $J_\perp > 0$ für verschiedene Werte der frustrierenden Kopplung J_2 .

Mode im Spektrum $\omega_{\mathbf{q}}$ für den magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}^{AFM} = (0, \pi, \pi)$, siehe Abbildung 3.5. Die Dispersionsrelation ist für kleine Werte von $\mathbf{q} \approx \Gamma$ linear, gleichbedeutend damit, dass tiefliegende Anregungen durch die Spinwellengeschwindigkeiten v_x, v_y und v_z bestimmt sind. Diese ergeben sich nach den Gleichungen (3.69), (3.70) und (3.71) nichttrivial aus mehreren Korrelationsfunktionen. Dennoch zeigt sich aus der analytischen Form, dass die Spinwellengeschwindigkeiten konsistenterweise für $J_\perp \rightarrow 0$ verschwinden.¹⁸ In Abbildung 3.6 erkennt man, dass die Spinwellengeschwindigkeit v_x in Kettenrichtung eine wurzelförmige Abhängigkeit $v_x \sim \sqrt{J_\perp}$ von der Zwischenkettenkopplung aufweist. Reduziert die frustrierende Kopplung J_2 einerseits die Spinwellengeschwindigkeit v_x in Kettenrichtung offensichtlich, so ist deren Einfluss auf $v_y = v_z$ gering. Es zeigt sich, dass $v_y = v_z$ linear von aJ_\perp abhängen (dabei variiert der Parameter zwischen $a \approx 1.57$ ($J_2 = 0$) und $a \approx 1.60$ ($J_2 = 0.23$), der über eine lineare Regression erhältlich ist). Der bezüglich der Ordnung destruktive Einfluss von Frustration zeigt sich in Abbildung 3.7. Sowohl die Spinwellengeschwindigkeit v_x , als auch die Spinsteifigkeit ρ_x nehmen mit J_2 ab. Es zeigt sich, dass am klassischen Phasenübergangspunkt J_2^{cl} die Spinsteifigkeit verschwindet und der ferromagnetische GS zusammenbricht. Demgegenüber steht die Spinwellengeschwindigkeit v_x , die dort für $J_\perp > 0$ endlich bleibt und einen Hinweis auf einen ordnungsstabilisierenden Mechanismus für den AFM, über den Punkt $J_2^c > J_2^{cl}$ hinaus, darstellen kann. Der magnetische Ordnungsparameter M des Ordnungsvektors

¹⁸Für v_y und v_z ist dies unmittelbar offensichtlich. Bei v_x muss beachtet werden, dass wegen $J_1 = -1$ und $J_2 < J_2^c$ bei $J_\perp = 0$ gilt: $p_{(m \neq 0)nl} = \frac{1}{4}(1 - \delta_{n,0})(1 - \delta_{l,0})$.

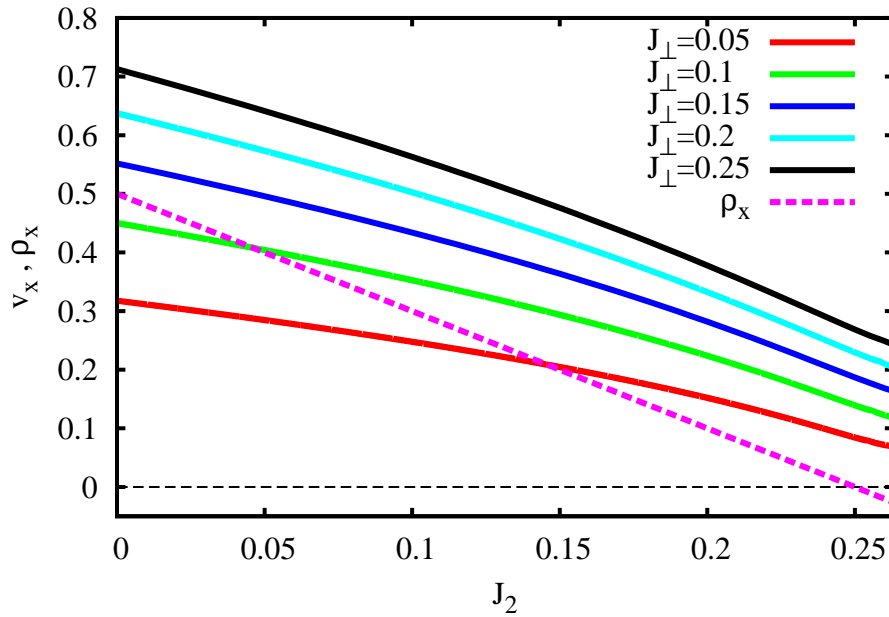


Abbildung 3.7.: Spinwellengeschwindigkeit im GS v_x (durchgezogene Linien, $J_\perp > 0$) und Spinsteifigkeit ρ_x (gestrichelte Linie, $J_\perp < 0$) in Kettenrichtung als Funktion der frustrierenden Kopplung J_2 für verschiedene Werte der J_\perp . Dabei ist $\rho_x = (|J_1| - 4J_2)/2$ unabhängig von J_\perp .

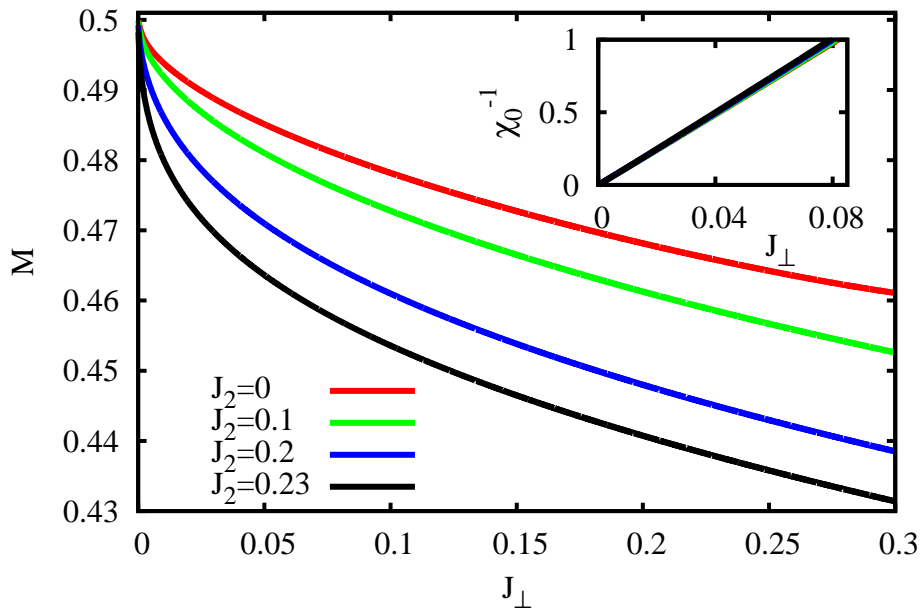


Abbildung 3.8.: Magnetischer Ordnungsparameter M im GS und die inverse uniforme Suszeptibilität χ_0^{-1} (eingebettetes Diagramm) als Funktion der Zwischenkettenkopplung $J_\perp > 0$ für verschiedene Werte der frustrierenden Zwischenkettenkopplung J_2 . Die Kurven für $\chi_0^{-1}(J_\perp)$ liegen nahezu übereinander.

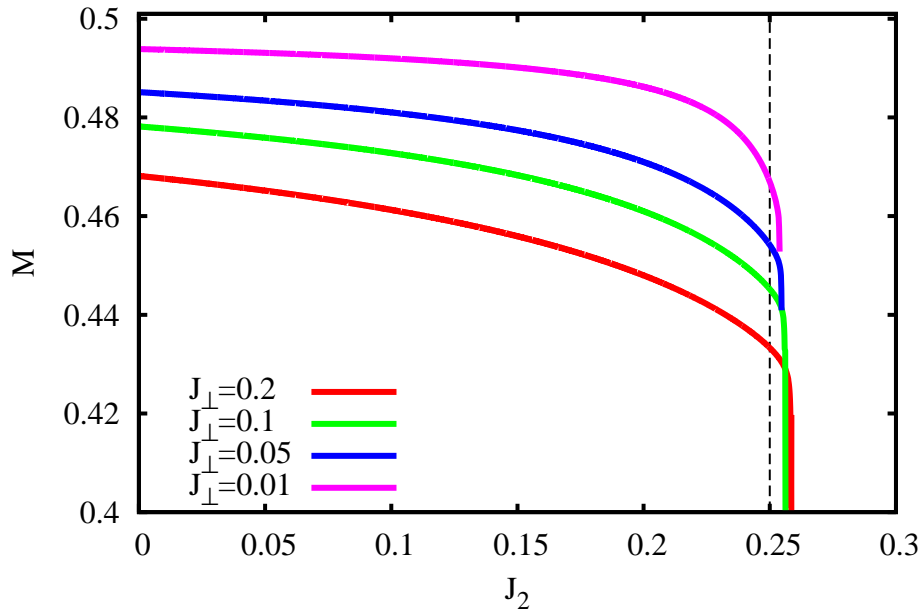


Abbildung 3.9.: Magnetischer Ordnungsparameter M im GS als Funktion der frustrierenden Kopplung J_2 für verschiedene Werte der Zwischenkettenkopplung $J_\perp > 0$.

$\mathbf{Q}^{AFM} = (0, \pi, \pi)$ ist als Funktion der Zwischenkettenkopplung in Abbildung 3.8 dargestellt. Beginnend mit dem Grenzfall isolierter Ketten, für die $M = 1/2$ ($\chi_0^{-1}(J_\perp \rightarrow 0) \rightarrow 0$) gilt, wird der Ordnungsparameter mit dem Zuwachs von Quantenfluktuationen durch die antiferromagnetische Kopplung $J_\perp > 0$ reduziert. Der negative Anstieg ist hierbei im Bereich kleiner Kopplungen J_\perp am größten und wird durch das Einführen von Frustration, die selbstverständlich magnetischer Ordnung entgegenwirkt, über J_2 noch verstärkt. Die Abhängigkeit der inversen Suszeptibilität $\chi_0^{-1}(T = 0, J_\perp, J_2)$, siehe eingebettetes Diagramm in Abbildung 3.8, von J_2 ist insignifikant, wohingegen eine lineare Abhängigkeit von J_\perp gefunden wurde. Eine lineare Regression der Form $\chi_0^{-1} = aJ_\perp$ der Daten aus Abbildung 3.8 liefert $a = 12.25, 12.35, 12.56$ und 12.69 für die Parameterwerte $J_2 = 0, 0.1, 0.2$ und 0.23 .

Als nächstes wird der magnetische Ordnungsparameter in Abhängigkeit von J_2 betrachtet, siehe Abbildung 3.9. Die frustrierende Kopplung $J_2 \rightarrow J_2^c$ führt zu einer Reduktion von M . Interessanterweise ist aber der kritische Wert J_2^c selbst eine Funktion der Kopplung $J_\perp > 0$. Aus den numerischen Daten erhält man beispielsweise $J_2^c \approx 0.256$ für $J_\perp = 0.1$ und $J_2^c \approx 0.258$ für $J_\perp = 0.2$ und damit einen gegenüber den isolierten Ketten ($J_\perp = 0, J_2^c = 1/4$) größeren Wert. Die magnetisch geordnete Phase ist also mit der Anwesenheit einer endlichen antiferromagnetischen Zwischenkettenkopplung durch Quantenfluktuationen weiter ausgedehnt. Ein analoges Verhalten wurde ebenso für das quasizweidimensionale Modell innerhalb der CCM gefunden ($J_2^c > J_2^{cl}$ zum Beispiel für die Parameter des Modells $J_{\perp,y} > 0$ und $J_{\perp,z} = 0$, siehe [79]).

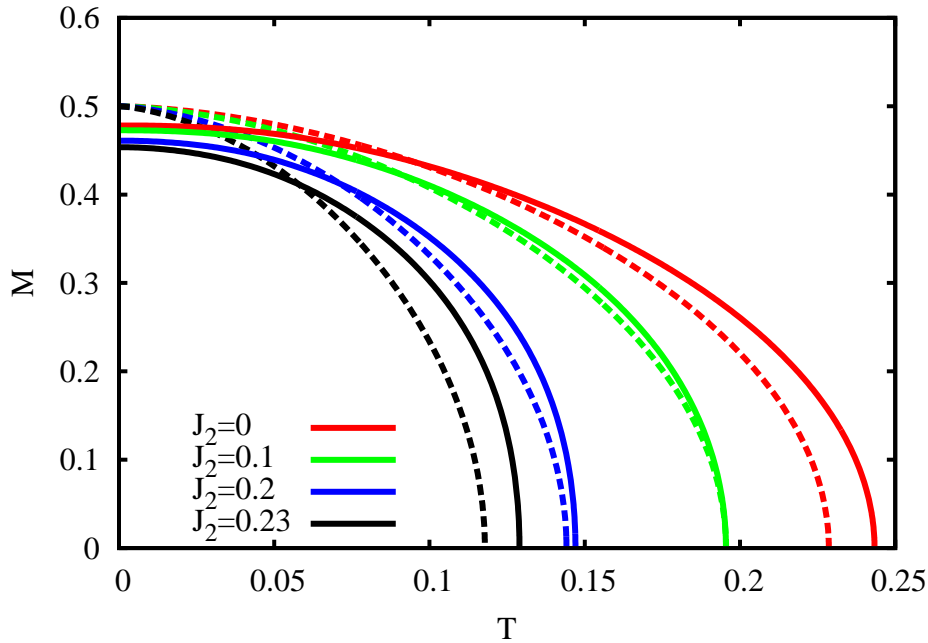


Abbildung 3.10.: Temperaturabhängigkeit des magnetischen Ordnungsparameters M für ein antiferromagnetisches $J_{\perp} = 0.1$ (durchgezogene Linien) und ein ferromagnetisches $J_{\perp} = -0.1$ (gestrichelte Linien) bei ausgewählten Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Kette.

RESULTATE BEI ENDLICHEN TEMPERATUREN $T > 0$

Für endliche kleine Temperaturen $T \approx 0$ ist die Reduktion des Ordnungsparameters M durch thermische Fluktuationen gering, siehe Abbildung 3.10. Für ferromagnetische Zwischenkettenkopplungen $J_{\perp} < 0$ zeigt sich zudem ein Temperaturverlauf in der Nähe der jeweiligen kritischen Temperatur T_c , der im Vergleich zum Verlauf bei einer antiferromagnetischen Kopplung $J_{\perp} > 0$ steiler verläuft. Der Verlauf in der Nähe des Phasenübergangspunktes $M(T \rightarrow T_c) \rightarrow 0$ liefert ein bereits in früheren Arbeiten für unfrustrierte ($J_2 = 0$) Spinsysteme gefundenes Resultat, nämlich, dass die Anwesenheit antiferromagnetischer Zwischenkettenkopplungen eine größere Übergangstemperatur zur Folge hat: $T_c(J_2 = 0, J_{\perp} < 0) < T_c(J_2 = 0, J_{\perp} > 0)$ [54, 106]. In Abbildung 3.11 erkennt man außerdem, dass Frustration durch $J_2 > 0$ erwartungsgemäß lediglich zu einer Reduzierung der Temperatur T_c führt. Die Parameter J_2 und J_{\perp} beeinflussen den Wert der Übergangstemperatur in unterschiedliche Richtungen, was zu facettenreichen Abhängigkeiten führt, siehe Abbildung 3.11. Als Indikator für Frustration wird oftmals das Verhältnis f zwischen der simplen Curie-Weiß-Temperatur Θ_{CW} ($\chi_0(T > \Theta_{CW}) \sim 1/(T - \Theta_{CW})$) und der kritischen Temperatur T_c genutzt [107–109]. Bei einem konventionellen dreidimensionalen FM beziehungsweise AFM bestimmt Θ_{CW} , als Maßzahl für die Stärke der Austauschkopplungen, die Größenordnung der kritischen Temperatur, und ein Wert von $f \sim 1$ ist typisch. Die Erwartungshaltung ist, dass Frustration tendenziell die Ordnung-

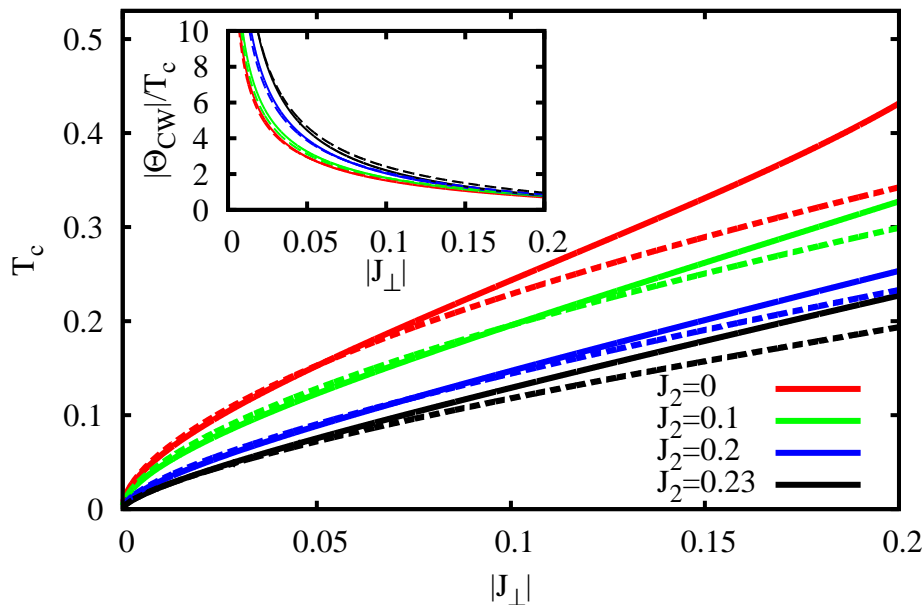


Abbildung 3.11.: Kritische Temperaturen T_c als Funktion der Kopplung J_\perp (ferromagnetisch - gestrichelt; antiferromagnetisch - durchgezogen) bei ausgewählten Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Kette. Eingebettetes Diagramm: Verhältnis $f = |\Theta_{CW}/T_c|$ von Curie-Weiss Temperatur $\Theta_{CW} = -\frac{1}{2}(J_1 + J_2 + 2J_\perp)$ und kritischer Temperatur T_c .

stemperatur reduziert und ein Frustrationsparameter von $f \gtrsim 5$ auf starke Frustration hinweist [107]. Es ist anzumerken, dass auch im Falle kleiner Ordnungstemperaturen durch schwache Zwischenkettenkopplungen, auch für unfrustrierte beziehungsweise schwach frustrierte Konfigurationen, ein $f \gg 1$ zu erwarten ist. Θ_{CW} kann beispielsweise über eine HTE der Ordnung 2 bestimmt werden.¹⁹ Die eingebetteten Diagramme in den Abbildungen 3.11 und 3.12 zeigen die jeweiligen Abhängigkeiten. Es zeigt sich, dass f auch für verschwindende Kopplungen $|J_\perp| \rightarrow 0$, unabhängig vom Grad der Frustration, divergiert, siehe Abbildung 3.11. So ergibt sich beispielsweise, dass das Verhältnis f bereits für $|J_\perp| < 0.05$ sehr groß ist. Für $J_2 = 0$ ergibt sich $f > 5$ unterhalb einer Zwischenkettenkopplung von $J_\perp \lesssim 0.022$. Dies liegt an der artifiziellen Eigenschaft $\Theta_{CW}(|J_\perp| \rightarrow 0) \neq 0$ (in diesem Limes sollte $\chi_0(|J_\perp| \rightarrow 0, T \rightarrow 0) \rightarrow \infty$ gelten), die im Widerspruch zum Mermin-Wagner Theorem [66], das von der RGM jedoch erfüllt wird $T_c(|J_\perp| \rightarrow 0) \rightarrow 0$, steht. Bei Annäherung von $J_2 \rightarrow J_2^c$ an den kritischen Wert zeigt sich ein enormer Anstieg von $f > 10$, siehe Abbildung 3.12. Es ist festzustellen, dass der Indikator f nicht eindeutig auf die Anwesenheit von Frustration schließen lässt, obgleich der Anstieg von f als Funktion der frustrierenden Kopplung $J_2 \rightarrow J_2^c$ um ein Vielfaches stärker ausfällt. Kleine Werte von $J_2 \simeq 0$ führen, wie in Abbildung 3.12 ersichtlich, zu einer leichten Reduzierung der kritischen Temperatur T_c . Nähert sich J_2 dem kritischen Wert J_2^c , bei der der ferromagnetische Grundzustand innerhalb der Kette zusammenbricht, so nimmt die

¹⁹Die Entwicklung von $\chi_0 \propto \frac{\beta c_1}{1 - \frac{\beta c_2}{c_1}}$ führt über $\chi_0 \approx c_1 \beta + c_2 \beta^2$ auf $\Theta_{CW} = \frac{c_2}{c_1}$.

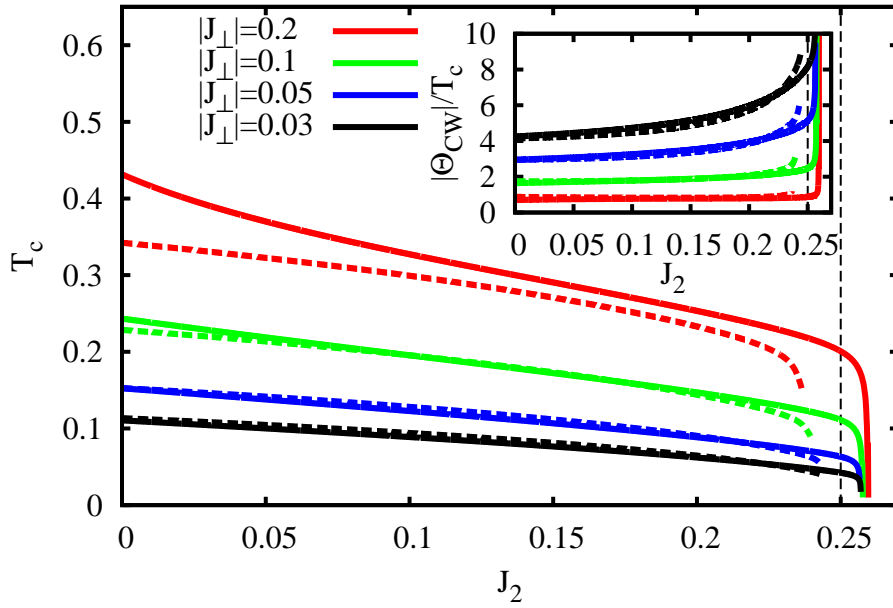


Abbildung 3.12.: Kritische Temperaturen T_c als Funktion der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Kette bei ausgewählten Werten der Kopplung J_\perp (ferromagnetisch - gestrichelt; antiferromagnetisch - durchgezogen). Eingebettetes Diagramm: Verhältnis $f = |\Theta_{CW}/T_c|$ von Curie-Weiss Temperatur $\Theta_{CW} = -\frac{1}{2}(J_1 + J_2 + 2J_\perp)$ und kritischer Temperatur T_c .

kritische Temperatur T_c drastisch ab. In Übereinstimmung mit den vorherigen Resultaten aus Kapitel 3.4.2 führt eine antiferromagnetische Zwischenkettenkopplung $J_\perp > 0$ dazu, dass endliche Ordnungstemperaturen oberhalb des klassischen Phasenübergangspunktes gefunden werden können. Die ausgewählten Korrelationsfunktionen $\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{R}} \rangle$ in Abbildung 3.13 zeigen für niedrige Temperaturen die zu erwartenden Vorzeichenverhältnisse entsprechend des Ordnungsvektors \mathbf{Q} . Für höhere Temperaturen dominieren offensichtlich die Korrelationen entlang der Kette ($\mathbf{R} = (n, 0, 0)$) und die Korrelationen zwischen den Ketten verlieren zunehmend an Relevanz. Dies ist gleichbedeutend damit, dass die Beschreibung der SRO des Systems durch isolierte Ketten in der paramagnetischen Phase eine gute Näherung darstellt. Vergleicht man die grünen Kurven in Abbildung 3.13 so fällt auf, dass der wesentliche Einfluss der Kopplung $J_2 > 0$ bei endlichen Temperaturen in einer Reduktion der Korrelation übernächster Nachbarn in Kettenrichtung besteht. Die Korrelationslängen in Abbildung 3.14 verdeutlichen den aufgezeigten qualitativen Unterschied von Korrelationen entlang der Ketten ($\xi_{\mathbf{Q}}^{(x)}$) und zwischen den (schwach gekoppelten) Ketten ($\xi_{\mathbf{Q}}^{(y=z)}$). Im unfrustrierten Fall fallen die Korrelationslängen in y - bzw. z -Richtung $\xi_{\mathbf{Q}}^{(y=z)}(J_2 = 0, T > T_c) > \xi_{\mathbf{Q}}^{(x)}(J_2 = 0, T > T_c)$ im paramagnetischen Bereich in Abbildung 3.14 sehr schnell auf einen Gitterabstand $\xi_{\mathbf{Q}}^{(y=z)} \sim 1$ ab. Demgegenüber drückt sich die Quasieindimensionalität des magnetischen Verhaltens in diesem Bereich durch eine deutlich größere Korrelationslänge $\xi_{\mathbf{Q}}^{(x)}$ aus. Durch Frustration ($J_2 = 0.2$, bei den gewählten Parameterverhältnissen in Abbildung 3.14) verschwinden diese Unter-

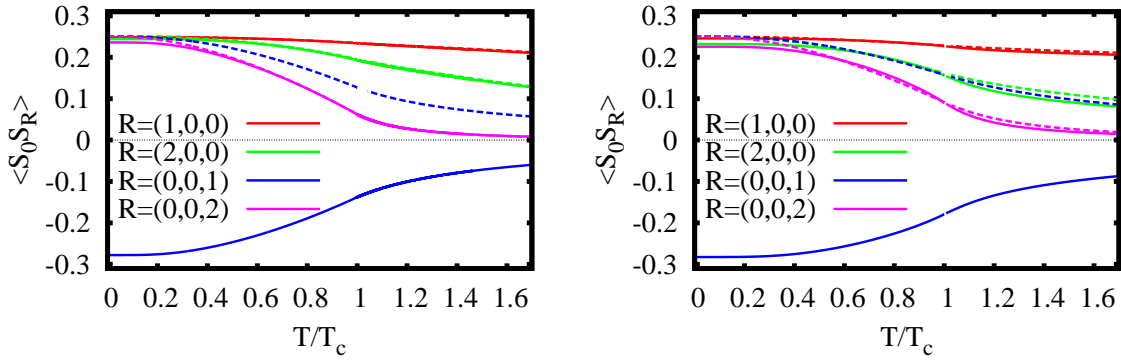


Abbildung 3.13.: Spin-Spin Korrelationsfunktionen als Funktion der normierten Temperatur T/T_c für $|J_\perp| = 0.1$ (antiferromagnetisch - durchgezogen; ferromagnetisch - gestrichelt) und für $J_2 = 0$ (links) beziehungsweise $J_2 = 0.2$ (rechts). Die gestrichelten Linien und die durchgezogenen Linien sind, außer für $\mathbf{R} = (0, 0, 1)$, nah beieinander.

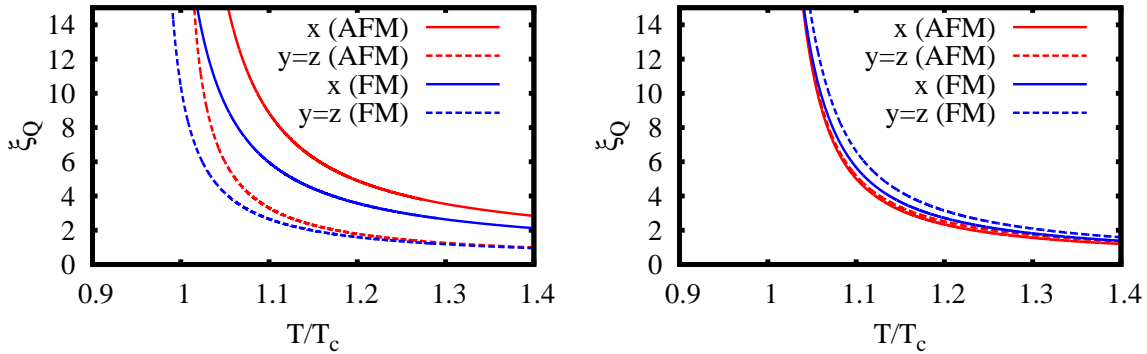


Abbildung 3.14.: Korrelationslängen $\xi_{\mathbf{Q}}$ als Funktion der normierten Temperatur T/T_c für $J_2 = 0$ (links) beziehungsweise $J_2 = 0.2$ (rechts) (ferromagnetisches $J_\perp = -0.2$: blau; antiferromagnetisches $J_\perp = 0.2$: rot; durchgezogene Linien: Korrelationslänge entlang der Kette $\xi_{\mathbf{Q}}^{(x)}$ („ x “), gestrichelte Linien: Korrelationslänge senkrecht zur Kettenrichtung $\xi_{\mathbf{Q}}^{(y=z)}$ („ $y = z$ “)).

schiede und die Korrelationslängen bilden ein schmales Bündel oberhalb der kritischen Temperatur T_c ($\xi_{\mathbf{Q}}^{(x)} \sim \xi_{\mathbf{Q}}^{(y=z)}$). Dies lässt sich durch das Unterdrücken langreichweitiger Korrelationen durch Frustration in Kettenrichtung verstehen. Die Eigenschaften der Suszeptibilität $\chi_0(T)$ bei einem (A)FM als Funktion der Temperatur sind in Abbildung 3.15 dargestellt. Der Einfluss von Frustration ist in beiden Fällen deutlich vorhanden. Das divergente Verhalten von χ_0 beim FM in der Umgebung der Polstelle bei $T = T_c$, siehe eingebettetes Diagramm in Abbildung 3.15, wird durch Frustration über J_2 zu höheren Werten von T/T_c verschoben. Für den AFM sind Höhe $\chi_0(T_{max})$ und Ort des Maximums T_{max} ein typisches Charakteristikum. Das Verhältnis von T_{max}/T_c als Funktion von J_2 weist eine Verschiebung des Maximums in Richtung höherer Temperaturen T/T_c auf. So ist beispielsweise $T_{max}/T_c \simeq 1.05$ für $J_2 = 0$ und $T_{max}/T_c \simeq 1.23$ für $J_2 = 0.2$. Eine grafische Darstellung weiterer Punkte ist in Abbildung 3.15 gegeben. Es ist anzumerken,

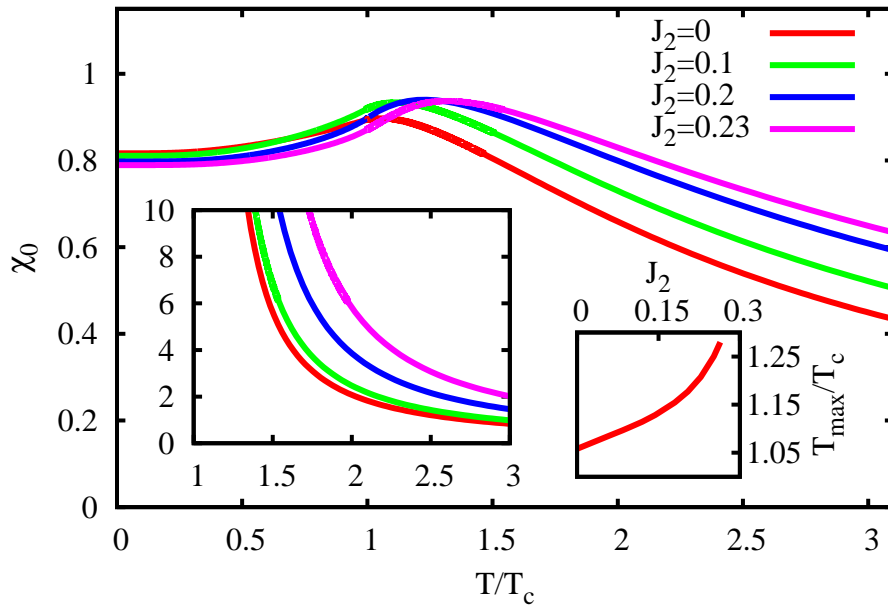


Abbildung 3.15.: Uniforme statische Suszeptibilität χ_0 als Funktion der normierten Temperatur T/T_c bei ausgewählten Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Kette und antiferromagnetisches $J_\perp = 0.1$. Linkes eingebettetes Diagramm: Uniforme statische Suszeptibilität χ_0 als Funktion der normierten Temperatur T/T_c bei ausgewählten Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Kette und ferromagnetisches $J_\perp = -0.1$. Rechtes eingebettetes Diagramm: Position des Maximums der uniformen statischen Suszeptibilität χ_0 , T_{\max}/T_c als Funktion von J_2 für ein antiferromagnetisches $J_\perp = 0.1$.

dass der Einfluss von J_2 auf den Temperaturverlauf der Suszeptibilität unterhalb der kritischen Temperatur $T < T_c$ geringer ausfällt. In diesem Bereich weist die Suszeptibilität außerdem die typische Absenkung mit der Reduzierung der Temperatur auf. Der Einfluss der antiferromagnetischen Kopplung $J_\perp > 0$ auf das Temperaturprofil der Suszeptibilität χ_0 ist ausgeprägt, siehe Abbildung 3.16. Es fällt auf, dass das Maximum $\chi_0(T_c)$ am Punkt der kritischen Temperatur bei kleinen Werten von J_\perp größer wird. Dies lässt sich relativ einfach durch den Limes isolierter Ketten verstehen. Für $J_\perp \rightarrow 0$ und $J_2 < J_2^c$ ordnet die isolierte Kette ferromagnetisch. Die kritische Temperatur lässt sich dann mit $T_c(J_\perp = 0) = 0$ angeben. In diesem Limes formt sich also ein Pol in der Suszeptibilität: $\lim_{J_\perp \rightarrow 0} \chi_0(T_c) \rightarrow \infty$. Die Spinsteifigkeiten, siehe Gleichungen (3.72), (3.73) und (3.74), sind in Abbildung 3.17 und die Spinwellengeschwindigkeiten, siehe Gleichungen (3.69), (3.70) und (3.71), sind in Abbildung 3.18 dargestellt. Das typische Verhalten dieser Größen im Temperaturverlauf ist eine Abnahme mit einem Anstieg der Temperatur T/T_c , siehe hierzu beispielsweise [59, 110–115]. In [115] wurde gefunden, dass Frustration zu einem gegensätzlichen Verhalten der Spinsteifigkeit bei endlichen Temperaturen und somit zu einem temperaturgetriebenen Anstieg dieser Größen führen kann. Ein analoges Verhalten für $J_2 \rightarrow J_2^c$ zeigt sich bei ρ_x in Abbildung 3.17. Für ein dreidimensionales J_1 - J_2 -Heisenberg-Modell, dem frustrierten FM auf dem kubisch-raumzentrierten Gitter,

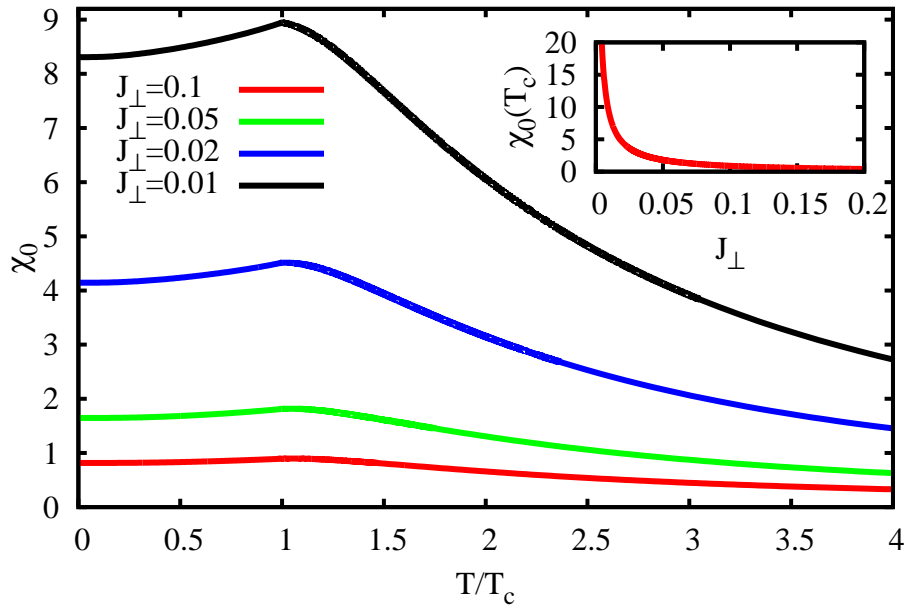


Abbildung 3.16.: Uniforme statische Suszeptibilität χ_0 als Funktion der normierten Temperatur T/T_c bei ausgewählten Werten von J_\perp (antiferromagnetisch) und $J_2 = 0$. Eingebettetes Diagramm: Der Wert der uniformen statischen Suszeptibilität am Punkt der kritischen Temperatur $\chi_0(T_c)$ als Funktion von J_\perp (antiferromagnetisch) für $J_2 = 0$.

wird weiter unten in Kapitel 3.6 ein analoges Verhalten für die Spinsteifigkeit gefunden. Für den AFM zeigt sich hier ein ähnliches Verhalten in der Spinwellengeschwindigkeit v_x , siehe Abbildung 3.18. Ebenso wie beim FM kann dieses ungewöhnliche Verhalten gegebenenfalls ebenso als Indikator für Frustration in AFM dienen. Die spezifische Wärme c_V ist in Abbildung 3.19 für zwei Werte von J_\perp dargestellt. In allen Fällen zeigt sich am Punkt der kritischen Temperatur eine höckerartige Spitze, die mit dem Grad der Frustration und schwächerer Kopplung J_\perp schärfer ausfällt. Oberhalb des thermischen Phasenübergangs zweiter Ordnung zeigt sich ein von der isolierten ferromagnetischen Kette bekanntes breites Maximum in der spezifischen Wärme, das durch eine stärkere Kopplung $|J_\perp| \sim 0.2$ in den Hintergrund rückt. Für kleinere Werte von $|J_\perp| \sim 0.05$ zeigt sich die Irrelevanz des Vorzeichens von J_\perp für den Bereich $T \gtrsim T_c$.

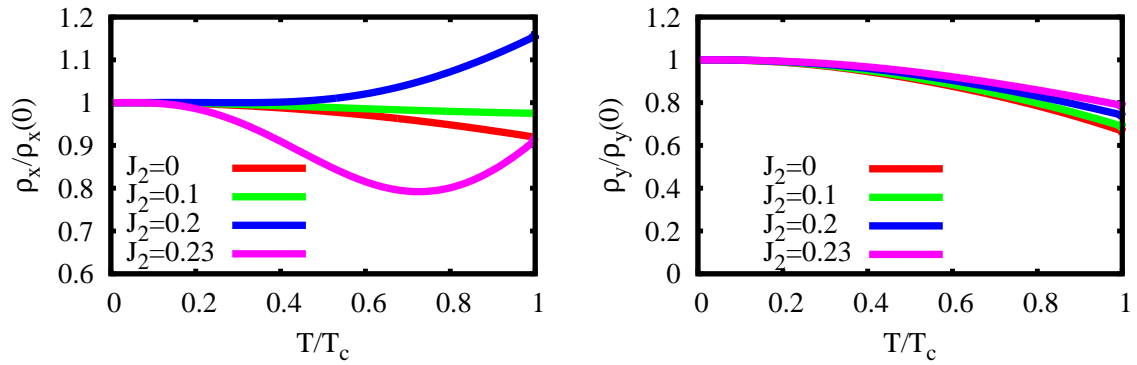


Abbildung 3.17.: SpinstEIFigkeit ρ_x (links) beziehungsweise $\rho_y = \rho_z$ (rechts) skaliert auf den Wert bei $T = 0$ als Funktion der normierten Temperatur T/T_c für ein ferromagnetisches $J_\perp = -0.1$ bei verschiedenen Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Ketten.

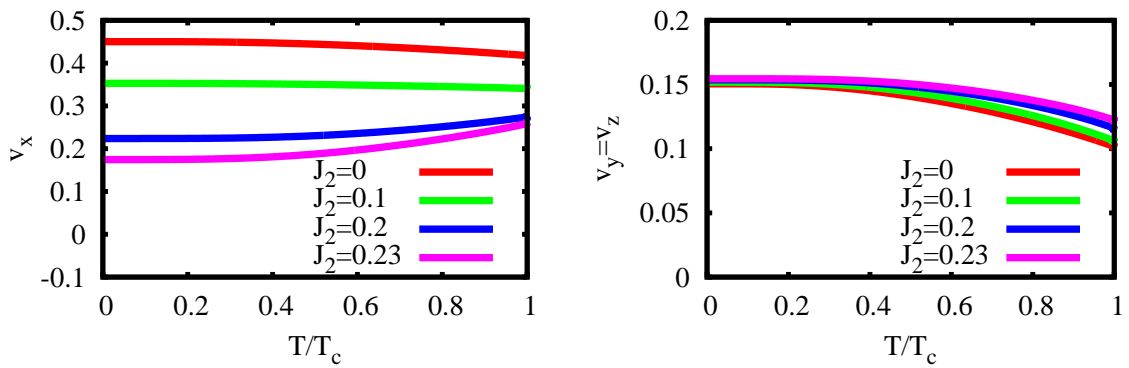


Abbildung 3.18.: Spinwellengeschwindigkeit v_x (links) beziehungsweise $v_y = v_z$ (rechts) als Funktion der normierten Temperatur T/T_c für ein antiferromagnetisches $J_\perp = 0.1$ bei verschiedenen Werten der frustrierenden Kopplung J_2 entlang der Ketten.

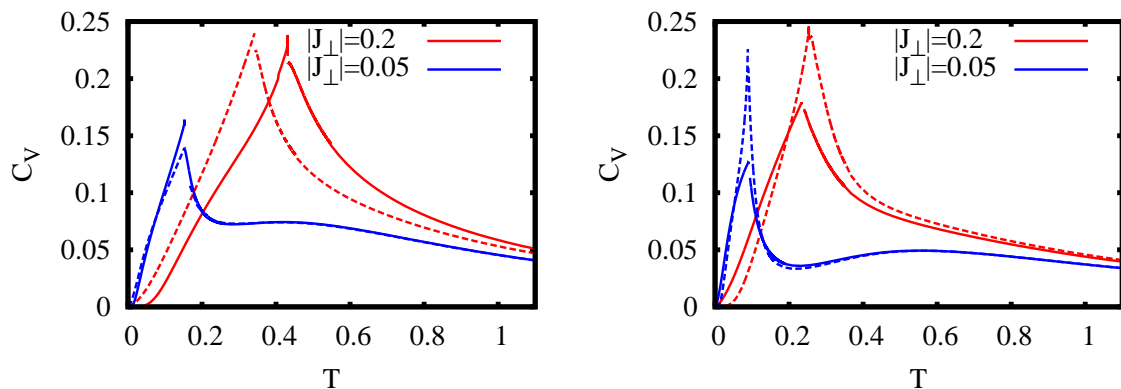


Abbildung 3.19.: Temperaturabhängigkeit der spezifischen Wärme c_V für ausgewählte Werte von J_\perp und $J_2 = 0$ (links) beziehungsweise $J_2 = 0.2$ (rechts) (gestrichelte Linien: ferromagnetisches $J_\perp < 0$; durchgezogene Linien: antiferromagnetisches $J_\perp > 0$).

Zusammenfassung Kapitel 3.4: Frustrierte Spin-Ketten

In Kapitel 3.4.1 wurde zunächst der Spiralwinkel ϕ^{cl} der frustrierten klassischen isolierten J_1 - J_2 Spin-Kette im Heisenberg-Modell diskutiert. Anschließend wurde der normierte Strukturfaktor $S_q/S(S+1)$ in der HTE für verschiedene Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 5, 100$ analytisch bis zur 9. Ordnung entwickelt und auf seine Maxima untersucht. Der klassische Spiralwinkel wurde im linearen Entwicklungsterm wiedergefunden. Höhere Terme führten zu einer komplizierten Abhängigkeit des Quantenwinkels $\phi(S, T)$ von Spinquantenzahl und Temperatur. Der Spiralwinkel im Fall $J_1 = \pm 1$ wurde für mehrere Spinquantenzahlen bestimmt und mit den CCM-Daten für $T = 0$ verglichen. Hierbei zeigte sich, dass die HTE in der Lage ist, Aussagen über die sich entwickelnde favorisierte magnetische Ordnung im GS zu treffen. In Kapitel 3.4.2 wurde mit der RGM der Einfluss von Fluktuationen bei Anwesenheit kleiner (anti-)ferromagnetischer Zwischenkettenkopplungen $J_{\perp,y}$ und $J_{\perp,z}$ im extremen Quantenfall $S = 1/2$ untersucht ($J_1 = -1$). Dabei zeigte sich einerseits erwartungsgemäß eine Reduktion des semiklassischen Ordnungsparameters M im GS für antiferromagnetische Kopplungen $J_{\perp,y} = J_{\perp,z} = J_{\perp} > 0$ mit Zunahme der frustrierenden Kopplung $J_2 > 0$. Andererseits führte diese Zunahme zu einer von der Zwischenkettenkopplung $J_{\perp} > 0$ abhängigen kritischen Wechselwirkung $J_2^c \approx 0.256$ (0.258) ($J_{\perp} = 0.1$ (0.2)), die gegenüber dem Wert isolierter Ketten erhöht ist ($J_2^c(J_{\perp} \leq 0) = J_2^{cl} = 1/4$). Große Werte von J_2 führten zu dem bemerkenswerten Resultat einer mit der Temperatur im Bereich $T \lesssim T_c$ steigenden Spinwellengeschwindigkeit v_x . Die Abhängigkeiten der kritischen Temperatur T_c als Funktion von J_2 (J_{\perp}) wurden für einige Werte von J_{\perp} (J_2) ermittelt und dargestellt. Insbesondere zeigte sich, dass sich vor allem bei großen antiferromagnetischen Werten von $J_{\perp} > 0$ und gleichzeitig großen Werten von J_2 eine fluktuationsbedingt größere kritische Temperatur T_c etabliert als bei ferromagnetischen Werten $J_{\perp} < 0$.

3.5 Kagome-Gitter

3.5.1 J_1 -Modell: Antiferromagnet

Ein illustratives Beispiel für die durch Geometrie des Festkörpers bedingte Frustration, man spricht auch von geometrischer Frustration, ist das einzelne Dreieck mit antiferromagnetischer Austauschwechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn. Der AFM auf dem Kagome-Gitter dient als typisches Beispiel für einen hochgradig frustrierten AFM mit einer Wechselwirkung, die auf nächste Nachbarn beschränkt ist.

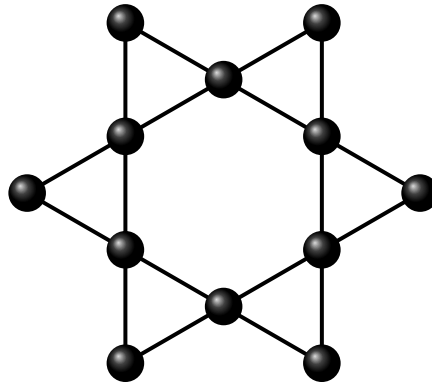


Abbildung 3.20.: Ausschnitt des Kagome-Gitters

Das Gitter ist darstellbar durch das Dreiecksgitter (als zugrundeliegendes Bravais-Gitter) mit einer dreiatomigen Basis. Anders ausgedrückt besteht das Kagome-Gitter aus Dreiecken gemeinsamer Eckpunkte, man spricht hierbei auch vom sogenannten *corner-sharing* dieser Polygone, siehe Abbildung 3.20. Im Gegensatz zum Dreiecksgitter mit der Koordinationszahl $z = 6$ ist die Anzahl nächster Nachbarn beim Kagome-Gitter $z = 4$. Die bezüglich der magnetischen Ordnung destabilisierenden Mechanismen sind durch diese Umstände verstärkt. Das quasizweidimensionale magnetische Material Herbertsmithit $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ kann gut durch ein $S = 1/2$ -Heisenberg-Modell beschrieben werden und ist ein vielversprechender Kandidat einer experimentellen Spin-Flüssigkeit, siehe [116–121]. Festkörper mit einer Kagome-Struktur und mit größeren Werten von S sind zum Beispiel *deuterium-jarosite* $(\text{D}_3\text{O})\text{Fe}_3(\text{SO}_4)_2(\text{OD})_6$ mit Spin $S = 5/2$, siehe [122], und *Cr-jarosite* $\text{KCr}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$ mit Spin $S = 3/2$, siehe [123].

Dieses für den extremen Quantenfall vielfach untersuchte Modell zeichnet sich durch die beschränkte Anzahl anwendbarer Methoden und deren limitierter Präzision hinsichtlich der gewonnenen (teilweise qualitativ unterschiedlichen) Resultate aus. Der Großteil der Untersuchungen beschäftigt sich mit den Eigenschaften des GS, für den die Spinquantenzahl einen grundlegenden Unterschied macht. Weniger im Fokus theoretischer Untersuchungen steht bisher die Thermodynamik $T > 0$ für höhere Spinquantenzahlen $S \geq 1/2$. Dies soll in diesem Kapitel mit Hilfe der RGM erfolgen. Dafür wird das Heisenberg-Modell mit

antiferromagnetischer Wechselwirkung ($J > 0$) zwischen nächsten Nachbarn

$$\hat{H} = J \sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta}, \text{ mit } \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha}^2 = S(S+1) \quad (3.89)$$

mit den Translationsvektoren des direkten Gitters $\mathbf{a}_1 = (0, 2)^T$ und $\mathbf{a}_2 = (\sqrt{3}, 1)^T$ betrachtet. Einige Ergebnisse der nachfolgenden Untersuchungen wurden in [124] publiziert. Die klassische Grundzustandsmannigfaltigkeit der vielfach entarteten Zustände ist gekennzeichnet durch die Gesamtheit aller möglichen Kombinationen des Winkels nächster Nachbarn von $\phi = 2\pi/3$. Klassisch ($S \rightarrow \infty$) ergibt sich damit die normierte Grundzustandsenergie durch den gemeinsamen Winkel der nächsten Nachbarn zu

$$\lim_{S \rightarrow \infty} \frac{U(T=0)}{N\mathcal{N}S(S+1)} = \lim_{S \rightarrow \infty} \frac{JS^2}{N\mathcal{N}S(S+1)} \underbrace{\sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle} \cos(\phi)}_{-\frac{z}{4}N\mathcal{N}} = -J. \quad (3.90)$$

Trotz zahlreicher Arbeiten ist die Natur des GS bei Anwesenheit von starken Quantenfluktuationen jedoch bis heute ungeklärt. Für den Fall $S = 1/2$ besteht der Konsens, dass es sich bei $T = 0$ um eine Quantenspinflüssigkeit handelt. Wesentlich hierfür ist das Fehlen von LRO. Ob es sich hierbei um einen GS mit einer Lücke zur ersten Anregung handelt, man spricht auch von einer Spinflüssigkeit mit *gap*, ist noch immer eine offene Frage. Der charakteristischen Symmetrie einiger Kandidaten für den GS, welche die magnetische SRO gut beschreiben, lassen sich magnetische Ordnungsvektoren zuordnen. Zwei besonders wichtige klassische Zustände, siehe hierzu zum Beispiel [125–127], sind in Abbildung 3.21 dargestellt. Im extremen Quantenfall von $S = 1/2$ wird die semiklassische Konfiguration nach Abbildung 3.21 (links) bevorzugt, siehe zum Beispiel [128]. Da die magnetische Elementarzelle hier der des direkten Gitters entspricht, hat sich die Bezeichnung „ $q = 0$ “ Zustand etabliert. Es zeigt sich, dass sich sowohl durch Quantenfluktuationen, als auch durch thermische Fluktuationen $T > 0$ die Symmetrien der bevorzugten SRO beeinflussen lassen. So konnte beispielsweise im Rahmen einer nichtlinearen Spinwellentheorie, siehe hierzu [129], bei $T > 0$, aber auch bei $T = 0$ mit steigender Spinquantenzahl im Rahmen der CCM, siehe [128], das Favorisieren einer anderen Grundzustandskonfiguration gezeigt werden. Die magnetische Elementarzelle dieses Zustands ist dreimal so groß wie die geometrische Elementarzelle, weswegen sich die Bezeichnung des sogenannten „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustands durchgesetzt hat. Eine Möglichkeit, diese koplanaren Zustände voneinander zu unterscheiden, ist gegeben durch die Auswertung der Vektor-Spin-Chiralität $\hat{\mathbf{K}}_{\Delta}^m = 2/(S^2 3\sqrt{3}) \left[\hat{\mathbf{S}}_{m1} \times \hat{\mathbf{S}}_{m2} + \hat{\mathbf{S}}_{m2} \times \hat{\mathbf{S}}_{m3} + \hat{\mathbf{S}}_{m3} \times \hat{\mathbf{S}}_{m1} \right]$ [130]. Den Zuständen lassen sich dann Plaketten unterschiedlicher Vektor-Spin-Chiralität zuweisen, siehe hierzu Abbildung 3.21. So findet man für den „ $q = 0$ “-Zustand senkrecht zur Kagome-Ebene klassisch nur die Komponente 1, wohingegen die Komponenten beim $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Zustand zwischen ± 1 alternieren. Die Selektion einer Klasse von Zuständen einer bestimmten Symmetrie

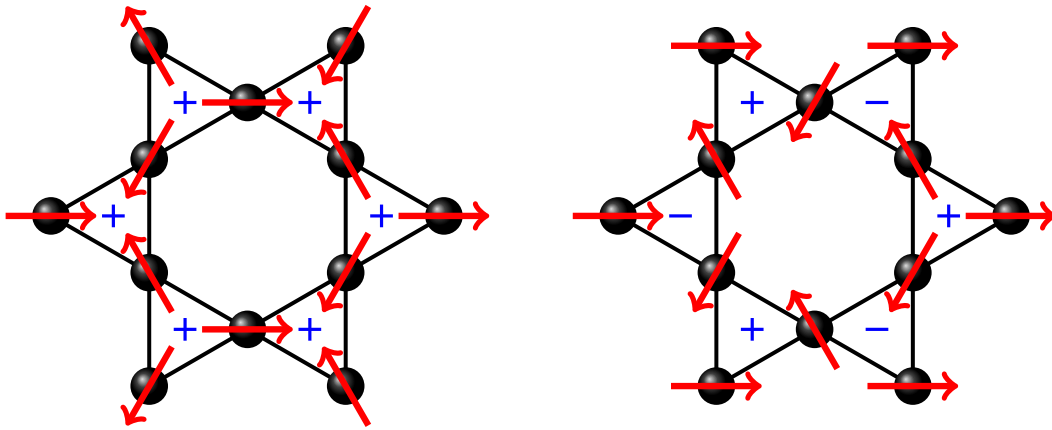


Abbildung 3.21.: Exemplarische Abbildung zweier wichtiger (klassischer) Konfigurationen unterschiedlicher Symmetrie: „ $q = 0$ “-Zustand (links) und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand (rechts).

durch Fluktuationen kann als *order-from-disorder*-Effekt[129, 131] verstanden werden. Die Elementarzelle besteht aus insgesamt $N = 3$ Spins. Somit muss zur Anwendung der RGM nach Kapitel 3.2 also zunächst das Eigenwertproblem zweier 3×3 Matrizen (die Frequenzmatrix $F_{\mathbf{q}}$ nach Gleichung (3.24) und die Momentenmatrix $M_{\mathbf{q}}$ nach Gleichung (3.16)) gelöst werden. Die symmetrischen Matrizen sind gegeben durch

$$M_{\mathbf{q}} = 4Jc_{1,0} \begin{pmatrix} -2 & \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x - q_y}{2}\right) & \cos(q_y) \\ \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x - q_y}{2}\right) & -2 & \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x + q_y}{2}\right) \\ \cos(q_y) & \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x + q_y}{2}\right) & -2 \end{pmatrix}, \quad (3.91)$$

und

$$F_{\mathbf{q}} = \begin{pmatrix} F_{\mathbf{q}}^{1,1} & F_{\mathbf{q}}^{1,2} & F_{\mathbf{q}}^{1,3} \\ F_{\mathbf{q}}^{1,2} & F_{\mathbf{q}}^{2,2} & F_{\mathbf{q}}^{2,3} \\ F_{\mathbf{q}}^{1,3} & F_{\mathbf{q}}^{2,3} & F_{\mathbf{q}}^{3,3} \end{pmatrix}, \quad (3.92)$$

wobei sich hier die Diagonalelemente

$$\frac{3}{2}J^{-2}F_{\mathbf{q}}^{1,1} = 6\tilde{\lambda}_{1,0} + 3 \left(\cos\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right) + \cos(2q_y) + 2 \right) \tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.93)$$

$$+ 6\tilde{\alpha}_{1,1} + 6\tilde{\alpha}_{2,0} + 4S(S+1), \quad (3.94)$$

$$\frac{3}{4}J^{-2}F_{\mathbf{q}}^{2,2} = 3\tilde{\lambda}_{1,0} + 3 \left(\cos\left(\sqrt{3}q_x\right) \cos(q_y) + 1 \right) \tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.95)$$

$$+ 3\tilde{\alpha}_{1,1} + 3\tilde{\alpha}_{2,0} + 2S(S+1),$$

$$\frac{3}{2}J^{-2}F_{\mathbf{q}}^{3,3} = 6\tilde{\lambda}_{1,0} + 3 \left(\cos\left(\sqrt{3}q_x + q_y\right) + \cos(2q_y) + 2 \right) \tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.96)$$

$$+ 6\tilde{\alpha}_{1,1} + 6\tilde{\alpha}_{2,0} + 4S(S+1),$$

und die drei verschiedenen Nebendiagonalelemente

$$(\sqrt{2}J)^{-2}F_{\mathbf{q}}^{1,2} = \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x + 3q_y\right)\right)\tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.97)$$

$$- \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right)\right)\left(\tilde{\lambda}_{1,0} + 3\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0} + \frac{2}{3}S(S+1)\right),$$

$$(\sqrt{2}J)^{-2}F_{\mathbf{q}}^{1,3} = \cos\left(\sqrt{3}q_x\right)\tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.98)$$

$$- \cos(q_y)\left(\tilde{\lambda}_{1,0} + 3\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0} + \frac{2}{3}S(S+1)\right),$$

$$(\sqrt{2}J)^{-2}F_{\mathbf{q}}^{2,3} = \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - 3q_y\right)\right)\tilde{\alpha}_{1,0} \quad (3.99)$$

$$- \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x + q_y\right)\right)\left(\tilde{\lambda}_{1,0} + 3\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0} + \frac{2}{3}S(S+1)\right), \quad (3.100)$$

mit $\tilde{\alpha}_{i,j} = \alpha_{i,j}c_{i,j}$, $\tilde{\lambda}_{i,j} = \lambda_{i,j}c_{i,j}$, $c_{i,j} \equiv c_{\mathbf{R}} = \langle \hat{S}_0^+ \hat{S}_{\mathbf{R}}^- \rangle$ und $\mathbf{R} = i\mathbf{a}_1/2 + j\mathbf{a}_2/2$ angeben lassen. Da Frequenzmatrix und Momentenmatrix kommutieren, lassen sich die gemeinsamen (nicht-normierten) Eigenvektoren $|\gamma\mathbf{q}\rangle$ ($\gamma = 1, 2, 3$) bestimmen

$$|1\mathbf{q}\rangle \doteq \begin{pmatrix} \sin\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x + q_y\right)\right)\left(-\csc\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right)\right)\right) \\ \sin(q_y)\csc\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right)\right) \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (3.101)$$

$$|2\mathbf{q}\rangle \doteq \begin{pmatrix} \frac{\cos(\sqrt{3}q_x - q_y) - D_{\mathbf{q}} + \cos(2q_y) + 1}{\cos(\sqrt{3}q_x) - \cos(q_y)(D_{\mathbf{q}} - 2)} \\ \frac{\cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x + 3q_y\right)\right) - \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right)\right)(D_{\mathbf{q}} - 2)}{\cos(\sqrt{3}q_x) - \cos(q_y)(D_{\mathbf{q}} - 2)} \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (3.102)$$

$$|3\mathbf{q}\rangle \doteq \begin{pmatrix} \frac{\cos(\sqrt{3}q_x - q_y) + D_{\mathbf{q}} + \cos(2q_y) + 1}{\cos(q_y)(D_{\mathbf{q}} + 2) + \cos(\sqrt{3}q_x)} \\ \frac{\cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x - q_y\right)\right)(D_{\mathbf{q}} + 2) + \cos\left(\frac{1}{2}\left(\sqrt{3}q_x + 3q_y\right)\right)}{\cos(q_y)(D_{\mathbf{q}} + 2) + \cos(\sqrt{3}q_x)} \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (3.103)$$

$$\text{mit } D_{\mathbf{q}}^2 = 3 + 2\cos(2q_y) + 2\cos(\sqrt{3}q_x - q_y) + 2\cos(\sqrt{3}q_x + q_y), \quad (3.104)$$

hierbei ist $\csc(x) = \sin(x)^{-1}$ und die Werte für $D_{\mathbf{q}}$ sind eingeschränkt auf das Intervall $0 \leq D_{\mathbf{q}}^2 \leq 9$. Die Eigenvektoren liefern die Eigenwerte der Momentenmatrix $M_{\mathbf{q}}$

$$m_{1\mathbf{q}} = -12Jc_{1,0}, \quad (3.105)$$

$$m_{2\mathbf{q}} = -2Jc_{1,0}(3 + D_{\mathbf{q}}), \quad (3.106)$$

$$m_{3\mathbf{q}} = -2Jc_{1,0}(3 - D_{\mathbf{q}}), \quad (3.107)$$

und der Frequenzmatrix $F_{\mathbf{q}}$

$$\omega_{1\mathbf{q}}^2 = 6J^2\left(\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} + (2\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0})\right), \quad (3.108)$$

$$\begin{aligned} \omega_{2\mathbf{q}}^2 &= J^2\left(\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} + (2\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0})\right. \\ &\quad \left. - \tilde{\alpha}_{1,0}(3 - D_{\mathbf{q}})\right)(3 + D_{\mathbf{q}}), \end{aligned} \quad (3.109)$$

$$\begin{aligned} \omega_{3\mathbf{q}}^2 &= J^2\left(\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} + (2\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0})\right. \\ &\quad \left. - \tilde{\alpha}_{1,0}(3 + D_{\mathbf{q}})\right)(3 - D_{\mathbf{q}}). \end{aligned} \quad (3.110)$$

Ein Maximum im skalaren Strukturfaktor an der Stelle des magnetischen Ordnungsvektors $\mathbf{Q}_0 = (2\pi/\sqrt{3}, 0)$ hängt mit der Spinkonfiguration des „ $q = 0$ “-Zustands, an der Stelle $\mathbf{Q}_1 = (0, 4\pi/3)$ mit der des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustands zusammen, siehe hierfür zum Beispiel [132]. Dieser Sachverhalt wird auch in den Abbildungen des nachfolgenden Kapitels 3.5.2 ersichtlich. Eine Entwicklung des akustischen Astes in der Nähe des Γ -Punktes $\omega_{3\mathbf{q}\approx\Gamma}^2 \approx v^2|\mathbf{q}|^2$ liefert die Spinwellengeschwindigkeit

$$v = |J|\sqrt{\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} - 4\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0}}. \quad (3.111)$$

Die uniforme Suszeptibilität ergibt sich nach Kapitel 3.2.1 zu

$$\begin{aligned} \chi_0 &= \frac{1}{6} \sum_{\alpha,\beta} \lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (0,0)} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega) = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \frac{m_{3\mathbf{q}}}{2\omega_{3\mathbf{q}}^2} \\ &= \frac{-c_{1,0}}{J\left(\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} - 4\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0}\right)}. \end{aligned} \quad (3.112)$$

Auch wenn an dieser Stelle der AFM auf dem Kagome-Gitter untersucht werden soll, ist es ein interessanter analytischer Aspekt der obigen Gleichung, dass das Verschwinden der linearen Dispersion des akustischen Astes $v \rightarrow 0$ verknüpft ist mit dem Auftreten von ferromagnetischer Ordnung $\chi_0 \rightarrow \infty$. Besonders einfache Ausdrücke für antiferromagnetische Ordnungsindikatoren, für die beiden Zustände aus Abbildung 3.21, ergeben sich durch das Betrachten der jeweiligen Suszeptibilitäten

$$\begin{aligned} \chi_{\mathbf{Q}_1} &= \frac{1}{6} \sum_{\alpha,\beta} \lim_{(\mathbf{q},\omega) \rightarrow (\mathbf{Q}_1,0)} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega) \\ &= \frac{-c_{1,0}}{J\left(\frac{2}{3}S(S+1) + \tilde{\lambda}_{1,0} + 2\tilde{\alpha}_{1,0} + \tilde{\alpha}_{1,1} + \tilde{\alpha}_{2,0}\right)} \end{aligned} \quad (3.113)$$

und

$$\begin{aligned}\chi_{\mathbf{Q}_0} &= \frac{1}{6} \sum_{\alpha, \beta} \lim_{(|\mathbf{q}, \omega| \rightarrow (\mathbf{Q}_0, 0))} \chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega) \\ &= (\chi_0 + 8\chi_{\mathbf{Q}_1})/9.\end{aligned}\tag{3.114}$$

Die Korrelationslänge für den Fall \mathbf{Q}_0 gewinnt man nach Kapitel 3.2.1 durch die Entwicklung der Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{Q}_0+\mathbf{q}}$ für kleine $|\mathbf{q}| \ll 1$ und es ergibt sich $\xi_{\mathbf{Q}_0} = \sqrt{J\alpha_{1,0}\chi_{\mathbf{Q}_0}}$. Offensichtlich divergiert dieser Ausdruck korrekterweise mit der korrespondierenden Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{Q}_0}$. Für die Korrelationslänge $\xi_{\mathbf{Q}_1}$, die magnetische Ordnung nach dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand signalisiert, muss beachtet werden, dass $\chi_{\mathbf{Q}_1} = m_{1\mathbf{q}}/(2\omega_{1\mathbf{q}}^2)$ ein Quotient zweier \mathbf{q} -unabhängiger Terme ist, siehe Gleichungen (3.108) und (3.105). Am (hypothetischen) Übergangspunkt müssen natürlich sowohl die Suszeptibilität, als auch die Korrelationslänge divergieren. Dies wird mit der Wahl $\xi_{\mathbf{Q}_1} = \sqrt{J\alpha_{1,0}\chi_{\mathbf{Q}_1}}$ gewährleistet. Entsprechend der Überlegungen aus Kapitel 3.2.1 müssen Gleichungen für die numerischen Lösungen aufgestellt werden. In den oben aufgeführten Gleichungen sind noch alle unterscheidbaren Vertexparameter vorhanden. Es wird sich im nächsten Abschnitt zeigen (falsche GS-Energie im klassischen Limes; unphysikalische Divergenzen thermodynamischer Größen im Temperaturbereich), dass die einfache Näherung des Gleichsetzens aller Klassen von Vertexparametern, also $\lambda_{i,j}(T) = \lambda(T)$ und $\alpha_{i,j} = \alpha(T)$ (Minimalversion der RGM) ungenügend ist. An dieser Stelle wird eine Erweiterung vorgestellt, die als zusätzliche Gleichung die GS-Energie der CCM verwendet. Die CCM liefert präzise Werte für E_0 , wie man am Beispiel von $S = 1/2$ im Vergleich mit anderen Methoden erkennen kann: $E_0^{\text{DMRG}}(S = 1/2) = -0.4379(3)$ (aus [133]), $E_0^{\text{ED}}(S = 1/2) = -0.438143\dots - 0.437999$ (aus [134]; $N = 42$) und $E_0^{\text{CCM}}(S = 1/2) = -0.4372$ (aus [128]). Diese spinabhängige Größe wird im Folgenden mit $E_0^{\text{CCM}}(S)$ bezeichnet. Es verbleibt die Frage, welche Vertexparameter gesondert zu behandeln sind. Es ist eine naheliegende Wahl, Nächste-Nachbar-Korrelationen zu selektieren, da davon auszugehen ist, dass diese durch die betragsmäßig größten (antiferromagnetischen) Korrelationen eine Sonderstellung einnehmen. Andererseits lässt sich die innere Energie ohnehin nur durch das Variieren der Korrelationsfunktionen nächster Nachbarn korrigieren. Diesem Prinzip folgend, da jeder Vertexparameter $(\lambda_{i,j}, \alpha_{i,j})$ an einen entsprechenden Korrelator $c_{i,j}$ multipliziert ist, wird die folgende Wahl getroffen:

$$(\lambda_{i,j}, \alpha_{i,j}) = \begin{cases} (\lambda_1, \alpha_1), & \langle i, j \rangle \leftrightarrow \text{nächste Nachbarn} \\ (\lambda_2, \alpha_2), & \text{sonst.} \end{cases}\tag{3.115}$$

An den Elementen der Frequenzmatrix (3.93)-(3.100) stellt man fest, dass lediglich folgende Vertexparameter unterschieden werden müssen: λ_1, α_1 und α_2 . Ein nichtverschwindender Kondensatterm $C_{\mathbf{Q}}$, der prinzipiell bei größeren Werten des Spins von

Tabelle 3.2.: Übersicht der unbekanntenen Größen und das zur Bestimmung verwendete nichtlineare Gleichungssystem der RGM nach Kapitel 3.2.1.

Unbekannte Größen	$T = 0$	$T > 0$
$c_{m\alpha,n\beta}$	$c_{m\alpha,n\beta} = \lim_{\mathcal{N} \rightarrow \infty} \frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta})$	
α_1	$E_0^{\text{CCM}}(S)$	$\frac{\alpha_2(0)-1}{\alpha_1(0)-1} = \frac{\alpha_2(T)-1}{\alpha_1(T)-1}$
α_2	Summenregel	
λ_1	$\lambda_1(0) = 2 - \frac{1}{S}$	$\frac{\lambda_1(0)-\lambda_1(\infty)}{\alpha_1(0)-1} = \frac{\lambda_1(T)-\lambda_1(\infty)}{\alpha_1(T)-1}$

$S > 1$ für beispielsweise den magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_1 = (0, 4\pi/3)$ vorstellbar wäre, siehe beispielsweise [128, 135], wurde nicht gefunden. In Tabelle 3.2 ist aufgeführt, welche Gleichungen zur Lösung verwendet wurden. Für die Minimalvariante der RGM ohne Korrektur der GS-Energie entfällt die zweite Zeile der aufgeführten Tabelle und es gilt für alle Werte der Temperatur: $\alpha_2(T) \equiv \alpha_1(T)$. Bevor die Thermodynamik des Quantenspinsystems bestimmt werden kann, müssen also zunächst die Werte $\alpha_1(0)$ und $\alpha_2(0)$ berechnet werden. Für den verbliebenen Vertexparameter wird $\lambda_1(0) = 2 - 1/S$ angesetzt, wie es zum Beispiel auch in [136] für den AFM gemacht wurde.²⁰

RESULTATE AM TEMPERATURNULLPUNKT $T = 0$

Die Energie-Skala des Modells wird von nun an durch die Fixierung von $J = 1$ gesetzt. Anhand von Abbildung 3.22 (links) kann man erkennen, dass zum einen der Unterschied zwischen Minimalvariante und der erweiterten Variante der RGM in der GS-Energie $S = 1/2$ geringer ist ($\approx 1.4\%$) als für größere Werte des Spins S . Insbesondere fällt auf, dass der klassische Limes ($S \rightarrow \infty$) nach Gleichung (3.90) ohne Erweiterung nicht erfüllt wird. Zum anderen ist das qualitative Bild der uniformen Suszeptibilität, siehe Abbildung 3.22 (rechts), durch die Erweiterung ein gänzlich anderes.

²⁰In der Tat lässt sich empirisch feststellen, dass die Wahl der Vertexparameter $\alpha(0)$ von größerer Bedeutung ist, als jene von $\lambda(0)$. Zumindest ist an den gestellten Gleichungen erkennbar, dass λ , in Relation gesehen, nur für wenige Terme relevant ist.

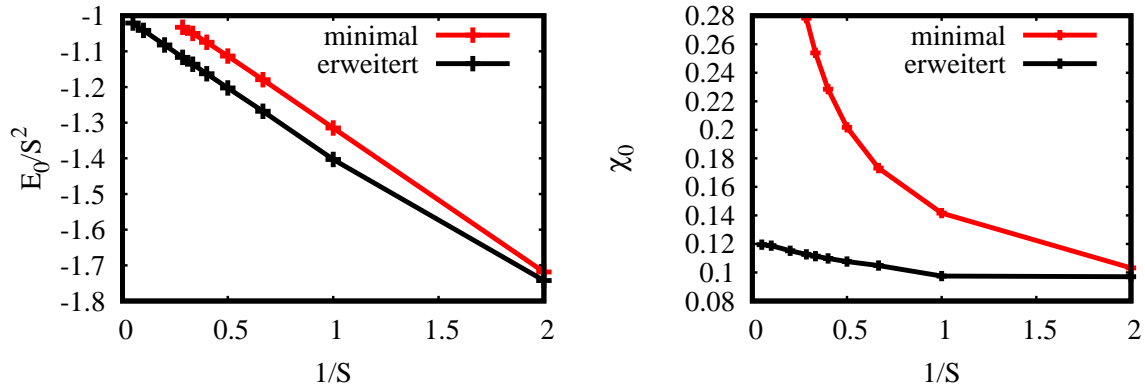


Abbildung 3.22.: Skalierte GS-Energie je Gitterplatz E_0/S^2 der RGM (links) ohne Erweiterung durch die CCM (minimal) im Vergleich mit der GS-Energie der CCM, die zur Modifizierung der RGM genutzt wird (erweitert). Uniforme statische Suszeptibilität (rechts) χ_0 bei $T = 0$ der RGM ohne Energiekorrektur (minimal) im Vergleich mit der Energiekorrektur durch die CCM (erweitert).

Für die Minimalvariante findet man ein mit steigender Spinquantenzahl kontinuierliches Absinken des Vertexparameters von $\alpha(T = 0, S = 1/2) \approx 1.4205$, bis $\alpha(T = 0, S = 3/2) \approx 0.928 < 1$ Werte von kleiner 1 angenommen werden. Diese Tatsache ist von Bedeutung, da die aufgestellten Gleichungen nach Tabelle 3.2 im Temperaturverlauf Regionen mit unphysikalischen Ergebnissen aufweisen. Die erweiterte Variante der RGM unterliegt dieser Problematik nicht und es ergeben sich Vertexparameter im GS, die größer als 1 sind: $\alpha_1(T = 0, S = 1/2) \approx 1.5243$, $\alpha_2(T = 0, S = 1/2) \approx 2.0176$ und $\alpha_1(T = 0, S = 7/2) \approx 1.4724$, $\alpha_2(T = 0, S = 7/2) \approx 2.8175$. Sofern es nicht explizit geschrieben steht, beziehen sich die nachfolgenden Ergebnisse auf die erweiterte RGM.²¹ Die Dispersionsrelationen aus den Gleichungen (3.108), (3.109) und (3.110) sind in Abbildung 3.23 zusammen mit dem Spektrum aus der linearen Spinwellentheorie dargestellt. Während in der linearen Spinwellentheorie ein flaches Band bei der Energie $\omega_{1\mathbf{q}}^{\text{LSWT,flach}} = 0$ vorliegt, durch das die Quantenkorrektur der Untergitter-Magnetisierung stets divergiert [127], ist das flache Band der RGM angehoben. Für höhere Werte des Spins nähert sich das flache Band, siehe Abbildung 3.24, der Nulllinie und die zwei dispersiven Äste entarten. Für $S \rightarrow \infty$ entsprechen die Dispersionsrelationen aus der RGM dann dem Resultat aus der linearen Spinwellentheorie.

²¹Der Pol, der in der Gleichung $\frac{\lambda_1(0) - \lambda_1(\infty)}{\alpha_1(0) - 1} = \frac{\lambda_1(T) - \lambda_1(\infty)}{\alpha_1(T) - 1}$ entstehen kann, ist nicht der Ursprung des Problems. Ebenso führt $(\lambda_1(0) - \lambda_1(\infty))(\alpha_1(T) - 1) = (\lambda_1(T) - \lambda_1(\infty))(\alpha_1(0) - 1)$ auf numerische Instabilitäten, die bei $\alpha_1(0) < 1$ ($\lambda_1(0) \geq \lambda_1(\infty) \forall S$) auftreten. Es scheinen diejenigen Temperaturbereiche problematisch zu sein, die sich in der Nähe der Vorzeichenumkehr von $(\alpha_1(T) - 1)$ befinden. Das gleichzeitige Fordern eines anderen Vorzeichens von $(\lambda_1(T) - \lambda_1(\infty))$ an diesem Punkt führt zu Inkompatibilitäten.

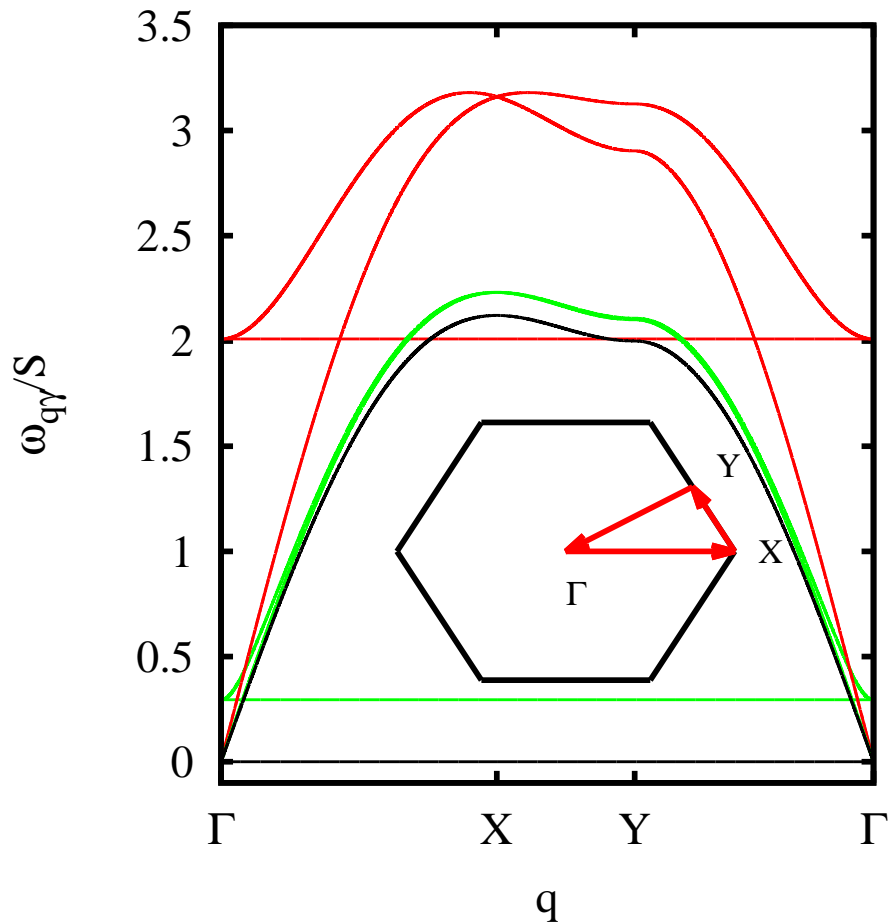


Abbildung 3.23.: Dispersion der normierten magnetischen Anregungen $\omega_{\gamma\mathbf{q}}/S$ ($\gamma = 1, 2, 3$) der erweiterten RGM im Vergleich mit der linearen Spinwellentheorie aus [135] (rot - Spin $S = 1/2$; grün - Spin $S = 3$; schwarz - lineare Spinwellentheorie) bei $T = 0$ entlang eines typischen Pfads entlang der Brillouin-Zone, wie in [135].

Dies geht auch aus der Spinwellengeschwindigkeit in Abbildung 3.24 hervor. Verglichen mit $v^{\text{LSWT}} = \sqrt{3}S$ aus der linearen Spinwellentheorie gibt es innerhalb der RGM eine für größere Werte des Spins $S \geq 1$ annähernd lineare Abhängigkeit der Größe v/S von $1/S$.

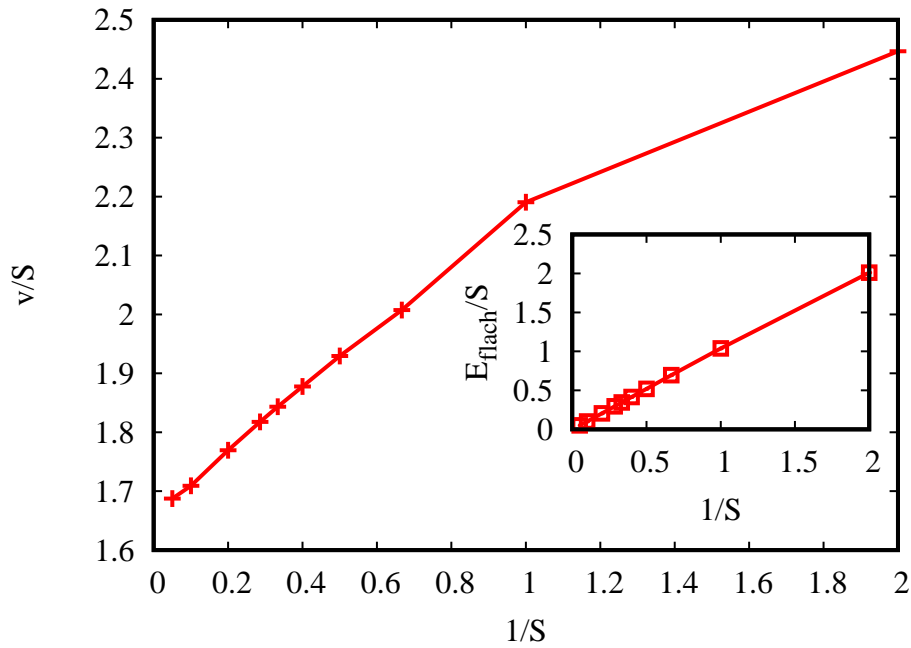


Abbildung 3.24.: Skalierte Spinwellengeschwindigkeit v/S aus Gleichung (3.111) (eingebettetes Diagramm: Skalierte Energie des flachen Bandes aus Gleichung (3.108)) der erweiterten RGM bei $T = 0$ als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$.

Sowohl die skalierten Suszeptibilitäten $\chi_{\mathbf{Q}}/S$, als auch die jeweiligen Strukturfaktoren in Abbildung 3.25 deuten darauf hin, dass die „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Struktur für alle Spinquantenzahlen S favorisiert ist. Dieses für höhere Werte des Spins qualitativ richtige Ergebnis im GS wird auch durch die erweiterte RGM nicht beeinflusst.

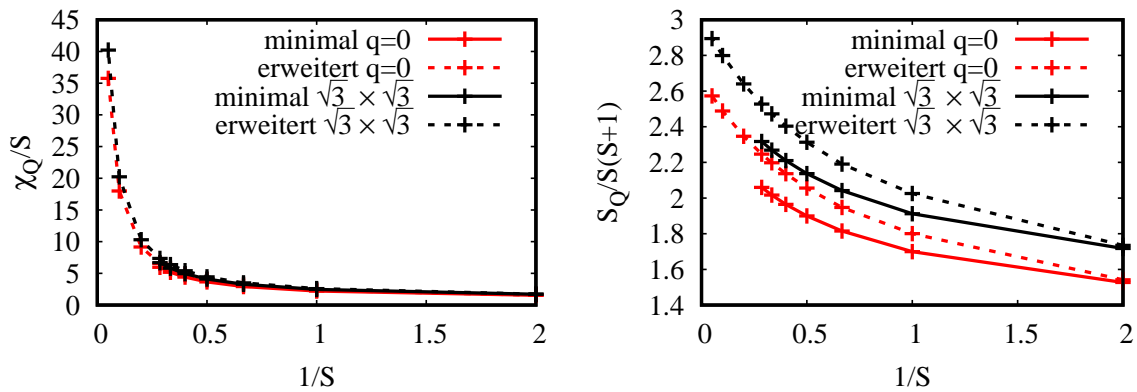


Abbildung 3.25.: Skalierte statische Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{Q}}/S$ (links) und skaliertes Strukturfaktor $S_{\mathbf{Q}}/S(S+1)$ (rechts) für die magnetischen Ordnungsvektoren \mathbf{Q}_0 („ $q = 0$ “) und \mathbf{Q}_1 („ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “) bei $T = 0$ als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$ der RGM ohne Erweiterung (minimal) im Vergleich mit Erweiterung durch die CCM (erweitert).

Wie in Abbildung 3.26 zu sehen ist, divergieren beide Korrelationslängen für $S \rightarrow \infty$ nach einem Potenzgesetz (durch einen Fit erhält man in beiden Fällen eine Abhängigkeit der Form $\xi \approx 2S^{0.81 \dots 0.82}$). Für den extremen Quantenfall sind die Korrelationslängen von

der Größenordnung $\xi \approx 1$, was ein typisches Resultat für eine Quantenspinflüssigkeit ist und auch im Rahmen der DMRG, beispielsweise in [37], gefunden wurde.

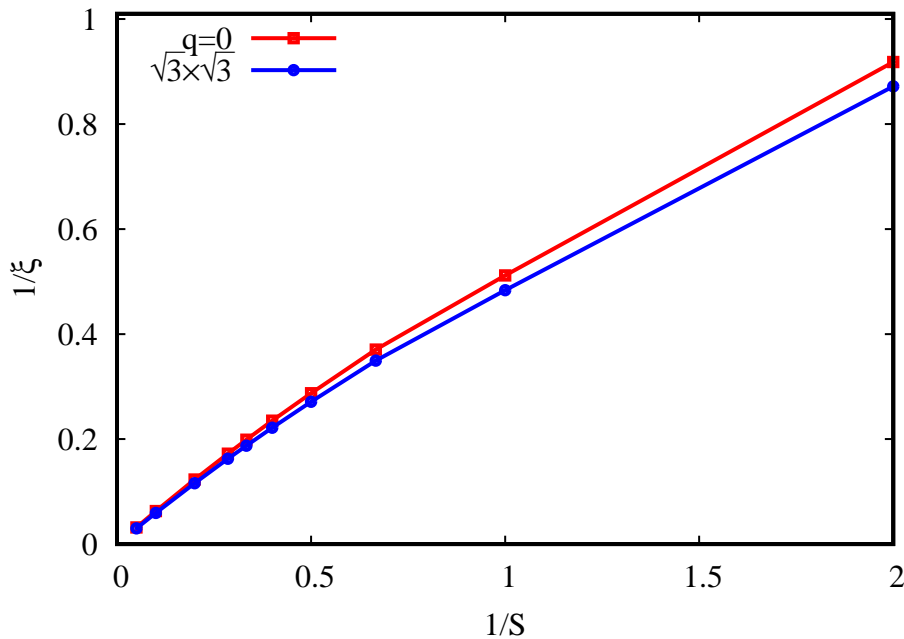


Abbildung 3.26.: Inverse Korrelationslänge $1/\xi_Q$ für die beiden klassischen GS „ $q = 0$ “ (rot) und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “ (blau) bei $T = 0$ als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$ mit Erweiterung durch die CCM.

Der Einfluss der erweiterten Variante der RGM, also hier der geringeren Energie durch die CCM für $T = 0$, äußert sich besonders auffallend im Abklingverhalten der Korrelationsfunktionen, wie in Abbildung 3.27 gezeigt. In beiden Varianten ist bei beliebigem Spin ein lokales Minimum ersichtlich. Dieses geht einher mit einem Vorzeichenwechsel der Korrelationsfunktionen und hängt mit der komplizierten Gestalt des GS zusammen. Die tiefere Energie durch die CCM sorgt für ein Anheben der Korrelation weiter entfernter Spins. Dieses Verhalten kann durch die in diesem Fall tendenziell ordnungsinduzierende CCM erklärt werden, die für höhere Spinquantenzahl eine endliche Magnetisierung für den „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand findet. Zwar wird im Rahmen der RGM kein von Null verschiedener Kondensatterm gefunden, doch ist die Neigung zu ausgeprägter magnetischer Ordnung ersichtlich.

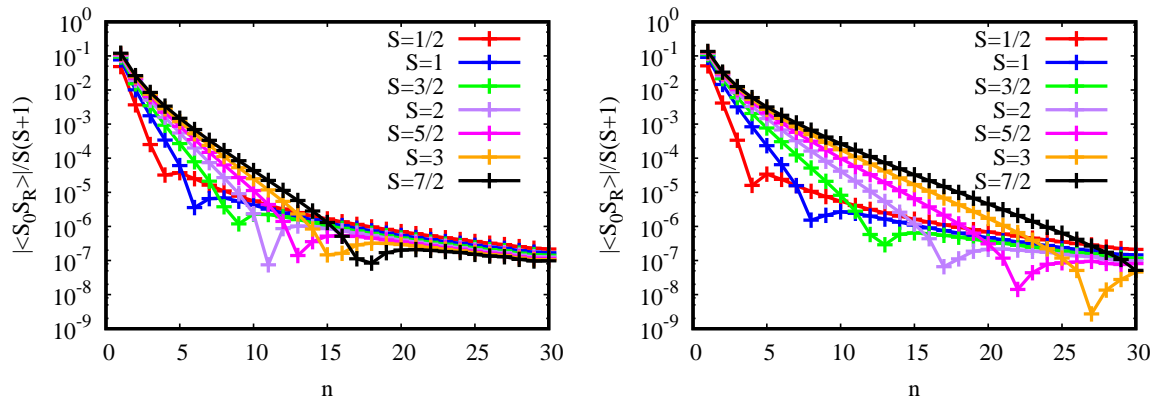


Abbildung 3.27.: Abklingverhalten des Betrags der normierten Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{\mathbf{R}} \rangle|/S(S+1)$ als Funktion des parametrisierten Abstands n entlang der Richtung $\mathbf{R} = n\mathbf{a}_1$ bei $T = 0$ der RGM ohne Erweiterung (Minimalvariante, links) im Vergleich mit der Erweiterung durch die CCM (rechts).

Alle möglichen Korrelationsfunktionen als Funktion des Abstands sind in Abbildung 3.28 dargestellt, wie es für $S = 1/2$ auch in [49] getan wurde. Man kann erkennen, dass die Korrelationen annähernd exponentiell mit dem Abstand abfallen, wobei der (negative) Anstieg für größere S betragsmäßig geringer ausfällt.

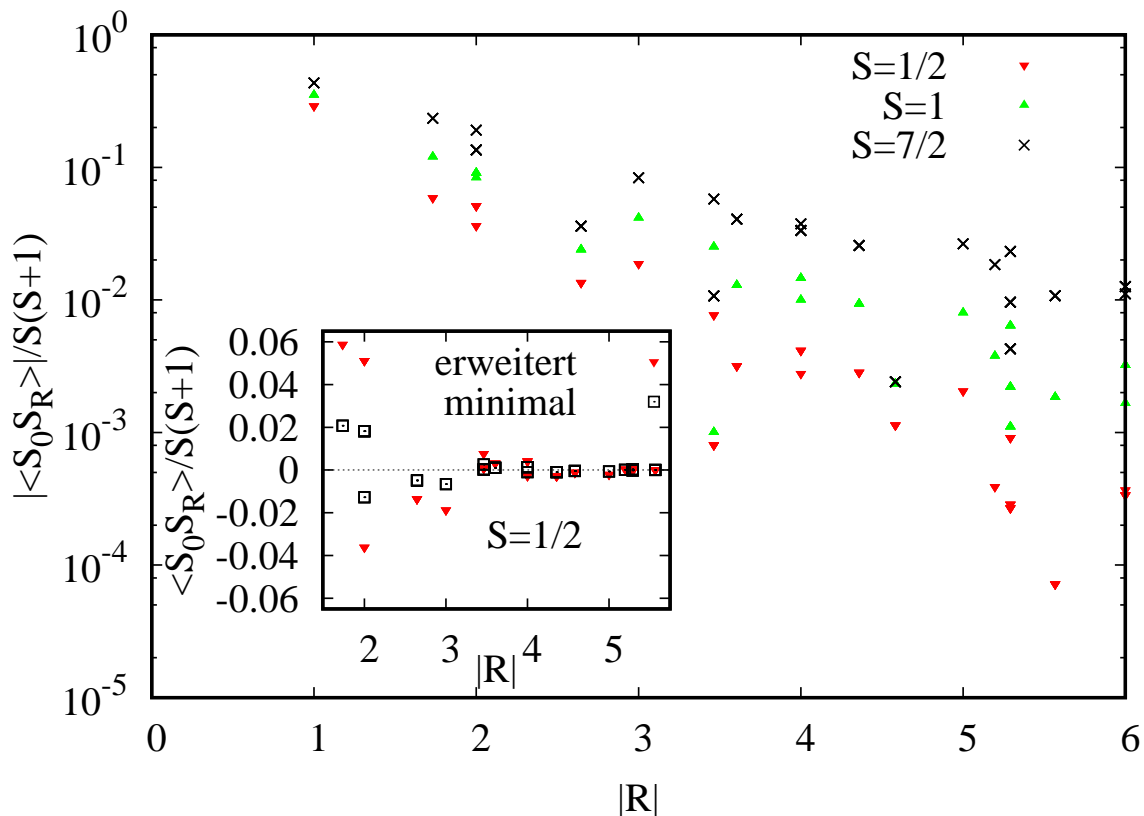


Abbildung 3.28.: Abklingverhalten des Betrags aller normierten Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{\mathbf{R}} \rangle|/S(S+1)$ als Funktion des Abstands $|\mathbf{R}|$ bei $T = 0$ der RGM mit Erweiterung durch die CCM. Im eingebetteten Diagramm ist die erweiterte Variante mit der Minimalvariante für $S = 1/2$ gezeigt.

Der Strukturfaktor bei $T = 0$ ist in Abbildung 3.29 dargestellt. Durch das Fehlen von magnetisch langreichweitiger Ordnung bleibt der Strukturfaktor im gesamten Gebiet endlich. Typische Charakteristika sind die „Verengungen“ an den Stellen \mathbf{Q}_0 , in der Literatur häufig *pinch points* genannt, und die Muster mehrerer Fliegen, in der Literatur häufig *bow-ties* genannt [132]. Diese Muster werden für $S \rightarrow \infty$ durch das Anheben der langreichweitigen Korrelationen immer kontrastreicher und sind im klassischen System zu erwarten, siehe hierzu [132].

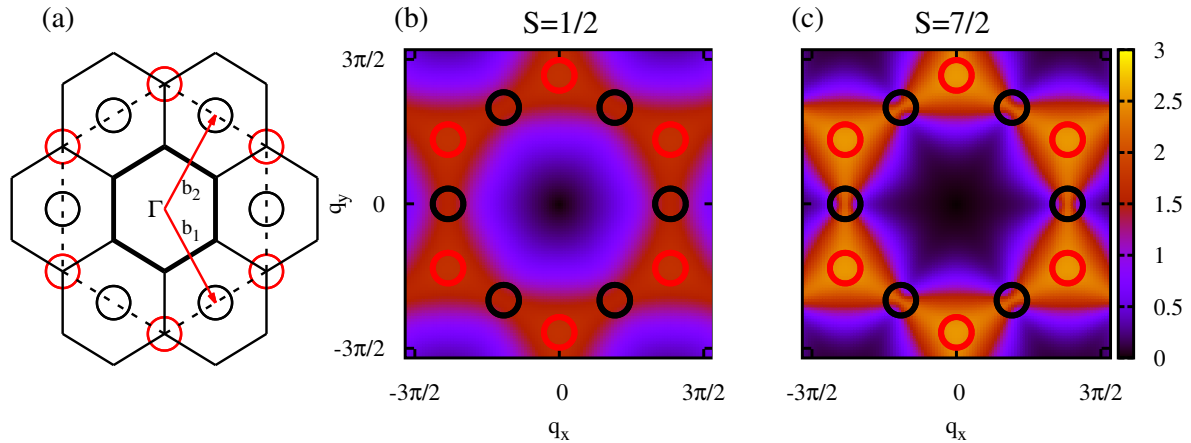


Abbildung 3.29.: (a): Darstellung der ersten (und erweiterten) Brillouin-Zone. Rot (schwarz) markierte Kreise lassen sich den magnetischen Ordnungsvektoren des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustands („ $q = 0$ “-Zustands) zuordnen. (b),(c): Normierter Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ der erweiterten RGM durch die CCM für Spin $S = 1/2, 7/2$ bei $T = 0$ (Kreise: schwarz - \mathbf{Q}_0 ; rot - \mathbf{Q}_1).

Optisch sind die Unterschiede in der Höhe der Maxima an den Punkten \mathbf{Q}_0 und \mathbf{Q}_1 im Konturplot von Abbildung 3.29 kaum zu unterscheiden. Abbildung 3.30 zeigt $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ entlang des angegebenen Pfads in der Brillouin-Zone. Offensichtlich wird auch hier eine Tendenz zur „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung signalisiert, die für größere S immer ausgeprägter wird.

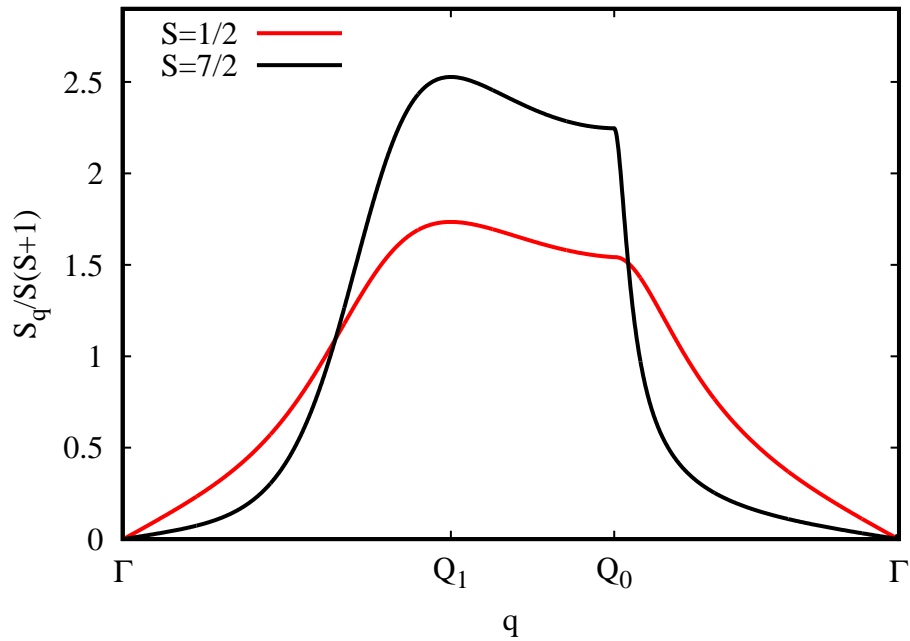


Abbildung 3.30.: Normierter Strukturfaktor $S_q/S(S+1)$ der RGM mit Spin $S = 1/2, 7/2$ bei $T = 0$ entlang eines Pfades in der Brillouin-Zone, siehe hierzu auch Abbildung 3.29.

RESULTATE BEI ENDLICHEN TEMPERATUREN $T > 0$

Nachdem die Lösungen innerhalb der RGM für den GS berechnet und diskutiert wurden, können diese für das Aufstellen der Gleichungssysteme bei $T > 0$ genutzt werden. Die Thermodynamik der meisten Größen wird im folgenden Kapitel auch mit der HTE verglichen.

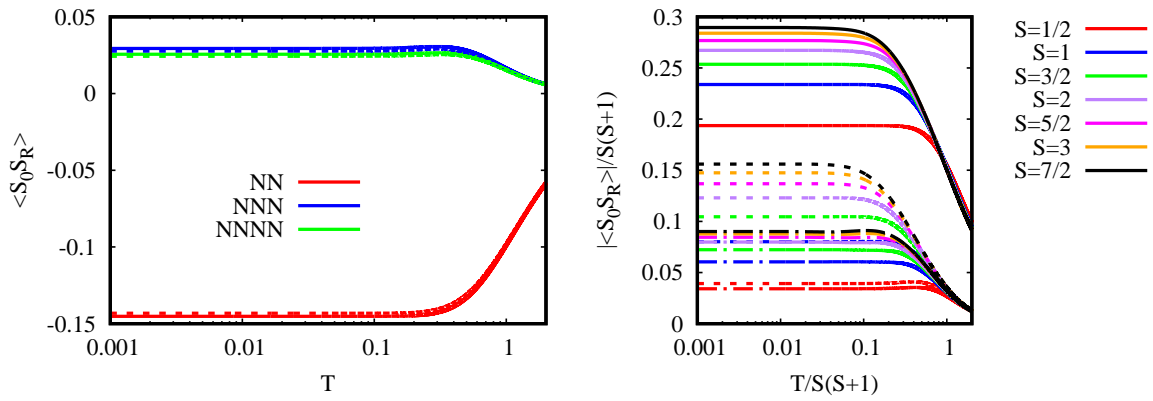


Abbildung 3.31.: (links) Korrelationsfunktionen $\langle \hat{S}_0 \hat{S}_R \rangle$ (nächste Nachbarn - rot; übernächste Nachbarn - blau; überübernächste Nachbarn - grün) der RGM für $S = 1/2$ als Funktion der Temperatur T (durchgezogene Linien: erweiterte Version der RGM; gestrichelte Linien: Minimalvariante). (rechts) Normierte Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{S}_0 \hat{S}_R \rangle| / S(S+1)$ (nächste Nachbarn - durchgezogene Linien; übernächste Nachbarn - gestrichelte Linien; überübernächste Nachbarn - Punkt-Striche-Kombination) der RGM für verschiedene Werte der Spinquantenzahl S als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$. Dargestellt ist nur die Korrelation von überübernächsten Nachbarn (NNNN), deren Bestimmung für die Lösung des nichtlinearen Gleichungssystems notwendig ist: $c_{2,0}$.

In Abbildung 3.31 sind die zum Lösen des Gleichungssystems notwendig selbstkonsistent bestimmbar Korrelationsfunktionen für $S = 1/2$ über der Temperatur aufgetragen. Man erkennt, dass die erweiterte Version der RGM nur wenig Einfluss auf die Korrelationsfunktionen naher Spins hat. Als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ sind in Abbildung 3.31 (rechts) die gleichen Korrelationsfunktionen, jedoch für verschiedene Werte des Spins S , dargestellt. Die Tendenz zunehmender SRO mit der Spinquantenzahl zeigt sich auch im thermodynamischen Regime dieser Größen. Erkennbar ist außerdem, dass für geringere Werte von S der Bereich geringer Temperaturen, in dem die Korrelationsfunktionen nur eine sehr schwache Temperaturabhängigkeit aufweisen, größer wird. Die Vorzeichenverhältnisse ($\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{NN} \rangle(T) < 0$, $\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{NNN} \rangle(T) > 0$, $\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{NNNN} \rangle(T) > 0$, wobei NN für nächste Nachbarn steht, NNN für . . . , und so weiter) ändern sich auch nicht durch die Temperatur. An dieser Stelle muss angemerkt werden, dass es hier prinzipiell zwei verschiedene Sorten von NNNN-Korrelationen gibt. Eine, die für die Lösung des Gleichungssystems notwendig ist und Spins durch einen Pfad über zwei „ J -Verbindungen“ verknüpft ($c_{2,0}$) und eine Sorte, die gegenüberliegende Spins auf den Hexagonen miteinander verknüpft. Hierfür sei auch nochmal auf die Abbildung 3.28 verwiesen. Für alle Werte des Spins S wies diese zweite NNNN-Korrelation ein anderes Vorzeichen als $c_{2,0}$ auf und war betragsmäßig kleiner. Der Temperaturverlauf wies keine Besonderheiten auf.

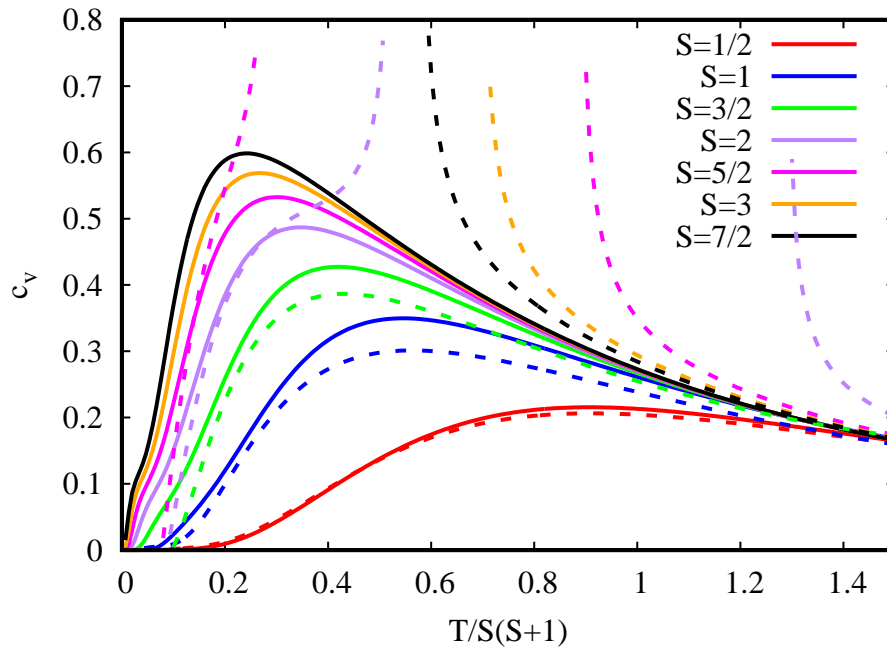


Abbildung 3.32.: Spezifische Wärme c_V für verschiedene Werte der Spinquantenzahl S als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ (gestrichelte Linien - Minimalvariante RGM; durchgezogene Linien - RGM mit Erweiterung durch die CCM).

Aus der Korrelation nächster Nachbarn leitet sich die spezifische Wärme ab. In Abbildung 3.32 soll kurz demonstriert werden, dass die RGM auch hier mit der Minimalvariante für größere Werte von S versagt und eine Erweiterung notwendig ist. Es treten unphysikalische Divergenzen auf und über weite Bereiche sind keine Lösungen auffindbar.

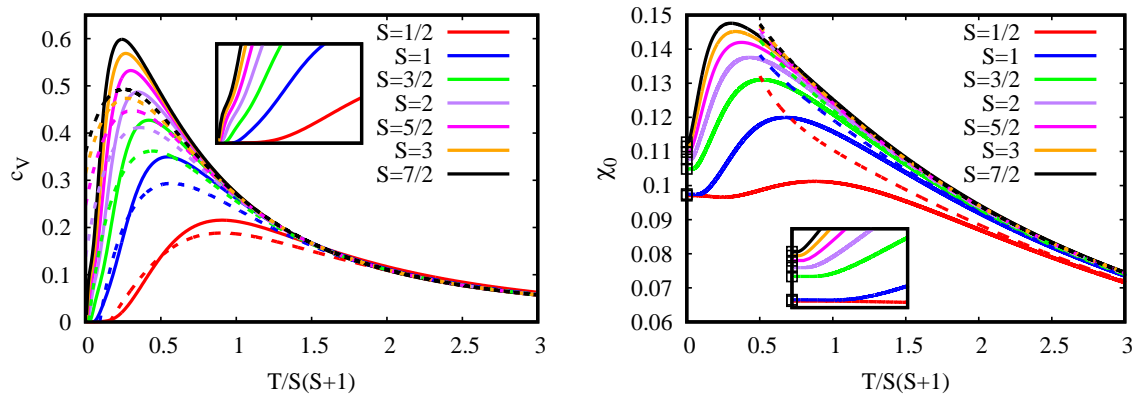


Abbildung 3.33.: Spezifische Wärme c_V (links) und uniforme statische Suszeptibilität χ_0 der erweiterten RGM (durchgezogene Linien) für verschiedene Werte der Spinquantenzahl S als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ im Vergleich mit der HTE (gestrichelte Linien; Padé [5,5]). Das eingebettete Diagramm zeigt das Tieftemperaturverhalten der RGM.

Dieses Problem tritt in der erweiterten Variante mit Energiekorrektur nicht auf, siehe Abbildung 3.33. Ebenso liefern die Daten aus der HTE, auch für die Suszeptibilität χ_0 , eine überzeugende Übereinstimmung. Für geringe Temperaturen $T \rightarrow 0$ bildet sich bei

höheren Werten von S eine leichte „Schulter“ aus, siehe eingebettetes Diagramm von Abbildung 3.33, welche ein Hinweis auf eine große Zahl von tief liegenden Anregungen sein kann. Für den Fall $S = 1/2$ für ein großes Gitter mit 42 Spins konnte im Rahmen der ED ein ausgeprägtes Maximum in der spezifischen Wärme bei tiefen Temperaturen $T \approx 10^{-2}$ gefunden werden, das im Rahmen der RGM nicht gefunden wird [25]. Es ist davon auszugehen, dass dies an der ungenügenden Genauigkeit der RGM in diesem Bereich liegt und eine präzise Kenntnis über die Energien des Anregungsspektrums vonnöten ist. Die uniforme Suszeptibilität weist ebenso wie c_V ein Maximum bei moderaten Temperaturen auf, das mit der Spinquantenzahl ansteigt und zu tieferen Temperaturen versetzt ist. Auffallend ist der weite Bereich ab einer Temperatur von $T \approx S(S+1)$ bei $S = 1/2$ ab dem die Temperaturabhängigkeit sehr schwach ausfällt. Für größere Werte von S verkleinert sich dieser Bereich.

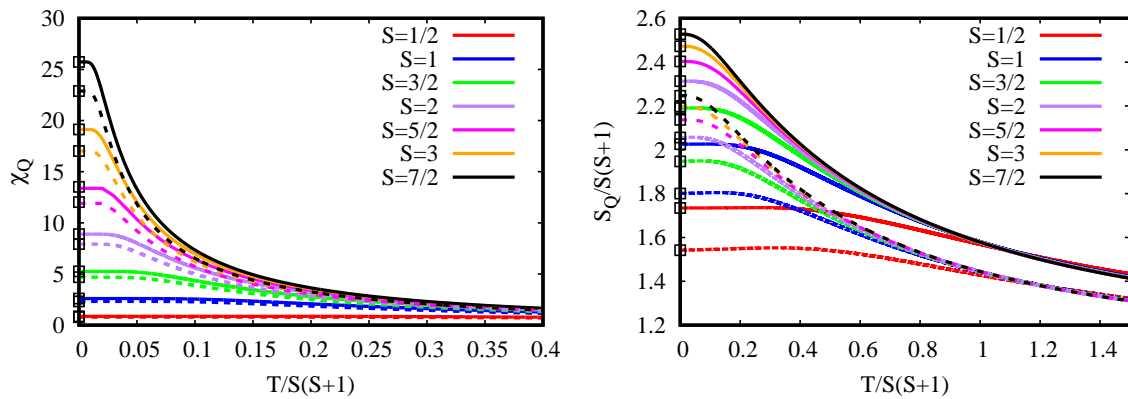


Abbildung 3.34.: Wellenlängenabhängige statische Suszeptibilität $\chi_{\mathbf{Q}}$ (links) und normierter Strukturfaktor $S_{\mathbf{Q}}/S(S+1)$ (rechts) der erweiterten RGM (gestrichelte Linien - \mathbf{Q}_0 ; durchgezogene Linien - \mathbf{Q}_1) für verschiedene Werte der Spinquantenzahl S als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$.

Qualitativ ist die Aussage der gezeigten Größen in Abbildung 3.34 bei Temperaturen $T > 0$ für alle Spinquantenzahlen dieselbe: Die statischen Suszeptibilitäten $\chi_{\mathbf{Q}}$ und die normierten Strukturfaktoren $S_{\mathbf{Q}}/S(S+1)$ signalisieren erwartungsgemäß eine Favorisierung des „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustands für alle Werte $S \geq 1/2$. Dabei fällt der Unterschied in den Größen $S_{\mathbf{Q}}/S(S+1)$ deutlicher aus, als in $\chi_{\mathbf{Q}}$. Ebenso führt in beiden Fällen der Limes geringer Temperaturen $T \rightarrow 0$ auf die korrekten Werte des GS (siehe schwarze Symbole in Abbildung 3.34).

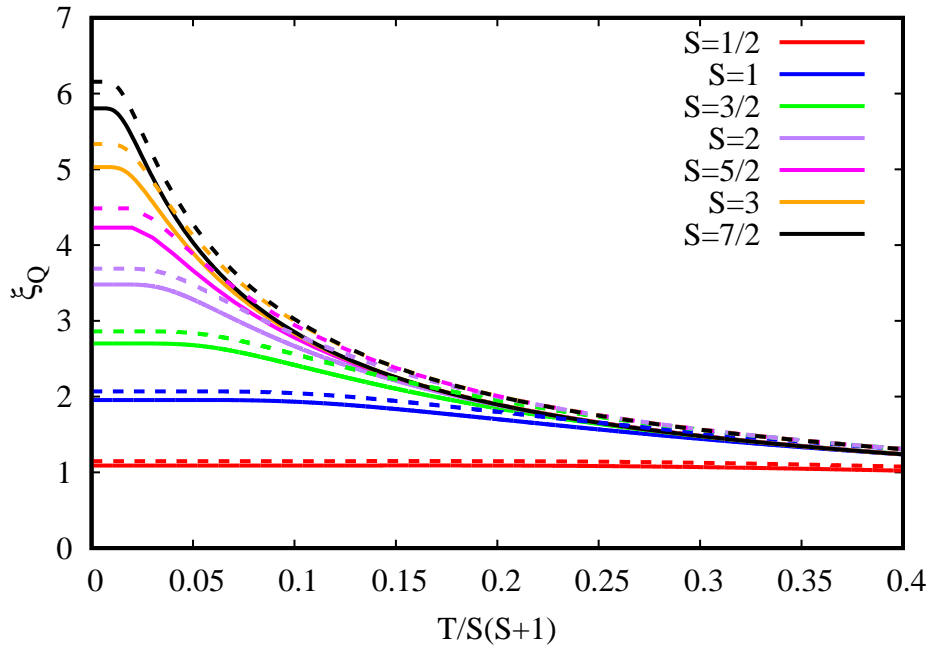


Abbildung 3.35.: Korrelationslänge $\xi_{\mathbf{Q}}$ der RGM mit Erweiterung durch die CCM (gestrichelte Linien - \mathbf{Q}_0 ; durchgezogene Linien - \mathbf{Q}_1) für verschiedene Werte der Spinquantenzahl S als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$.

Trotz fehlender LRO zeigt sich ein Übergang von einer extrem kurzreichweitigen Korrelation für $S = 1/2$ mit $\xi \approx 1$ für einen weiten Bereich tiefer Temperaturen, siehe Abbildung 3.35, die bereits für $S \geq 1$ unterhalb von $T/S(S+1) \approx 0.2$ auf mehrere Elementarzellen $\xi \approx 2$ ausgedehnt ist. Dabei vergrößert sich bei tiefen Temperaturen sukzessive die Korrelationslänge mit der Spinquantenzahl. Der Unterschied in den verschiedenen Zuständen magnetischer Ordnung \mathbf{Q}_0 und \mathbf{Q}_1 zeigt eine schwache Temperaturabhängigkeit, wobei dieser für hohe Temperaturen verschwindet. Dieser Limes wird zum Beispiel durch Gleichung (3.49) verständlich. Es ist festzustellen, dass für den gesamten Temperaturbereich $S_{\mathbf{Q}_1}|_T \geq S_{\mathbf{Q}_0}|_T$ (ebenso $\xi_{\mathbf{Q}_1}|_T \geq \xi_{\mathbf{Q}_0}|_T$) gilt, wobei es eine Temperatur $T < T^*$ gibt, ab der die Temperaturabhängigkeit $S_{\mathbf{Q}_i}|_{T < T^*} \approx S_{\mathbf{Q}_i}|_{T=0}$ ($i = 0, 1$, außerdem gilt ebenso $\xi_{\mathbf{Q}_i}|_{T < T^*} \approx \xi_{\mathbf{Q}_i}|_{T=0}$) nahezu verschwindet und keinen wesentlichen Einfluss mehr auf die magnetische Struktur hat. Das bedeutet, dass diese Größen ab einer bestimmten Temperatur nahezu konstant sind und Quantenfluktuationen dominieren. Aus den Abbildungen 3.35 und 3.34 geht hervor, dass $T^*/S(S+1)$ eine Abhängigkeit von der Spinquantenzahl aufweist. Diese skalierte Temperatur, aufgetragen als Funktion von $1/S$, ist in Abbildung 3.36 gezeigt.

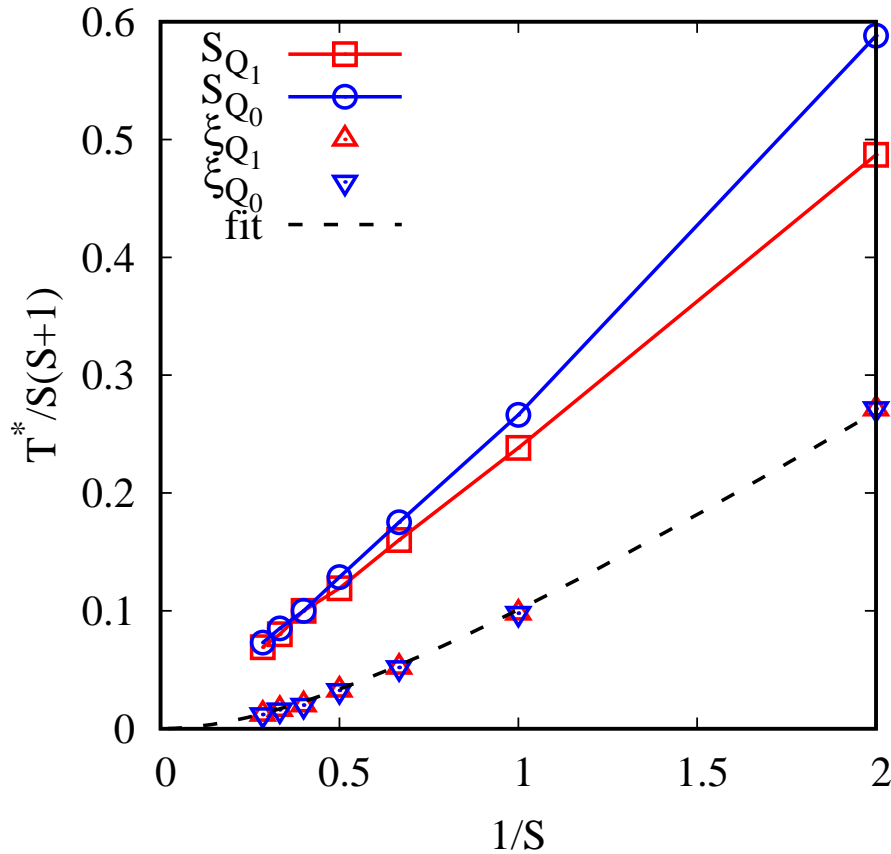


Abbildung 3.36.: Daten für die skalierte Temperatur $T^*/S(S+1)$ nahezu temperaturunabhängiger Größen $S_{Q_i}|_{T^*} = pS_{Q_i}|_{T=0}$ ($i = 0, 1$, beziehungsweise $\xi_{Q_i}|_{T^*} = p\xi_{Q_i}|_{T=0}$) aus der RGM, mit $p = 0.99$, als Funktion der inversen Spinquanzahl $1/S$. Für ξ ergab eine lineare Ausgleichsrechnung der Form $f(S) = a/S(S+1)$ den Wert $a = 0.202(\pm 0.001)$ ('fit' in Abbildung; für $p = 0.95$ ergibt sich $a \simeq 0.28$).

Für $S = 1/2$ ist der Bereich, in dem Quantenfluktuationen wichtiger als thermische Fluktuationen sind, am größten, wohingegen der klassische Limes $S \rightarrow \infty$ auf $T^*/S(S+1) \rightarrow 0$ führt.

Der Strukturfaktor wurde ebenso im Rahmen der HTE für verschiedene Spinquanzahlen bestimmt. Da die entsprechenden Gleichungen sehr lang sind, werden an dieser Stelle nur exemplarisch die ersten Terme für $S = 1/2, 1, 3/2$ angegeben. Hierfür sei auf die Gleichungen (3.116), (3.117) und (3.118) im nächsten Kapitel verwiesen.²² Die Übereinstimmung der Ergebnisse für den skalaren Strukturfaktor von HTE und RGM bei moderaten Temperaturen, siehe Abbildung 3.37, ist sehr gut. Beide Methoden liefern aus dem paramagnetischen Bereich kommend die Aussage, dass der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand durch thermische Fluktuationen favorisiert wird. Dies ist in Übereinstimmung mit [125, 129, 137].

²²Für eine Kopplung ausschließlich nächster Nachbarn setze man hier $J_2 = 0$ und $J_d = 0$.

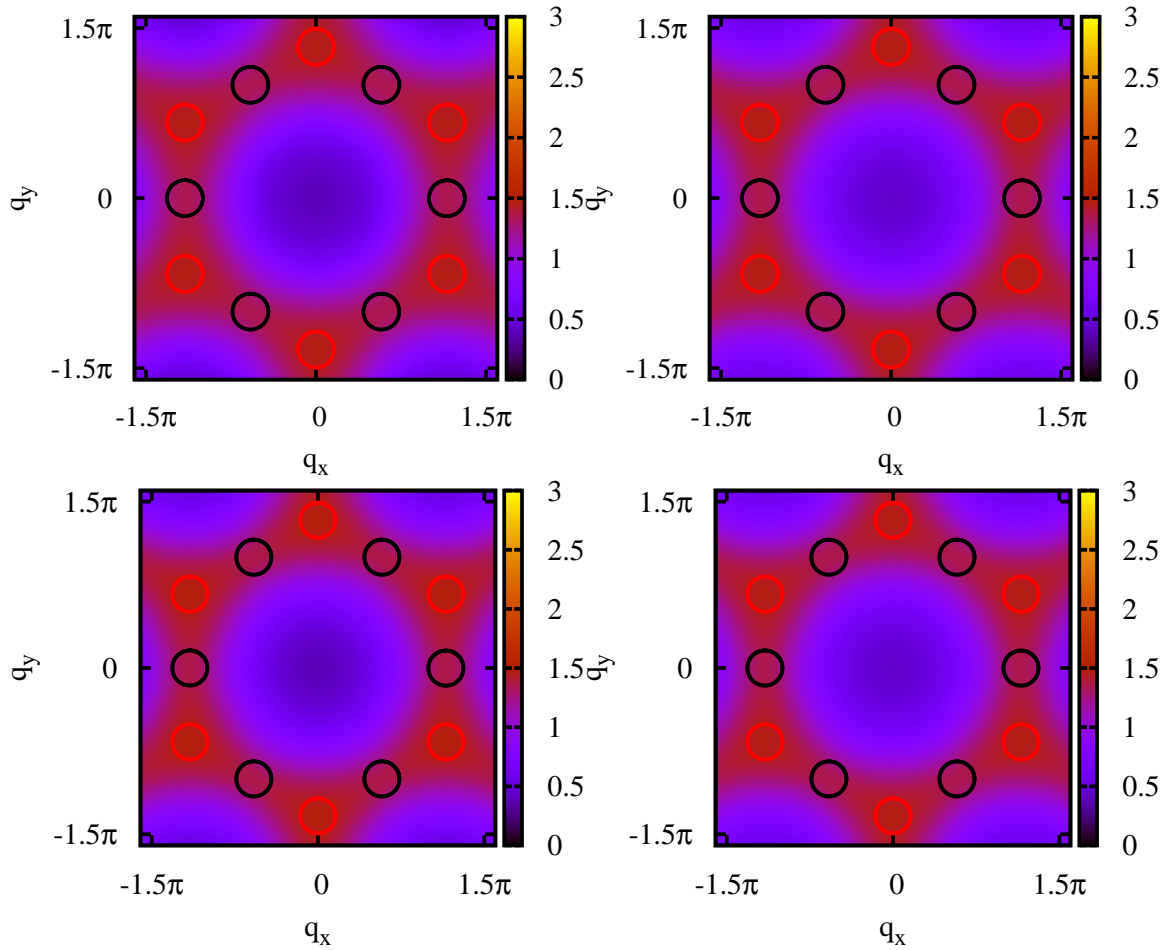


Abbildung 3.37.: Normierter Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ des AFM auf dem Kagome-Gitter der HTE (Ordnung 9; oben) und der erweiterten RGM (unten) bei der skalierten Temperatur $T/S(S+1) = 1.3$ innerhalb eines Ausschnitts der Brillouin-Zone für $S = 1/2$ (links) und $S = 3$ (rechts). Die Kreise markieren die magnetischen Ordnungsvektoren der wichtigen klassischen Grundzustände aus Abbildung 3.21 (schwarz - \mathbf{Q}_0 ; rot - \mathbf{Q}_1).

Auch der direkte Vergleich entlang eines Pfades der Brillouin-Zone in Abbildung 3.38 zeigt deutlich, dass die beiden Methoden ebenfalls quantitativ übereinstimmen.

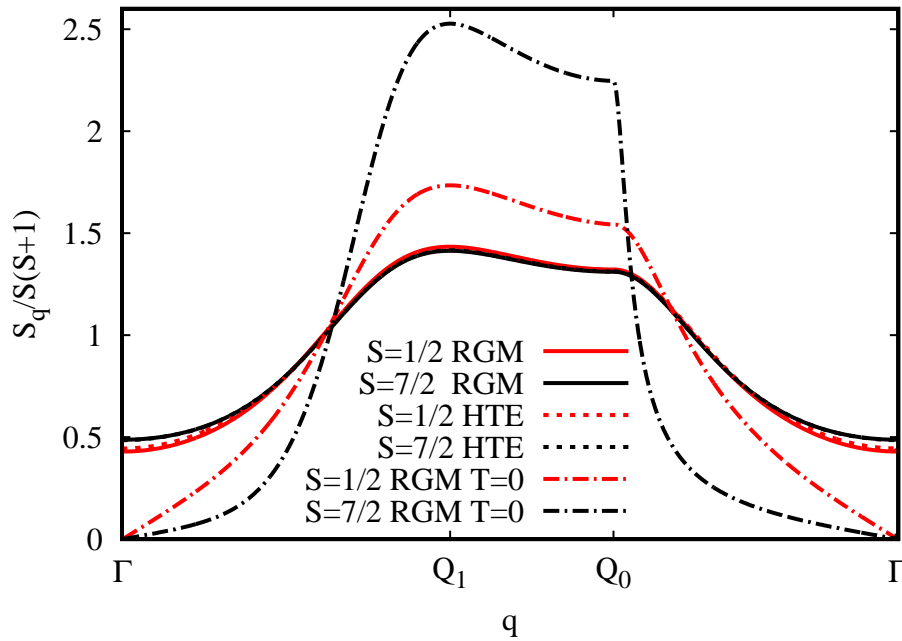


Abbildung 3.38.: Normierter Strukturfaktor $S_q/S(S+1)$ der erweiterten RGM und der HTE mit Spin $S = 1/2$ (10. Ordnung) und $S = 7/2$ (9. Ordnung) bei $T/S(S+1) = 1.5, 0$ entlang eines Pfades in der Brillouin-Zone.

Der sphärisch gemittelte Strukturfaktor ist in Abbildung 3.39 dargestellt. Zunächst lässt sich erkennen, dass durch das Bilden des sphärischen Mittels viele Charakteristika, die beim skalaren Strukturfaktor aus Abbildung 3.37 erkennbar sind, verschwinden und eine einfache Zuordnung der Zustände nicht mehr möglich ist. In dem gezeigten Intervall sind zwei Maxima bei $q_1 \approx 1.28 \text{ \AA}^{-1}$ und $q_2 \approx 3.24 \text{ \AA}^{-1}$ erkennbar, die annähernd unabhängig von der Temperatur und der gewählten Spinquantenzahl sind. Für $S = 1/2$ existieren aus [120] experimentelle Daten über das erste Maximum $q'_1 \approx 1.3 \text{ \AA}^{-1}$ einer Probe von 20 g 98 % deuteriertem Herbertsmithit. In einer Arbeit von 2017 konnte dieses Maximum im Rahmen der sogenannten *Numerical-Linked-Cluster-Method* ebenfalls gefunden werden, siehe [138].

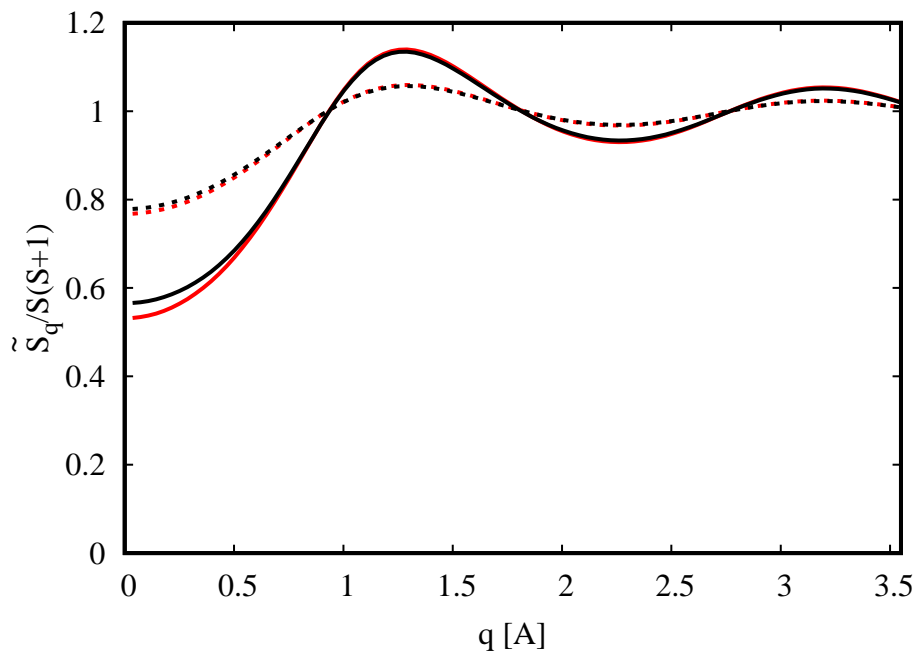


Abbildung 3.39.: Sphärisch gemittelter und skaliertes Strukturfaktor $\tilde{S}_q/S(S+1)$ nach Gleichung (3.4) der HTE für verschiedene Werte der Spinquantenzahl $S = 1/2$ (rot; Ordnung 10) und $S = 7/2$ (schwarz; Ordnung 9) als Funktion von q in Einheiten von Å^{-1} (unter Berücksichtigung des experimentell ermittelten Gitterabstands von Herbertsmithit $a = 3.42 \text{ Å}$ aus [120]) bei zwei Temperaturen $T/S(S+1) = 2$ (durchgezogene Linien) und $T/S(S+1) = 5$ (gestrichelte Linien).

3.5.2 Erweiterung auf das J_1 - J_2 - J_d -Modell

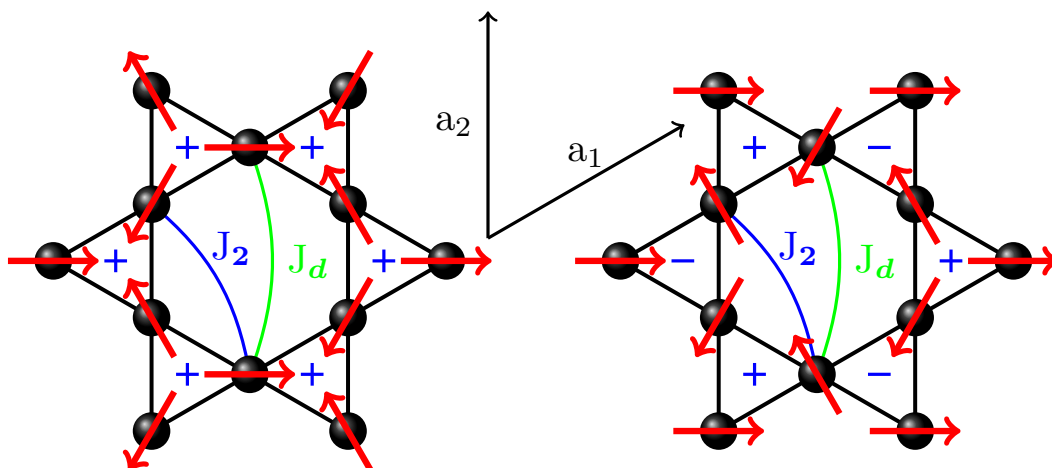


Abbildung 3.40.: Exemplarische Abbildung zweier wichtiger (klassischer) Konfigurationen unterschiedlicher Symmetrie: „ $q = 0$ “-Zustand (links) und „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand (rechts). Die zusätzlichen Kopplungen sind durch J_2 (blau) und J_d (grün) angedeutet.

Viele Eigenschaften der magnetischen Isolatoren mit einer quasizweidimensionalen Kagome-Struktur können durch das J_1 -Modell mit $S = 1/2$ beschrieben werden. Unter diesen

Materialien gibt es jedoch nur wenige, die sich durch eine dominierende antiferromagnetische Wechselwirkung nächster Nachbarn (J_1) auszeichnen. Einige der aktuell im Fokus stehenden stark-frustrierten synthetischen Materialien, wie zum Beispiel $\text{Cu}_3\text{Zn}(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ (das sogenannte Kapellasit, das neben seiner mineralischen Form auch als metastabiles Polymorph des $S = 1/2$ -Minerals Herbertsmithit vorgefunden werden kann, siehe [139]) und $\text{Cu}_3\text{Mg}(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ (das sogenannte Haydeit) zeigen jedoch neben einer kleinen Kopplung zwischen übernächsten Nachbarn J_2 eine starke (antiferromagnetische) diagonale Kopplung J_d zwischen drittnächsten Nachbarn, die sich auf den Hexagonen gegenüberliegen, siehe Abbildung 3.40. Das Verhältnis der dominanten Kopplungen $\kappa = J_d/J_1$ ist die wesentliche Größe in diesen Materialien [139]. Das Vorhandensein dieser zusätzlichen Kopplung kann zu einer Selektion einiger ausgezeichnete nicht-koplanarer Zustände mit einer zwölfelementigen magnetischen Elementarzelle führen, siehe [139–141], der sogenannte *cuboc-1*- beziehungsweise *cuboc-2*-“Zustand“. Eine Möglichkeit diese komplizierten Zustände zu detektieren, ist, den pseudoskalaren Operator $\hat{K}_{s\Delta}^m = \hat{\mathbf{S}}_{m1} (\hat{\mathbf{S}}_{m2} \times \hat{\mathbf{S}}_{m3}) / S^3$ auf den Plaketten zu untersuchen. Dieser liefert für nicht-koplanare Zustände einen Wert, der von 0 verschieden ist. Insbesondere wird vermutet, dass diese Zustände einen Einfluss auf den anomalen Hall-Effekt in stark korrelierten Elektronen-Systemen in metallischen Materialien haben [130]. Für kleine Werte der Kopplungen $|J_d| \approx 0$ und $|J_2| \approx 0$ ist jeweils einer der beiden konkurrierenden Zustände in Abbildung 3.40, je nach Vorzeichen, bevorteilt.²³

Die RGM-Resultate liegen für dieses Modell bisher nicht vor, es hat sich aber gezeigt, dass wesentliche Merkmale der Physik in der HTE bis zu einer Temperatur von $T \approx S(S+1)$ enthalten sind und Aufschluss über die Entwicklung magnetischer Ordnung geben können. Deshalb soll in diesem Kapitel der skalare Strukturfaktor aus der HTE genutzt werden, um ein qualitatives Bild von der Favorisierung magnetischer Strukturen zu erhalten. Die ersten Entwicklungskoeffizienten des skalaren Strukturfaktors ergeben sich für die Werte

²³Neben dem Einführen von zusätzlichen Austauschkopplungen können auch Anisotropien zu einer Selektion dieser Zustände führen, siehe [142].

der Spinquantenzahl von $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}$ zu ($\tilde{T} = T/S(S+1)$)

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q}, S=1/2}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{4J_1}{9\tilde{T}} \left(2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) + \cos(q_y) \right) \\
&+ \frac{4J_2}{9\tilde{T}} \left(2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) - 4 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos(q_y) \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) - \cos(\sqrt{3}q_x) \right) \\
&- \frac{2J_d}{9\tilde{T}} \left(2 \cos(q_y) \cos(\sqrt{3}q_x) + \cos(2q_y) \right) \\
&+ \frac{4J_1^2}{27\tilde{T}^2} \left(\cos(\sqrt{3}q_x) (2 \cos(q_y) + 1) + 2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{3q_y}{2}\right) + \cos(2q_y) \right) \\
&+ \frac{4J_2^2}{27\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{3\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{3q_y}{2}\right) + (2 \cos(\sqrt{3}q_x) + 1) \cos(3q_y) + \cos(2\sqrt{3}q_x) \right) \\
&+ \frac{2J_d^2}{27\tilde{T}^2} \left((2 \cos(2\sqrt{3}q_x) - 1) \cos(2q_y) + \cos(4q_y) - 2 \cos(\sqrt{3}q_x) \cos(q_y) \right) \\
&+ \frac{8J_1J_2}{27\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \left(\cos(\sqrt{3}q_x) - \cos(q_y) + \cos(2q_y) + 1 \right) \right) \\
&+ \frac{8J_1J_2}{27\tilde{T}^2} \left(\cos(\sqrt{3}q_x) (4 \cos(q_y) + \cos(2q_y)) + \cos(q_y) + 2 \cos(2q_y) \right) \quad (3.116) \\
&+ \frac{8J_1J_d}{27\tilde{T}^2} \left(\cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \left(\cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) (2 \cos(q_y) + 2 \cos(2q_y) - 1) + \cos\left(\frac{3\sqrt{3}q_x}{2}\right) \right) \right) \\
&+ \frac{16J_1J_d}{27\tilde{T}^2} \cos(\sqrt{3}q_x) \cos(q_y)^2 \\
&+ \frac{8J_2J_d}{27\tilde{T}^2} \left(\cos\left(\frac{3\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{5q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \left(2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{7q_y}{2}\right) \right) \right) \\
&+ \frac{16J_2J_d}{27\tilde{T}^2} \cos(\sqrt{3}q_x)^2 \cos(q_y) \\
&+ \dots + \frac{S_{\mathbf{q}, S=1/2, 11}}{[S(S+1)]^{12} \tilde{T}^{11}},
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q}, S=1/2}}{S(S+1)} - \frac{S_{\mathbf{q}, S=1}}{S(S+1)} &= -\frac{5J_1^2}{54\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \cos(q_y) \right) \\
&- \frac{5J_2^2}{54\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{3q_y}{2}\right) + \cos(\sqrt{3}q_x) \right) \quad (3.117) \\
&- \frac{5J_d^2}{108\tilde{T}^2} \left(2 \cos(\sqrt{3}q_x) \cos(q_y) + \cos(2q_y) \right) + \mathcal{O}(\tilde{T}^{-3}),
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q},S=1/2}}{S(S+1)} - \frac{S_{\mathbf{q},S=3/2}}{S(S+1)} &= -\frac{16J_1^2}{135\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \cos(q_y) \right) \\
&\quad - \frac{16J_2^2}{135\tilde{T}^2} \left(2 \cos\left(\frac{\sqrt{3}q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{3q_y}{2}\right) + \cos(\sqrt{3}q_x) \right) \quad (3.118) \\
&\quad - \frac{8J_d^2}{135\tilde{T}^2} \left(2 \cos(\sqrt{3}q_x) \cos(q_y) + \cos(2q_y) \right) + \mathcal{O}(\tilde{T}^{-3}).
\end{aligned}$$

Im vorangegangenen Kapitel wurde das antiferromagnetische Modell $J_1 > 0$ untersucht und sich mit der Frage beschäftigt, ob die magnetische SRO eher dem „ $q = 0$ “-Zustand oder dem „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand entspricht. Durch die zusätzlichen Kopplungen kommt es zu einer Selektion. Wie man an den Gleichungen (3.116), (3.117) und (3.118) sieht, ist die erste Ordnung unabhängig von der Spinquantenzahl und liefert ein grobes analytisches (temperaturunabhängiges) Kriterium, mit dem angegeben werden kann, ob der „ $q = 0$ “-Zustand (\mathbf{Q}_0) oder der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand (\mathbf{Q}_1) stärker ausgeprägt ist: $\Delta^{(1)} = s_{\mathbf{Q}_0,1} - s_{\mathbf{Q}_1,1} = -\frac{2}{9}(J_1 - 8J_2) - J_d$. Die Temperaturabhängigkeit und die Abhängigkeit von der Spinquantenzahl der HTE höherer Ordnung gehen aus Abbildung 3.41 hervor. Zunächst muss bemerkt werden, dass der energetische Unterschied von \mathbf{Q}_0 oder \mathbf{Q}_1 nach klassischer Vorstellung durch J_2 beziehungsweise J_d bereits aus Abbildung 3.40 deutlich wird. Es fällt auf, dass die Domäne des „ $q = 0$ “-Zustands für $S = 1/2$ bei geringerer Temperatur ausgeprägter ist, wobei mit ansteigender Temperatur der „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand zunehmend favorisiert wird.

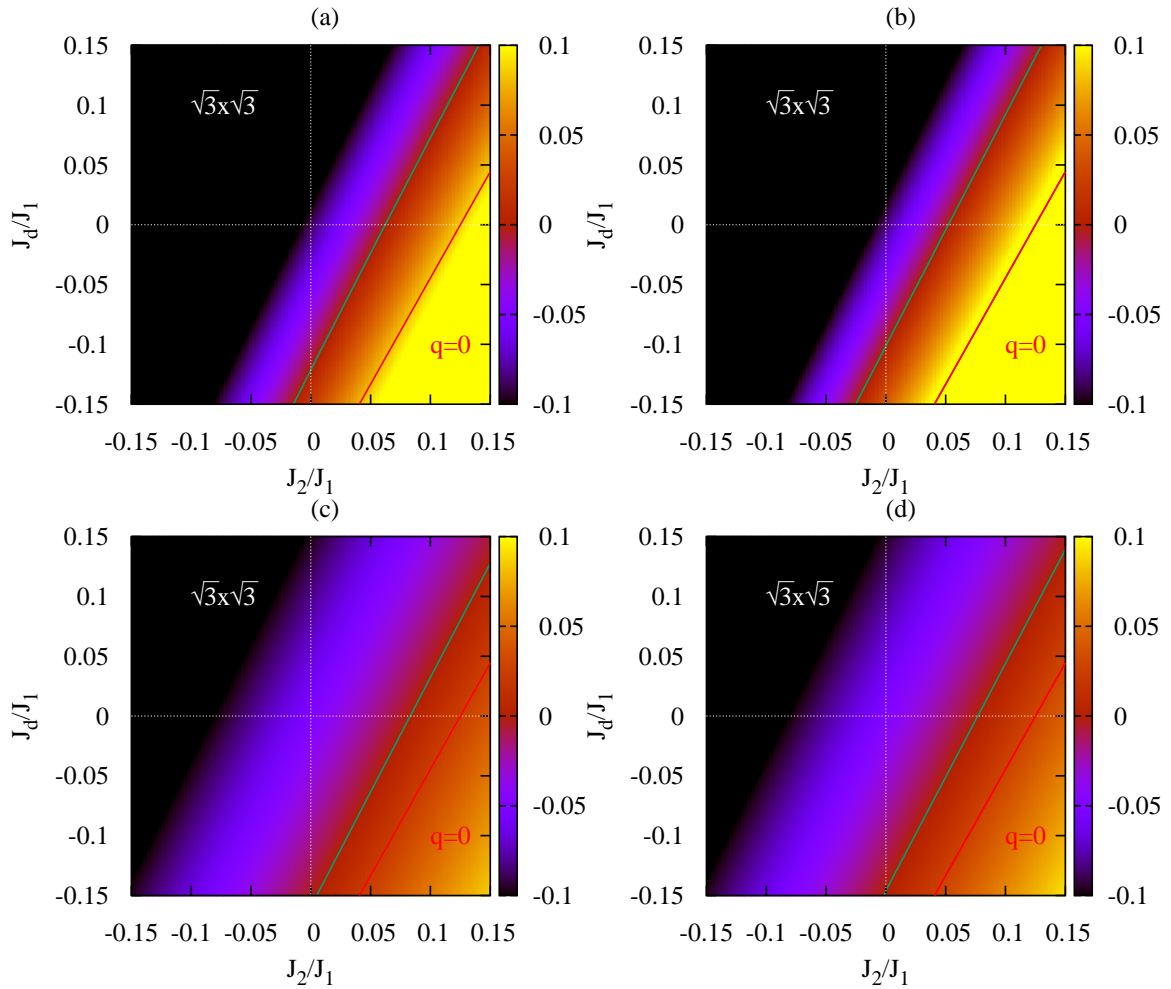


Abbildung 3.41.: Dargestellt ist die Differenz der normierten skalaren Strukturfaktoren $\Delta = (S_{\mathbf{Q}_0,S} - S_{\mathbf{Q}_1,S})/S(S+1)$ beim $J_1(=1)$ - J_2 - J_d Kagome-Modell bei der normierten Temperatur (oben) $T/S(S+1) = 2$ beziehungsweise (unten) $T/S(S+1) = 4$ für den Spin $S = 1/2$ (links, 11. Ordnung) und $S = 3$ (rechts, 9. Ordnung). Zusätzlich aufgetragen ist der spin- und temperaturunabhängige Übergangspunkt $\Delta^{(1)} = -\frac{2}{9}(J_1 - 8J_2) - J_d = 0$ aus der HTE erster Ordnung (rote Linie) und der Übergangspunkt $\Delta = 0$ aus den numerischen Daten (grüne Linie).

Betrachtet man jedoch die gesamte Brillouin-Zone in Abbildung 3.42 und 3.43, so wird ersichtlich, dass hier bei betragsmäßig großen J_2/J_1 und J_d/J_1 Zustände relevant werden, die eben nicht dem einfachen „ $q = 0$ “- oder „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Zustand zugeordnet werden können.

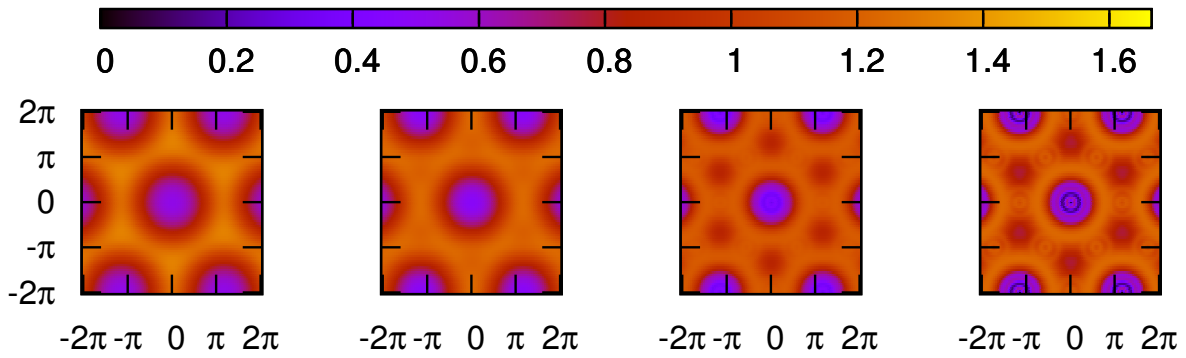


Abbildung 3.42.: Normierter skalarer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q},S}/S(S+1)$ bei der normierten Temperatur $T/S(S+1) = 2$ für den Spin $S = 1/2$ (11. Ordnung). Die Parameter sind gewählt zu $J_1 = 1$ und $J_2 = J_d = 0, 0.2, 0.8, 1$ (von links nach rechts).

Der sogenannte *cuboc-1*-, als auch der *cuboc-2*-Zustand sind, wie eingangs bereits erwähnt, wichtige magnetische Konfigurationen für dieses Regime, die jeweils ein charakteristisches Muster in der Brillouin-Zone bilden, siehe hierzu Abbildung 3.43(iii) und 3.43(iv).

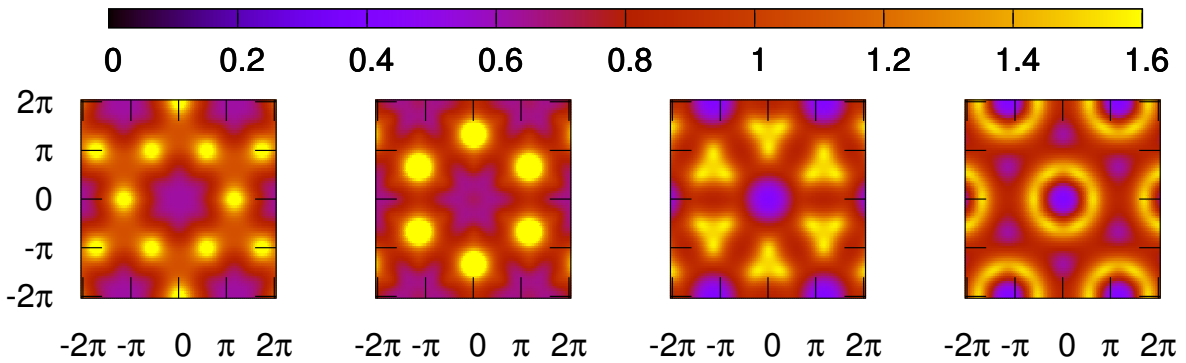


Abbildung 3.43.: Normierter skalarer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q},S}/S(S+1)$ bei der normierten Temperatur $T/S(S+1) = 2$ für den Spin $S = 1/2$ (11. Ordnung). Die Parameter sind gewählt zu: (i) $J_1 = 1, J_2 = 0, J_d = -1$ („ $q = 0^\circ$ “), (ii) $J_1 = 1, J_2 = -1, J_d = 0$ („ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}^\circ$ “), (iii) $J_1 = 1, J_2 = 0, J_d = 1$ (*cuboc-1*) und (iv) $J_1 = 0.1, J_2 = 1, J_d = 1$ (*cuboc-2*) (von links nach rechts). Eine gute Übersicht dieser Phasen findet sich in [143].

Nach aktuellen experimentellen Befunden ist die Wechselwirkung nächster Nachbarn für das Kapellasit ferromagnetisch mit: $J_1 = -12$ K, $J_2 = -4$ K und $J_d = 15.6$ K, siehe [141, 143]. Ebenfalls werden ähnliche Minerale, die auch durch das J_1 - J_2 - J_d -Modell auf dem Kagome-Gitter beschrieben werden können, hinsichtlich ihrer Parameterverhältnisse diskutiert. Eine Möglichkeit bietet das Auswerten von Daten aus Streuexperimenten an Einkristallen, die durch Abgleich der Muster beziehungsweise Punkte in $S_{\mathbf{q},S}$ durch Anpassung an die HTE einen Wert für die jeweiligen berücksichtigten Austauschkopplungen liefern. Für Kapellasit entspräche der skalare Strukturfaktor der linken Abbildung 3.44 und der sphärisch gemittelte Strukturfaktor der rechten Abbildung 3.44 (das Maximum befindet sich hier bei $q_1 \approx 0.5 \text{ \AA}^{-1}$). Dieses Maximum weist für höhere Temperaturen einen leichten Versatz zu tieferen Temperaturen auf, der auch experimentell festgestellt wurde. Für $S = 1/2$ finden sich in [140] experimentelle Daten über das erste Maximum bei

tiefen Temperaturen $q'_1 \approx 0.5 \text{ \AA}^{-1}$ einer Probe von 3 g 98 % deuteriertem Kapellasit. Im Bereich moderater Temperaturen ist das Vorhandensein von „*cuboc-2*“-Ordnung deutlich zu erkennen, vergleicht man beispielsweise mit Abbildung 3.43. Für $T \rightarrow 0$ finden die Autoren in [143], dass Kapellasit in einem Randgebiet zwischen „*cuboc-2*“ und einer quantenparamagnetischen Phase einzuordnen ist. Die favorisierte magnetische Ordnung für $S = 1/2$ scheint sich innerhalb der HTE in diesem Fall, vergleicht man die Abbildungen 3.43 und 3.44, unter dem Einfluss der Temperatur nur geringfügig qualitativ zu ändern.

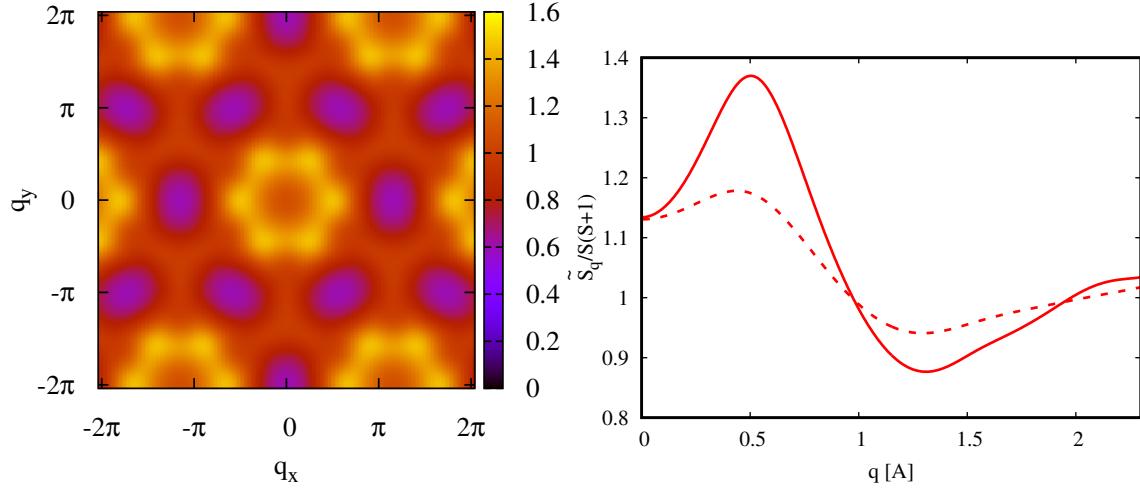


Abbildung 3.44.: (links) Normierter skalarer Strukturfaktor $S_{q,S}/S(S+1)$ bei der normierten Temperatur $T/S(S+1) = 2$ für den Spin $S = 1/2$ (11. Ordnung). (rechts) sphärisch gemittelter und normierter Strukturfaktor $\tilde{S}_q/S(S+1)$ nach Gleichung (3.4) der HTE (Ordnung 10) für $S = 1/2$ als Funktion von q in Einheiten von Å^{-1} (unter Berücksichtigung des experimentell ermittelten Gitterabstands von Kapellasit $a = 3.15 \text{ \AA}$ aus [144]) bei $T/S(S+1) = 2$ (durchgezogene Linie) und $T/S(S+1) = 5$ (gestrichelte Linie). Für beide Abbildungen wurden nach [141, 143] die Werte $J_1 = -1$ (-12 K), $J_2 = -0.3$ (-4 K) und $J_d = 1.3$ (15.6 K) verwendet.

Zusammenfassung Kapitel 3.5: Kagome-Gitter

In Kapitel 3.5 wurde die RGM zunächst auf das Kagome-Gitter mit einer Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn für beliebige Spinquantenzahlen $S \geq 1/2$ angewandt. Es zeigte sich, dass die Minimalvariante der RGM nicht in der Lage ist, eine konsistente Lösung für beliebige S im gesamten Temperaturregime zu liefern. Dieses Problem konnte durch die Berücksichtigung eines weiteren Vertexparameters gelöst werden. Dafür wurde eine weitere Gleichung benötigt, wobei an dieser Stelle die präzisen Daten der CCM für die Energie des GS zur Verfügung standen. Die entsprechenden numerischen Lösungen zeigten eine gute Übereinstimmung mit der HTE bis zu Temperaturen von $T \sim S(S+1)$. Die Analyse des Strukturfaktors $S_{\mathbf{q}}$ ergab für beide Methoden, dass die favorisierte magnetische SRO hier durch „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung beschrieben wird. Der Unterschied zwischen „ $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ “-Ordnung und „ $q = 0$ “-Ordnung nahm in beiden Fällen mit der Spinquantenzahl ab. Aus der Analyse der Korrelationslänge für $S = 1/2$ erkennt man, dass die Ordnung $\xi \approx 1$ extrem kurzreichweitig ist und ungefähr dem Abstand zu den nächsten Nachbarn entspricht. Die Temperatur T^* , für die $\xi_{\mathbf{Q}_i}|_{T^*} = 0.99\xi_{\mathbf{Q}_i}|_{T=0}$ ($i = 0, 1$) gilt und unterhalb deren thermische Fluktuationen gegenüber Quantenfluktuationen vernachlässigbar sind, konnte durch einen *fit* zu $T^* \approx 0.202(\pm 0.001)$ ($T^*/S(S+1) \rightarrow 0$ für $S \rightarrow \infty$) bestimmt werden. Der sphärisch gemittelte Strukturfaktor wurde mittels der HTE untersucht und unter Berücksichtigung des experimentell ermittelten Gitterabstands von Herbertsmithit dargestellt ($a = 3.42 \text{ \AA}$). Es bildeten sich zwei deutliche Maxima bei $q_1 \approx 1.28 \text{ \AA}^{-1}$ und $q_2 \approx 3.24 \text{ \AA}^{-1}$ aus, die annähernd temperatur- und spinunabhängig waren und sehr gut mit den experimentellen Befunden übereinstimmten. In Kapitel 3.5.2 wurde das Modell im Rahmen der HTE auf das experimentell relevante J_1 - J_2 - J_d -Modell erweitert. In erster Ordnung lieferte der skalare Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ ein spin- und temperaturunabhängiges Kriterium für das Auffinden der favorisierten magnetischen Ordnung in einer kompakten analytischen Formel. Für große Werte von $|J_2/J_1|$ oder $|J_d/J_1|$ wurde die Relevanz der *cuboc-1*- beziehungsweise *cuboc-2*-Zustände gezeigt, wobei die quantitative Analyse dieser Phasen innerhalb der HTE ein interessanter Ansatzpunkt für zukünftige Projekte ist. Am Ende des Kapitels wurden die für das Experiment relevanten Parameter verwendet, um den sphärisch gemittelten Strukturfaktor und den skalaren Strukturfaktor innerhalb der HTE auszuwerten.

3.6 Kubisch-Raumzentriertes-Gitter

3.6.1 J_1 - J_2 -Modell

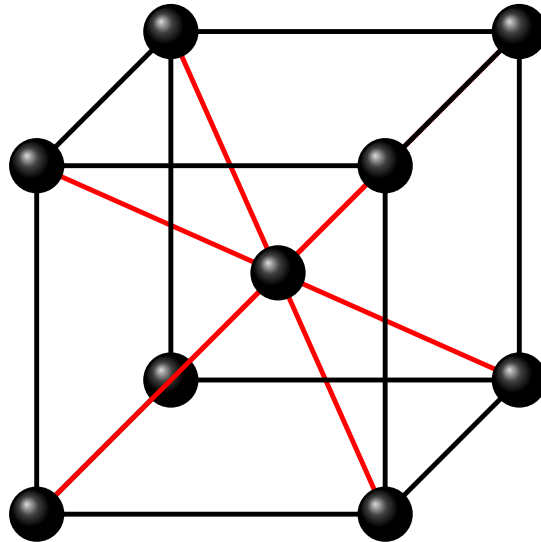


Abbildung 3.45.: Ausschnitt des kubisch-raumzentrierten Gitters. Die Wechselwirkung zwischen nächsten (übernächsten) Nachbarn J_1 (J_2) ist rot (schwarz) markiert. Die Kantenlänge des Kubus beträgt mit den weiter unten gewählten Vektoren $|\mathbf{e}_1| = 1$.

Das Kapitel 3.4 beschäftigte sich mit der Fragestellung, wie sich die kritische Temperatur bei frustrierten Ketten in einer Dimension mit einer schwachen dreidimensionalen Kopplung unter dem Einfluss verschiedener Kopplungsparameter $J_{i,j}$ verhält. Es wurde davon ausgegangen, dass die HTE nicht in der Lage ist, bei kleinen kritischen Temperaturen $T_c \approx 0$ das facettenreiche Zusammenspiel dieser Parameter wiederzugeben. Der Einfluss von Frustration ist nebst der Spinquantenzahl S auch von der Dimension D des Gitters abhängig. In dem kanonischen J_1 - J_2 -Heisenberg-Modell zeigen sich für eine geringe Gitterdimension $D < 3$ bei starken Quantenfluktuationen frustrierter FM oberhalb einer kritischen Schwelle $J_2 > J_2^c$ unkonventionelle Eigenschaften [58, 84, 145–150]. Als geeigneter Gittertyp für ein entsprechendes J_1 - J_2 -Heisenberg-Modell mit $D = 3$, bei dem die konkurrierenden Kopplungen J_1 und J_2 einzeln betrachtet jeweils nicht frustrierend sind, soll in diesem Kapitel das kubisch-raumzentrierte Gitter ($N = 1$) mit einer Wechselwirkung zwischen $z_1 = 8$ nächsten J_1 und $z_2 = 6$ übernächsten J_2 Nachbarn

$$\hat{H} = J_1 \sum_{\langle m,n \rangle} \hat{\mathbf{S}}_m \hat{\mathbf{S}}_n + J_2 \sum_{[m,n]} \hat{\mathbf{S}}_m \hat{\mathbf{S}}_n, \quad (3.119)$$

betrachtet werden. Die Spins sind an den Orten des Vektors $\mathbf{R} = h\mathbf{a}_1 + k\mathbf{a}_2 + l\mathbf{a}_3$ lokalisiert, wobei $\mathbf{a}_i = \frac{1}{2} \sum_j [(1 - 2\delta_{j,i}) \mathbf{e}_j]$ ist (\mathbf{e}_j sind hier die kartesischen Einheitsvektoren). Für unfrustrierte dreidimensionale FM ($J_1 = -1$) mit einer großen Koordinationszahl ist an-

zunehmen, dass die entsprechende kritische Temperatur T_c , zum Beispiel im Vergleich zu den schwach gekoppelten Ketten aus Kapitel 3.4.2, deutlich größer ist. Durch Frustration $J_2 > 0$ wird die kritische Temperatur naturgemäß kleiner.

Zum einen soll in diesem Kapitel die RGM auf das J_1 - J_2 -Heisenberg-Modell mit ferromagnetischem GS angewandt werden, um den kritischen Schwellwert J_2^c , bei dem der ferromagnetische GS zusammenbricht, und die kritische Temperatur $T_c(J_1 = \pm 1, J_2)$ in Abhängigkeit von J_2 zu bestimmen. Zum anderen werden anschließend die Ergebnisse für die kritische Temperatur $T_c(J_1 = \pm 1, J_2)$ paradigmatisch durch Analyse des Struktur-faktors $S_{\mathbf{Q}}$ mit der HTE verglichen. Teile der Ergebnisse nachfolgender Untersuchungen wurden in [59] und [60] veröffentlicht.

Im klassischen Limes $S \rightarrow \infty$ ist der GS ferromagnetisch ($J_1 < 0$) solange $J_2 < J_2^{c,cl} = \frac{2}{3}|J_1|$ gilt. Für $J_2 > J_2^{c,cl}$ ist der Zustand mit der geringsten Energie bei $T = 0$ ein AFM mit dem magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$ [106, 150–153]. Diese magnetische Ordnung lässt sich auch bei der Analyse der ersten Entwicklungsterme des skalaren Struktur-faktors aus der HTE finden, siehe Diskussion unterhalb von Gleichung (3.133) und Abbildung 3.50 weiter unten.

Nun folgen die für die RGM notwendigen Gleichungen. Dabei wird von der Minimalvariante Gebrauch gemacht. Die Dispersionsrelation der RGM ergibt sich nach Kapitel 3.2.1 ($N = 1$) zu

$$\begin{aligned} \omega_{\mathbf{q}}^2 = & J_1^2 z_1 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} - 1) \alpha (c_{001} - c_{002} - 3(c_{101} + c_{121}) + z_1 c_{001} \gamma_{\mathbf{q}}^{(1)}) \\ & - (J_1^2 z_1 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} - 1) + J_2^2 z_2 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} - 1)) \left(\lambda c_{001} + \frac{2}{3} S(S+1) \right) \\ & + J_2^2 z_2 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} - 1) \alpha (c_{101} - c_{202} - 4c_{121} + z_2 c_{101} \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)}) \\ & + J_1 J_2 z_2 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} - 1) \alpha (-4c_{120} - 12c_{001} + z_1 c_{101} \gamma_{\mathbf{q}}^{(1)}) \\ & + J_1 J_2 z_1 (\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} - 1) \alpha (-3c_{120} - 3c_{001} + z_2 c_{001} \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)}) \\ & + J_1 J_2 z_1 z_2 c_{001} (\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} - 1) (\gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} - 1), \end{aligned} \quad (3.120)$$

mit $c_{hkl} \equiv c_{\mathbf{R}} = \langle \hat{S}_{\mathbf{0}}^+ \hat{S}_{\mathbf{R}}^- \rangle = 2 \langle \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{0}} \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{R}} \rangle / 3$, $\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} = \cos(\frac{q_x}{2}) \cos(\frac{q_y}{2}) \cos(\frac{q_z}{2})$ und $\gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} = \frac{1}{3}(\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z))$. Alle symmetriebedingt gleichwertigen Korrelationsfunktionen wurden gleichgesetzt: $c_{01-1} \equiv c_{121}$ und $c_{11-1} \equiv c_{221} \equiv c_{120}$. Für die Minimalversion nach Kapitel 3.2.1, siehe hierzu auch das nachfolgende Kapitel 3.7.1 und Anhang D, werden $\alpha_{ijk} = \alpha$ und $\lambda_{ijk} = \lambda$ gesetzt. Die uniforme Suszeptibilität aus Gleichung (3.40) ergibt sich hier zu

$$\chi_0 = \frac{c_{001} J_1 + c_{101} J_2}{\Delta_{\mathbf{0}}}, \quad (3.121)$$

und liefert mit

$$\begin{aligned} \Delta_{\mathbf{0}} = & J_1^2 \alpha (9c_{001} - c_{002} - 3(c_{101} + c_{121})) - J_1 J_2 \alpha (c_{001} - 8c_{101} + 7c_{120}) \\ & + J_2^2 \alpha (7c_{101} - 4c_{121} - c_{220}) - \lambda (J_1^2 c_{001} + J_2^2 c_{011}) - \frac{2}{3} S(S+1) (J_1^2 + J_2^2), \end{aligned} \quad (3.122)$$

die Kondensatregel $\Delta_{\mathbf{0}} = 0$ für den ferromagnetischen Bereich mit LRO. Die entsprechende Korrelationslänge ergibt sich nach Gleichung (3.45) zu

$$\xi_{\mathbf{0}}^2 = \frac{A + B - 16\alpha (c_{001}^2 J_1^3 + c_{101}^2 J_2^3)}{16 (c_{001} J_1 + c_{101} J_2) \Delta_{\mathbf{0}}}, \quad (3.123)$$

$$\begin{aligned} A = & -J_1^2 J_2 \alpha \left(12c_{001}^2 + c_{001} (31c_{101} - 4c_{120}) + c_{101} (c_{002} + 3(c_{101} + c_{121})) \right) \\ & - c_{101} \left(\lambda c_{001} + \frac{2}{3} S(S+1) \right), \end{aligned} \quad (3.124)$$

$$\begin{aligned} B = & -3J_1 J_2^2 \alpha \left(c_{001} (36c_{101} - 4c_{121} - c_{220}) + c_{101} (16c_{101} + 3c_{120}) \right) \\ & + c_{001} \left(\lambda c_{011} + \frac{2}{3} S(S+1) \right). \end{aligned} \quad (3.125)$$

Sie divergiert also ebenso mit der Forderung $\Delta_{\mathbf{0}} \rightarrow 0$. Die temperaturabhängige Spinsteifigkeit ergibt sich zu

$$\rho_s(T) = \sqrt{\alpha (J_1 + J_2) (c_{001} J_1 + c_{101} J_2)}. \quad (3.126)$$

Es wird sich im nächsten Abschnitt (Kapitel 3.5) dieser Arbeit zeigen, dass die Behandlung von rein antiferromagnetischen Modellen innerhalb der Minimalversion der RGM für $S \geq 1$ bei bestimmten Werten der Vertexparameter für $T = 0$ im Temperaturregime zu Problemen führen kann. Diese spezifischen Probleme werden dort durch die Berücksichtigung weiterer Vertexparameter behoben. Es ist davon auszugehen, dass sich die Qualität der Ergebnisse für den AFM auch in diesem Modell mit der Berücksichtigung weiterer voneinander unterschiedlicher Vertexparameter verbessern lassen kann. An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass die kritischen Temperaturen T_c , die sich innerhalb der Minimalversion der RGM für den AFM ($J_1 = 1$, $\mathbf{Q}_N = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$) ergeben, als (womöglich grobe) Vergleichsdaten für die kritischen Temperaturen aus der HTE verwendet werden. In der Minimalversion der RGM ist es ausreichend, lediglich eine zusätzliche Gleichung nach Kapitel 3.2.1, also $r(T) = \frac{\lambda(T) - \lambda_{\infty}}{\alpha(T) - \alpha_{\infty}} = r(0)$, aufzustellen, damit für alle Temperaturbereiche eine Lösung gefunden werden kann. Es zeigt sich, dass, wie im Kapitel 3.5, der Vertexparameter $\alpha(T = 0, S = 1/2) \approx 1.32768$, $\alpha(T = 0, S = 1) \approx 1.00559$, $\alpha(T = 0, S = 100) \approx 0.605309$ ab einem bestimmten Wert für den Spin kleiner als (oder in der Nähe von) $\alpha_{\infty} = 1$ ist und es demzufolge zu Problemen bei der Lösung im Bereich von Temperaturen $T > 0$ kommen kann. Die Daten $T_c(S, J_2)$ im Rahmen der RGM lassen sich möglicherweise durch eine Anpassung der Grundzustandsenergie, wie sie in Kapitel 3.5 vorgenommen wurde,

verbessern. Eine Veröffentlichung, die diese Daten zur Verfügung stellt, findet sich zum Beispiel in [150].

Für den AFM ($J_1 = -1$, $J_2 > J_2^c$) mit dem magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$ wird ferner die Gleichung der zugehörigen statischen Suszeptibilität

$$\chi_{(\pi,\pi,\pi)} = \frac{6c_{001}J_1 + 9c_{101}J_2}{\Delta_{(\pi,\pi,\pi)}}, \quad (3.127)$$

mit

$$\begin{aligned} \Delta_{(\pi,\pi,\pi)} = & 3\alpha \left(-3J_1J_2(5c_{001} + 3c_{120}) + J_1^2(c_{001} - 6c_{121}) - 3J_2^2(4c_{121} + c_{220}) \right) \\ & + 3\alpha \left(J_1^2(c_{001} - 2(c_{002} + 3c_{101})) - 3J_1J_2(5c_{001} + 3c_{120}) - 15c_{101}J_2^2 \right) \\ & - 2 \left(3c_{001}J_1^2\lambda + S(S+1)(2J_1^2 + 3J_2^2) \right) - 9c_{101}J_2^2\lambda \end{aligned} \quad (3.128)$$

benötigt. Natürlich wird für die magnetisch ferngeordnete Phase in diesem Fall $\Delta_{(\pi,\pi,\pi)} = 0$ als Kondensatbedingung genutzt.

Für den AFM mit dominierender Kopplung nächster Nachbarn ($J_1 = 1$, $J_2 < \tilde{J}_2^c$) mit dem magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_N = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$ wird die Divergenz der entsprechenden statischen Suszeptibilität

$$\chi_{(2\pi,2\pi,2\pi)} = -\frac{3c_{001}}{\Delta_{(2\pi,2\pi,2\pi)}}, \quad (3.129)$$

mit

$$\begin{aligned} \Delta_{(2\pi,2\pi,2\pi)} = & J_1(3\alpha(c_{002} + 3(c_{101} + c_{121})) + 3c_{001}\lambda + 2S(S+1)) \\ & + 3\alpha(7c_{001}J_1 - 3c_{001}J_2 + 3c_{120}J_2) \end{aligned} \quad (3.130)$$

gefordert.

GRUNDZUSTANDSEIGENSCHAFTEN

Zunächst werden einige Ergebnisse der RGM für den GS des frustrierten FM innerhalb der RGM diskutiert.

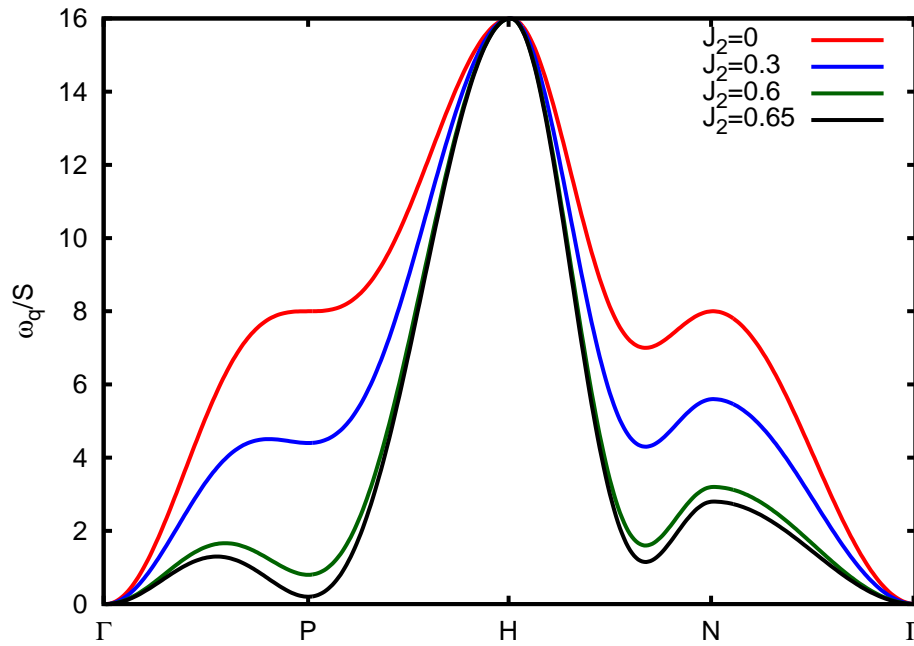


Abbildung 3.46.: Dispersionsrelation der magnetischen Anregungen beim FM ($J_1 = -1$) am Temperaturnullpunkt $T = 0$ für verschiedene J_2 . Die Punkte der Brillouin-Zone sind definiert als $\Gamma = (0, 0, 0)$, $\mathbf{Q}_A = \mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$, $\mathbf{H} = (0, 0, 2\pi)$ und $\mathbf{N} = (\pi, \pi, 0)$. Man beachte: Bei $T = 0$ ist das Spektrum $\omega_{\mathbf{q}}/S$ unabhängig von S .

Im ferromagnetischen Bereich ($J_2 < J_2^c : 2\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{R}} \rangle / 3 = c_{\mathbf{R} \neq 0}(T = 0) = 2S^2/3, \alpha(T = 0) = 3/2, \lambda(T = 0) = 2 - 1/S$) entspricht der GS dem klassischen Zustand und die Spinsteifigkeit ist eine einfache zur Spinquantenzahl S direkt proportionale Größe: $\rho_s(0) = \rho_s(T = 0) = S|J_1 + J_2|$. Diese stimmt, bedingt durch die einfache Gestalt des Zustands, mit dem Resultat einfacherer Theorien, wie etwa der linearen Spinwellentheorie, siehe hierzu beispielsweise [10], überein. Es fällt auf, dass die eben erwähnte Größe durch den Einfluss von J_2 abnimmt und am klassischen Übergangspunkt endlich bleibt. Das von der Spinquantenzahl unabhängige Dispersionsspektrum $\omega_{\mathbf{q}}/S$ in Abbildung 3.46 zeigt bei Annäherung an den Wert $J_2 \rightarrow J_2^{cl}$ die Herausbildung einer weichen Mode für den magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_A = \mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$.

In $D = 1$ existiert hingegen keine weiche Mode, die Spinsteifigkeit ρ_s verschwindet am quantenkritischen Punkt $J_2 = J_2^c = |J_1|/4$ (wobei der führende Entwicklungsterm von $\omega_{\mathbf{q}}$ proportional zu $\sim \mathbf{q}^4$ bei $J_2 = J_2^c$ ist), der Übergangspunkt J_2^c ist unabhängig von S , und der magnetische Ordnungsvektor \mathbf{Q} ändert sich kontinuierlich von $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ zu $\mathbf{Q} \neq \mathbf{0}$ beim Überschreiten des Punktes J_2^c , siehe hierzu auch [80, 84, 145–147].

In $D = 2$ ergibt sich im Limes des klassischen Übergangspunktes $J_2^{c,clas} = |J_1|/2$ eine kontinuierliche Schar verschwindender Anregungsenergien $\omega_{\mathbf{q}}$ mit $\mathbf{q} = (q, 0)$ und $\mathbf{q} = (0, q)$ im Bereich $0 \leq q \leq \pi$, (anders ausgedrückt, bildet sich in dieser Region ein flaches Band). Dieser flache Teil des Spektrums ist jedoch für den extremen Quantenfall irrelevant, weil $J_2^{c,quant} < J_2^{c,clas}$ gilt, das heißt der Phasenübergang wird zu Werten einer schwächeren frustrierenden Kopplung übernächster Nachbarn verschoben ($J_2^{c,quant} \approx 0.4|J_1|$ für $S =$

1/2, siehe [22, 148]).

Das Verhalten der Dispersionsrelation im GS für $D = 3$ unterscheidet sich demnach von den Eigenschaften frustrierter J_1 - J_2 -FM in der Dimension $D = 1$ (siehe hierzu zum Beispiel [56, 154, 155]) und $D = 2$ [55]. In Anbetracht der Resultate für $D = 1$ und $D = 2$ stellt sich die Frage, ob für $D = 3$ der Übergang J_2^c mit dem klassischen Wert übereinstimmt. Für das antiferromagnetische Modell ($J_1 > 0$) mit $S = 1/2$ ist bekannt, dass sich J_2^c geringfügig zu höheren Werten $J_2^c \sim 0.7J_1 > J_2^{c,clas}$ verschiebt, siehe [151, 152, 156, 157]. Der Übergangspunkt J_2^c für ein ferromagnetisches J_1 wird energetisch durch den Übergangspunkt der GS-Energie mit dem antiferromagnetischen Regime bestimmt, wie es zum Beispiel in [55] getan wurde. Die (klassische) GS-Energie des FM $\lim_{N \rightarrow \infty} (E_{FM}/N) = -4|J_1|S^2 + 3J_2S^2$ hat ihren Übergangspunkt mit der GS-Energie aus dem kollinear antiferromagnetischen Bereich kommend für $S = 1/2$ bei ungefähr $J_2^c \approx 0.63|J_1|$, siehe Abbildung 3.47, und ist damit nahezu identisch mit dem klassischen Ergebnis.

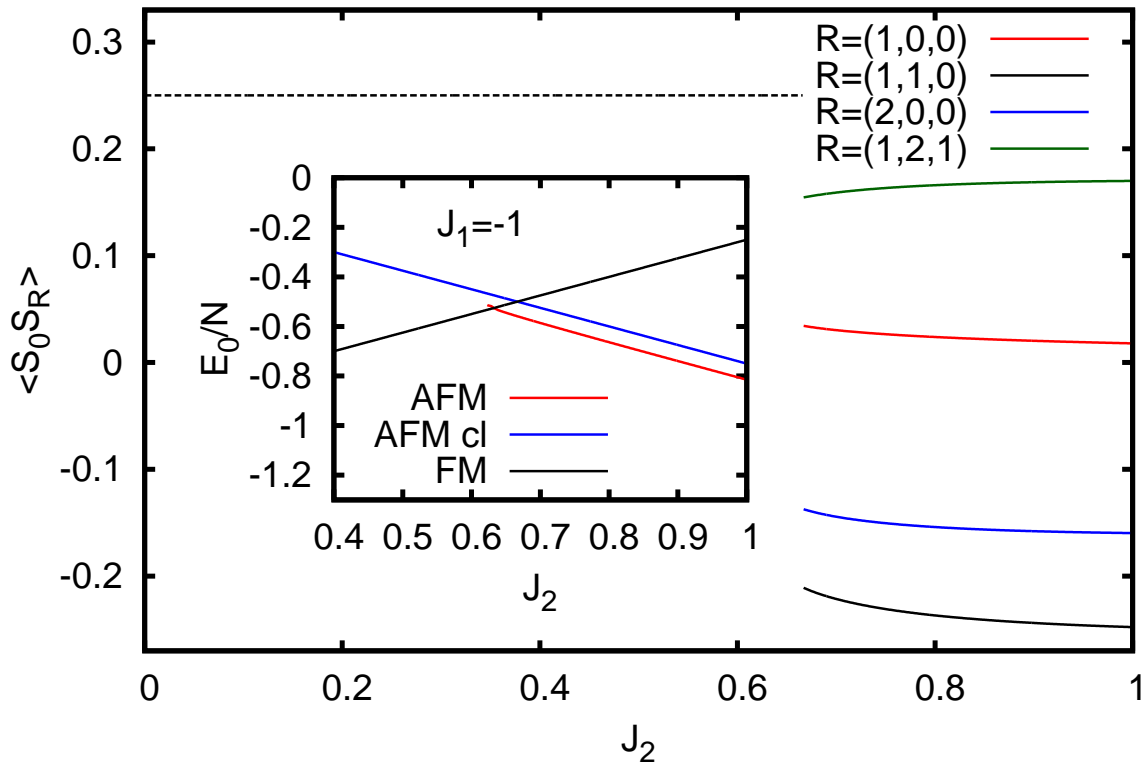


Abbildung 3.47.: Verschiedene Spin-Spin-Korrelationsfunktionen $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_R \rangle$ im GS als Funktion von J_2 für das Spin-1/2-Heisenberg-Modell auf dem kubisch raumzentrierten Gitter im ferromagnetischen ($\mathbf{Q}_F = \mathbf{0}$) und im antiferromagnetischen Regime ($\mathbf{Q}_A = \mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$). Das eingebettete Diagramm zeigt die Energie je Gitterplatz zur Bestimmung von J_2^c . Zum Vergleich ist außerdem der klassische Wert angegeben ('AFM cl').

EIGENSCHAFTEN BEI ENDLICHEN TEMPERATUREN $T > 0$

Die RGM weist im GS die Herausbildung einer weichen Mode bei $J_2 \rightarrow J_2^c$ auf, wobei die normierte Dispersionsrelation $\omega_{\mathbf{q}}/S$ nicht von der Spinquantenzahl abhängig ist. Es verbleibt die Frage, wie der Einfluss der Temperatur auf diese Größe ist, aus der sich auch die SpinstEIFigkeit ableitet, von der nachfolgend gezeigt wird, dass sie frustrationsbedingt unkonventionelle Eigenschaft aufweist.

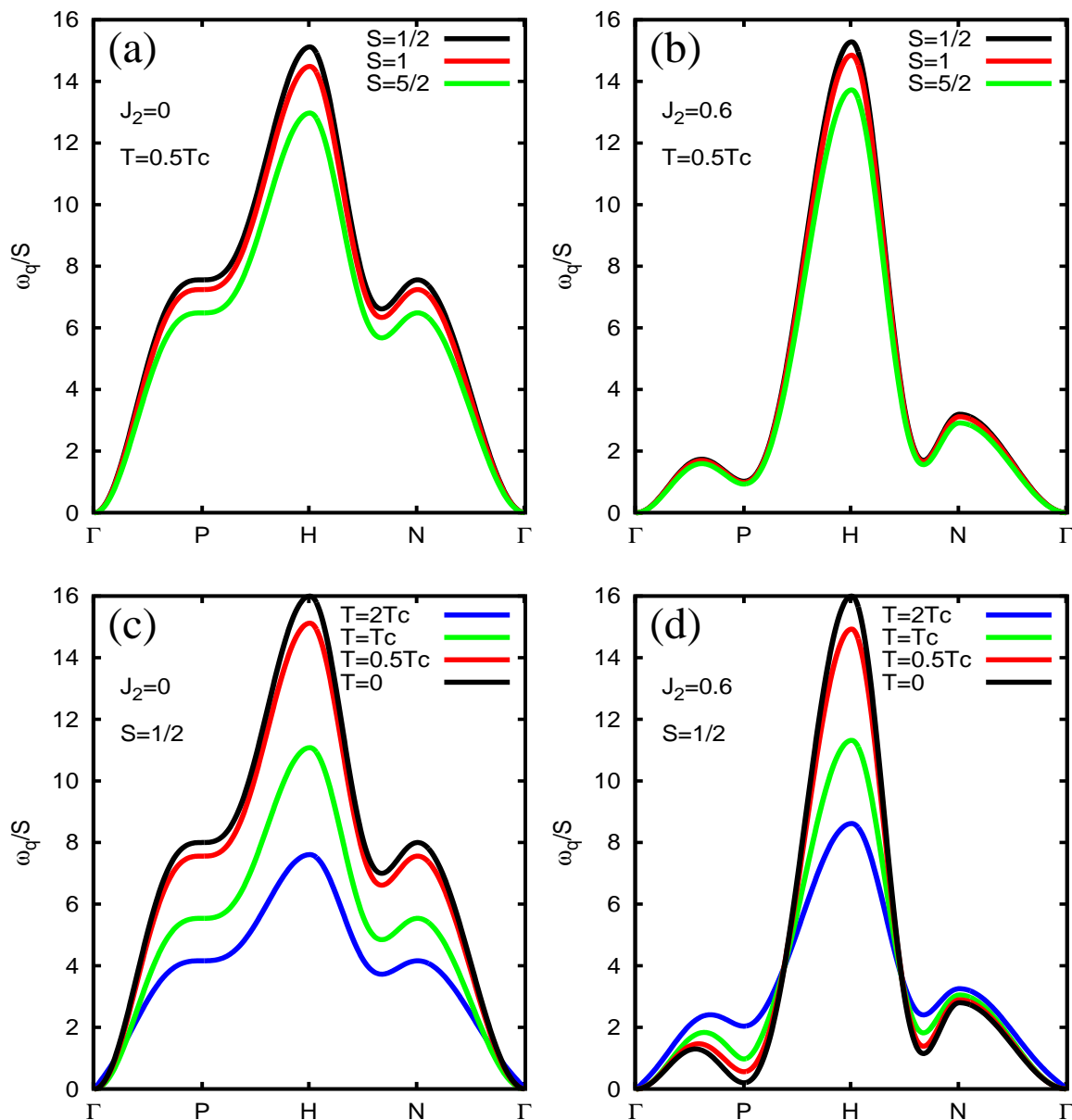


Abbildung 3.48.: Die auf die Spinquantenzahl normierte Dispersion $\omega_{\mathbf{q}}/S$ der magnetischen Anregungen für verschiedene Werte J_2 und fixiertem $J_1 = -1$ bei unterschiedlichen Temperaturen. Die Punkte der Brillouin-Zone sind definiert als $\Gamma = (0, 0, 0)$, $\mathbf{Q}_A = \mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$, $\mathbf{H} = (0, 0, 2\pi)$ und $\mathbf{N} = (\pi, \pi, 0)$.

Die Dispersionsrelation, siehe Gleichung (3.120), ist für den in der Bildunterschrift angegebenen Pfad in der Brillouin-Zone bei verschiedenen Temperaturen in Abhängigkeit der Spinquantenzahl S und der frustrierenden Kopplung J_2 in Abbildung 3.48 dargestellt. Offensichtlich zeigt sich bei endlichen Temperaturen eine Abhängigkeit der normierten Dispersionsrelation $\omega_{\mathbf{q}}/S$ von der Spinquantenzahl S , siehe Abbildungen 3.48(a) und 3.48(b). An den Abbildungen 3.48(c) und 3.48(d) ist erkennbar, dass die Temperatur im Bereich von unter 50% der Curie-Temperatur nur einen geringen Einfluss auf die Dispersion $\omega_{\mathbf{q}}$ hat.

Die wesentlichen Merkmale von $\omega_{\mathbf{q}}$ sind die folgenden: Für kleine Werte von $J_2 \lesssim 0.3$ werden die Anregungsenergien für alle \mathbf{q} -Vektoren reduziert bei ansteigender Temperatur T . In der Nähe des Maximums von $\mathbf{H} = (0, 0, 2\pi)$ ist diese Reduktion für beliebige $J_2 < J_2^c$ zu bemerken. Betrachtet man jedoch den Vektor der weichen Mode $\mathbf{q} = \mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$, siehe Abbildung 3.46, in $\omega_{\mathbf{q}}$ sowie die Spinsteifigkeit ρ_s , so fällt auf, dass die qualitative Temperaturabhängigkeit sich von kleinem J_2 und großem J_2 unterscheidet.²⁴ Bei $\mathbf{q} = \mathbf{P}$ nimmt die Anregungsenergie $\omega_{\mathbf{P}}$ mit steigender Temperatur T bei kleinem J_2 ab, wohingegen sie bei starkem Grad der Frustration J_2 zunimmt, siehe Abbildung 3.49(b). Der Einfluss der Temperatur auf $\omega_{\mathbf{q}}$ in der Nähe des Γ -Punktes zeigt sich wie folgt: Für $T < T_c$ ist die Temperaturabhängigkeit der Anregungsenergien durch die Temperaturabhängigkeit der Spinsteifigkeit ρ_s beschrieben (der Entwicklungsterm von $\omega_{\mathbf{q}}$ ist für kleine $|\mathbf{q}|$ quadratisch), während für $T > T_c$ die Spinwellengeschwindigkeit das Verhalten in der Nähe des Γ -Punktes bestimmt (der Entwicklungsterm von $\omega_{\mathbf{q}}$ ist für kleine $|\mathbf{q}|$ linear). In Abbildung 3.49(a) ist $\rho_s(T)$ als Funktion der Temperatur für $S = 1/2$ bei verschiedenen Werten von J_2 abgebildet. Wie bereits in Kapitel 3.4.2 erwähnt und diskutiert wurde, nimmt die Spinsteifigkeit mit steigender Temperatur ab, sofern der Grad der Frustration durch J_2 nicht zu stark ist. Ab einem Wert von $J_2 \gtrsim 0.6$ zeigt sich auch hier die besondere Eigenschaft, dass $\rho_s(T)$ mit der Temperatur ansteigt. Dieses Verhalten von $\rho_s(T)$ wurde für einen frustrierten FM auf dem kubisch-flächenzentrierten Gitter in der Nähe des Quantenphasenübergangs zu einem antiferromagnetischen Zustand in [115] mittels der nichtlinearen Spinwellentheorie untersucht.²⁵ Für kleine Werte von J_2/J_2^c wurde in [115] ein funktionales Verhalten von ρ_s als Funktion von T nach $\rho_s(T) = \rho_s(0) - BT^\mu$, mit $\mu = 5/2$ und $B > 0$, gefunden. In der Nähe des Quantenphasenübergangs ändert sich der Exponent μ zu $\mu = 5/4$ und der Vorfaktor B wird negativ, gleichbedeutend mit einem Anstieg der Spinsteifigkeit als Funktion der Temperatur. Die RGM $\rho_s(T)$ bestätigt dieses Resultat für das analoge Modell auf dem kubisch-raumzentrierten Gitter mit den folgenden Fitparametern: $B > 0$ und $\mu \approx 2.5$ bei $J_2 \lesssim 0.5$ und $B \approx -0.05$ and $\mu \approx 1.5$

²⁴Es muss an dieser Stelle erwähnt werden, dass das zweite Minimum zwischen \mathbf{H} - und \mathbf{N} -Punkt bei ungefähr $\mathbf{q} \approx 0.66(\pi, \pi, \pi)$ mit dem Minimum von $\mathbf{q} = \mathbf{P}$ zusammenhängt und eine Erscheinung ist, die vom gewählten Pfad $\mathbf{H} \rightarrow \mathbf{N}$ in der Brillouin-Zone abhängt.

²⁵Es ist an dieser Stelle zu bemerken, dass im Unterschied zum kubisch-flächenzentrierten FM, für den $\rho_s(T = 0, J_2 = J_2^c) = 0$ am Übergangspunkt gilt [115], im vorliegenden Modell $\rho_s(T = 0, J_2 = J_2^c) > 0$ ist.

bei $J_2 = 0.6$.

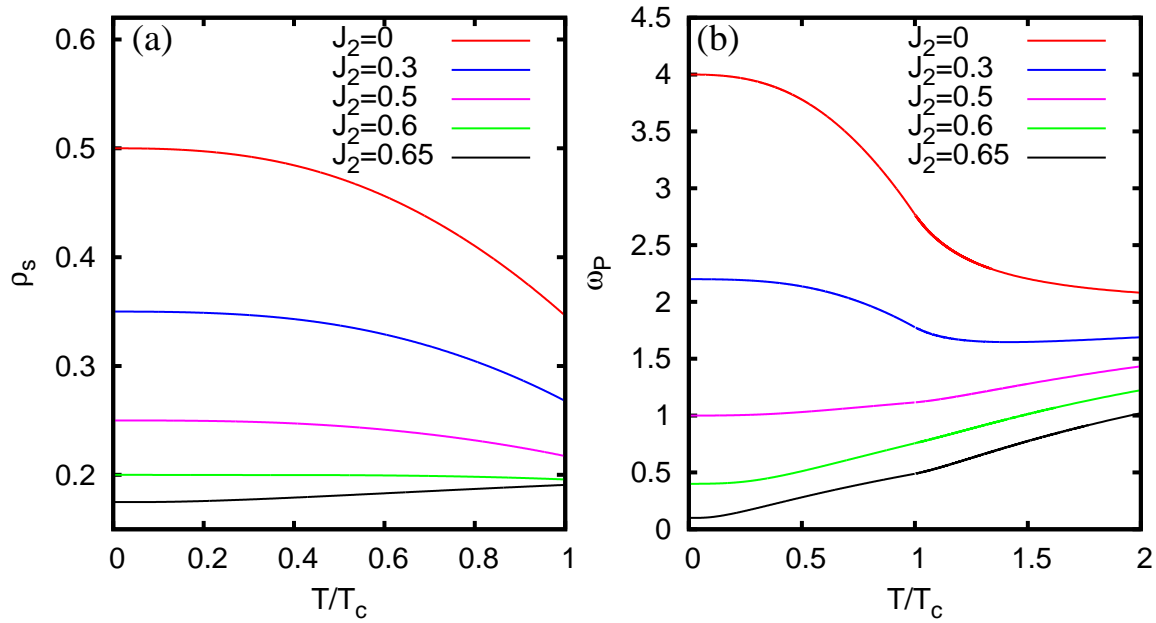


Abbildung 3.49.: Temperaturabhängigkeit der Spinsteifigkeit ρ_s (links) und der Mode $\omega_{\mathbf{P}}$ (am Punkt der weichen Mode des \mathbf{q} -Vektors $\mathbf{P} = (\pi, \pi, \pi)$) (rechts) für $S = 1/2$.

Die kritischen Temperaturen innerhalb der RGM werden analog zu Kapitel 3.4.2 gewonnen. Für die kritischen Temperaturen des AFM aus der HTE werden die entsprechenden Reihen des Strukturfaktors benötigt. Die ersten Entwicklungskoeffizienten des skalaren Strukturfaktors ergeben sich innerhalb der HTE für die Werte der Spinquantenzahl von $S = \frac{1}{2}, 1, \frac{3}{2}$ zu ($\tilde{T} = T/S(S+1)$)

$$\begin{aligned}
\frac{\bar{S}_{\mathbf{q}, S=1/2}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{8J_1}{3\tilde{T}} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \right) \\
&\quad - \frac{2J_2}{3\tilde{T}} (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{8J_1^2}{9\tilde{T}^2} \left(-\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos(q_x)(\cos(q_y) + 1)(\cos(q_z) + 1) \right) \\
&\quad + \frac{2J_1^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_y)(\cos(q_z) + 1) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{32J_1J_2}{9\tilde{T}^2} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \right) \\
&\quad + \frac{8J_2^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_x) \cos(q_y) + \cos(q_x) \cos(q_z) + \cos(q_z) \cos(q_y)) \\
&\quad + \frac{2J_2^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(2q_x) + \cos(2q_y) + \cos(2q_z) - (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z))) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q}, S=1/2, 9}}{[S(S+1)]^{10} \tilde{T}^9}, \tag{3.131}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{\bar{S}_{\mathbf{q},S=1}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{8J_1}{3\tilde{T}} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \right) \\
&\quad - \frac{2J_2}{3\tilde{T}} (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{8J_1^2}{9\tilde{T}^2} \left(-\frac{3}{8} \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos(q_x)(\cos(q_y) + 1)(\cos(q_z) + 1) \right) \\
&\quad + \frac{2J_1^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_y)(\cos(q_z) + 1) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{32J_1J_2}{9\tilde{T}^2} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \right) \\
&\quad + \frac{8J_2^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_x)\cos(q_y) + \cos(q_x)\cos(q_z) + \cos(q_z)\cos(q_y)) \\
&\quad + \frac{2J_2^2}{9\tilde{T}^2} \left(\cos(2q_x) + \cos(2q_y) + \cos(2q_z) - \frac{3}{8} (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \right) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q},S=1,9}}{[S(S+1)]^{10}\tilde{T}^9}, \tag{3.132}
\end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}
\frac{\bar{S}_{\mathbf{q},S=3/2}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{8J_1}{3\tilde{T}} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \right) \\
&\quad - \frac{2J_2}{3\tilde{T}} (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{8J_1^2}{9\tilde{T}^2} \left(-\frac{1}{5} \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos(q_x)(\cos(q_y) + 1)(\cos(q_z) + 1) \right) \\
&\quad + \frac{2J_1^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_y)(\cos(q_z) + 1) + \cos(q_z)) \\
&\quad + \frac{32J_1J_2}{9\tilde{T}^2} \left(\cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \right) \\
&\quad + \frac{8J_2^2}{9\tilde{T}^2} (\cos(q_x)\cos(q_y) + \cos(q_x)\cos(q_z) + \cos(q_z)\cos(q_y)) \\
&\quad + \frac{2J_2^2}{9\tilde{T}^2} \left(\cos(2q_x) + \cos(2q_y) + \cos(2q_z) - \frac{1}{5} (\cos(q_x) + \cos(q_y) + \cos(q_z)) \right) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q},S=3/2,9}}{[S(S+1)]^{10}\tilde{T}^9}. \tag{3.133}
\end{aligned}$$

Wie auch schon in den vorhergehenden Kapiteln zeigt sich erst in der zweiten Ordnung eine Abhängigkeit von der Spinquantenzahl in den Entwicklungstermen des normierten skalaren Strukturfaktors $\bar{S}_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ mit der Darstellung über $\tilde{T} = T/S(S+1)$. Diese zeigt sich in den Vorfaktoren einiger Terme $\sim J_1^2$ und $\sim J_2^2$. Erwartungsgemäß lassen sich klassische Resultate aus der niedrigsten nicht-trivialen Ordnung herleiten. In dem vorliegenden Fall ist das Auffinden der klassisch favorisierten Orientierung der Spins gleichbedeutend mit einer parametrisierten Optimierungsaufgabe der Form $q_{\max} = \arg \max_{0 \leq q \leq 2\pi} \left(-\frac{4}{3} J_1 \cos\left(\frac{q}{2}\right)^3 - J_2 \cos(q) \right)$ ($q = q_x = q_y = q_z$), die mit $J_1 = \pm 1$ auf eine kritische Kopplungsstärke von $J_2^c = \frac{2}{3}$ führt

und außerdem die magnetischen Ordnungsparameter $\mathbf{Q}_F = \mathbf{0}$, $\mathbf{Q}_N = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$ und $\mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$ liefert. In Abbildung 3.50 ist das Profil des Strukturfaktors der Ordnung 9 aus der HTE für $S = 1/2$ bei $T = 2$ gezeigt. Das typische Maximum an den Stellen der magnetischen Ordnungsparameter \mathbf{Q}_M ist deutlich ausgesprägt. Ein Anstieg von J_2 führt in beiden Fällen zu einem Absinken des Maximums bei $\mathbf{Q}_F = \mathbf{0}$ und $\mathbf{Q}_N = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$, was ein Hinweis auf eine Schwächung der magnetischen Konfiguration ist. Die Divergenz von $S_{\mathbf{Q}_M}$ bei $T \rightarrow T_c$, sichtbar in den eingebetteten Diagrammen von Abbildung 3.50, liefert erwartungsgemäß das Kriterium zum Auffinden von T_c . Mit dem Anwachsen von J_2 sieht man außerdem, dass sich ein Nebenmaximum bei $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$ herausbildet, dass den Übergang zur kollinearen antiferromagnetischen Phase für $J_2 > J_2^c$ ankündigt.

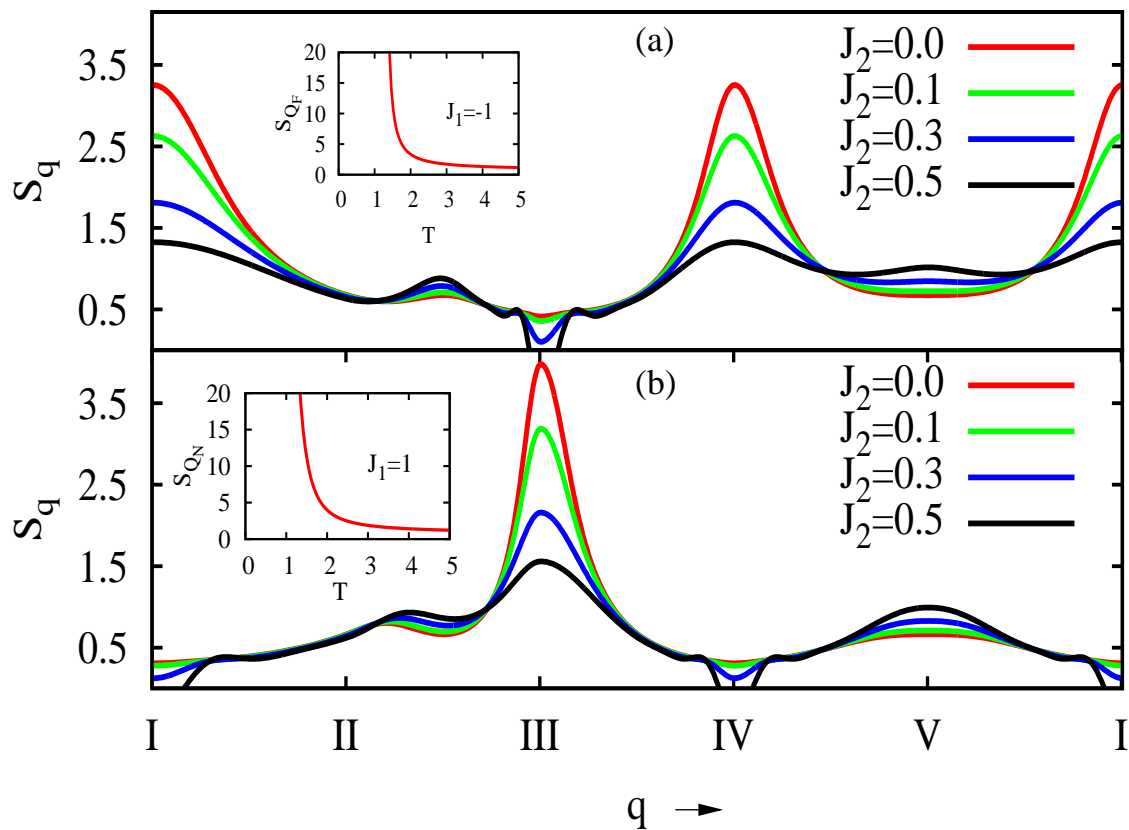


Abbildung 3.50.: Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}$ aus der HTE für $S = 1/2$ als Funktion des Wellenvektors $\mathbf{q} = (q_x, q_y, q_z)$ für verschiedene Werte von J_2 entlang eines Pfades (I,II, III, IV,V) durch die Brillouin-Zone (I= $(0, 0, 0)$; II= $(0, 0, \pi)$; III= $(2\pi, 2\pi, 2\pi)$; IV= $(2\pi, 2\pi, 0)$; V= $\mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$). Die Temperatur ist fixiert auf $T = 2$. In den eingebetteten Diagrammen sind die Höhen der Maxima $S_{\mathbf{Q}}$ für die magnetischen Ordnungsvektoren $\mathbf{Q} = \mathbf{Q}_M$ in Abhängigkeit von T für $J_2 = 0$ dargestellt: (a) FM ($J_1 = -1$), $\mathbf{Q}_M = \mathbf{Q}_F = (0, 0, 0)$ und (b) AFM ($J_1 = 1$), $\mathbf{Q}_M = \mathbf{Q}_N = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$.

Für die kritischen Temperaturen in Abbildung 3.51 wurden einerseits die Minimal-

version der RGM genutzt, die Nullstellen der Nenner der Padé-Approximanten [5, 6] beziehungsweise [6, 5] berechnet und die folgenden Differentialgleichungen der DA nach Kapitel 3.3.1 ausgewertet: $[0/1; 2; 4]$, $[1/1; 2; 3]$, $[0/1; 3; 3]$, $[0/2; 2; 3]$, $[0/0; 3; 4]$, $[0/1; 1; 5]$, $[0/4; 4; \emptyset]$, $[1/2; 5; \emptyset]$, $[1/3; 4; \emptyset]$, $[2/3; 3; \emptyset]$, $[2/2; 4; \emptyset]$, $[0/1; 1; 2; 2]$, $[\emptyset/2; 3; 3]$, $[\emptyset/1; 3; 4]$, $[\emptyset/0; 4; 4]$, $[\emptyset/2; 2; 4]$, $[\emptyset/0; 3; 5]$, $[\emptyset/4; 5; \emptyset]$ und $[\emptyset/5; 4; \emptyset]$. Die Funktion für den frustrierten FM ($J_1 = -1$) kann als Funktion von J_2 innerhalb der RGM an folgende Fitfunktion angeglichen werden: $T_c(S(S+1))^{-1} = A(S) (B(S) - \ln(\frac{2}{3}|J_1| - J_2))^{-1}$, wobei $A(S) = 3.29, 3.42, 3.34, 3.27, 3.22, 3.04$ und $B(S) = 1.41, 1.41, 1.35, 1.31, 1.28, 1.18$ (für $S = 1/2, 1, 3/2, 2, 5/2, 100$) nur geringfügig von der Spinquantenzahl abhängen. In Abbildung 3.51 ist außerdem ersichtlich, dass die kritischen Temperaturen für den unfrustrierten AFM ($J_2 = 0$) größer sind, als jene für den unfrustrierten FM, vergleicht man jeweils die Resultate der verschiedenen Methoden untereinander.

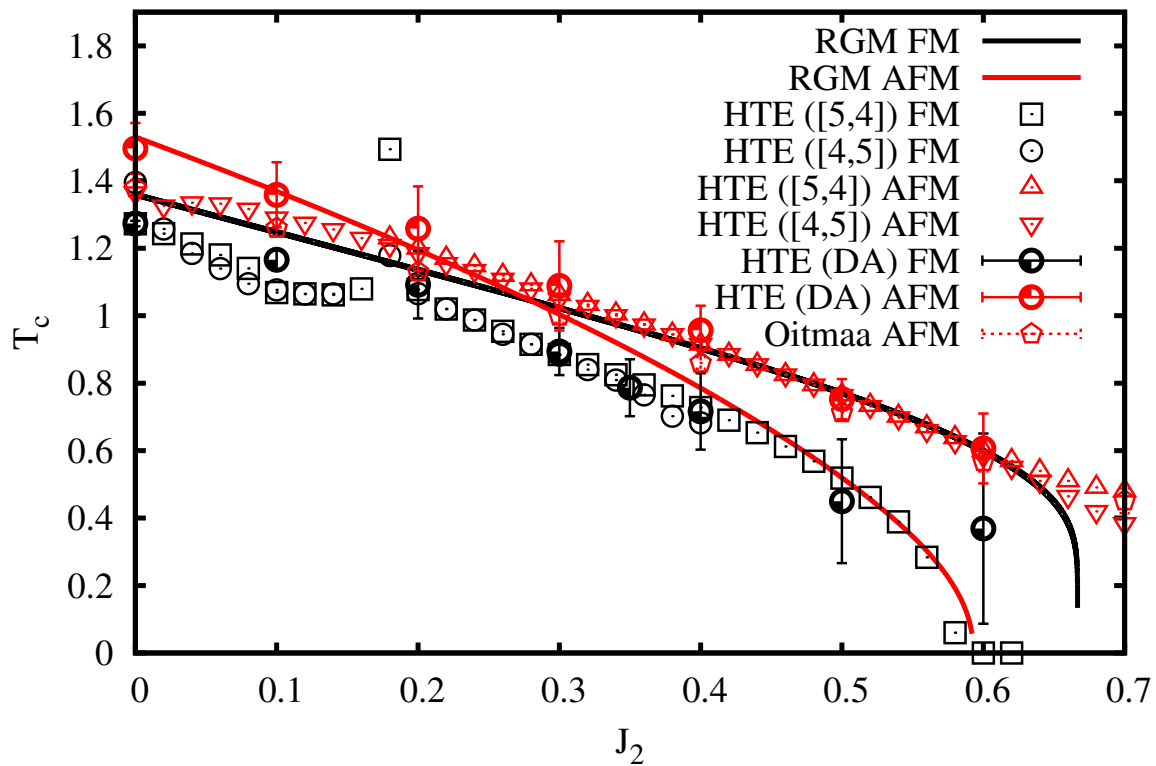


Abbildung 3.51.: Kritische Temperaturen T_c als Funktion der frustrierenden antiferromagnetischen Wechselwirkung J_2 zwischen übernächsten Nachbarn für $S = 1/2$. Die Daten aus der HTE (DA, siehe Kapitel 3.3.1 und aus der Analyse der Nullstellen des Nenners der Padé-Approximanten [5,4] und [4,5]) wurden mit den Daten aus [106] ('Oitmaa AFM') und mit denen von der Minimalversion der RGM verglichen. Die Bezeichnungen 'FM' (schwarz) und 'AFM' (rot) beziehen sich jeweils auf einen Wert der Wechselwirkung nächster Nachbarn von $J_1 = -1$ und $J_1 = 1$.

Es ist ersichtlich, dass die DA in der Lage ist, weniger schwankungsbehaftete Werte für die kritische Temperatur zu liefern, was nicht zuletzt an der Vielzahl betrachteter Gleichun-

gen liegt. Dem steht allerdings ein großer Mehraufwand bei der Analyse der zahlreichen Differentialgleichungen gegenüber. Das Bestimmen der kritischen Temperaturen über die Padé-Approximanten hingegen lässt sich gut automatisieren und so kann mit relativ geringem Aufwand eine umfangreiche Zusammenstellung generiert werden, siehe hierzu Abbildung 3.52. Es muss angemerkt werden, dass hierfür der jeweilige Padé-Approximant keinen unphysikalischen Pol bei $T' > T_c$ ausbilden darf, um eine vernünftige Qualität der Werte zu gewährleisten. Die Abbildung illustriert die Rolle der Quantenfluktuationen durch die Wahl der Spinquantenzahl S . Die Daten zeigen einerseits auf, dass die normierten kritischen Temperaturen leicht mit S anwachsen. Zudem ist erkennbar, dass der Unterschied zwischen AFM und FM im klassischen Limes verschwindet (ein ähnliches Bild zeigt sich bei der Analyse der Approximanten [4,5], auf deren Abbildung wegen des Umfangs an dieser Stelle verzichtet wird). Eine mögliche Verbesserung der Ergebnisse lässt sich wahrscheinlich durch die Untersuchung aller möglicher Padé-Approximanten erzielen.

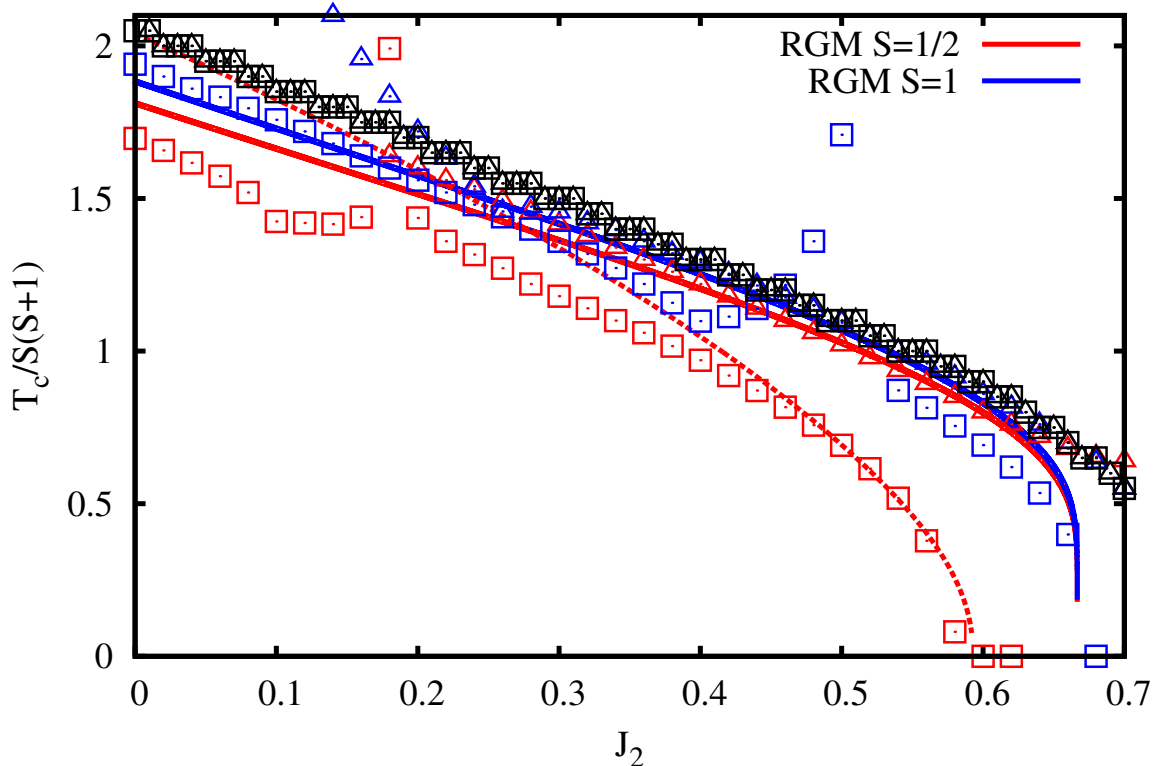


Abbildung 3.52.: Kritische normierte Temperaturen $T_c/S(S+1)$ als Funktion der frustrierenden antiferromagnetischen Wechselwirkung J_2 zwischen übernächsten Nachbarn für $S = 1/2, 1, 100$ (rot, blau, schwarz) aus der HTE durch die automatisierte Analyse der ersten von hohen Temperaturen kommenden Nullstelle des Nenners der Padé-Approximanten [5,4]. Die Werte der Wechselwirkung nächster Nachbarn sind hier $J_1 = -1$ (RGM: durchgezogene Linien; HTE: Quadrate) und $J_1 = 1$ (RGM: gestrichelte Linien; HTE: Dreiecke).

Zusammenfassung Kapitel 3.6: Kubisch-Raumzentriertes-Gitter

In Kapitel 3.6 wurden zunächst die zur Lösung benötigten Gleichungen innerhalb der Minimalversion der RGM für das kubisch-raumzentrierte-Gitter mit einer Kopplung zwischen nächsten (J_1) und übernächsten (J_2) Nachbarn angegeben. Anschließend wurde der quantenkritische Übergangspunkt für $S = 1/2$ zu $J_2^c \approx 0.63|J_1|$ bestimmt. Der frustrierte FM im GS wies dabei analytisch die Ausbildung einer weichen Mode in der bezüglich der Spinquantenzahl S forminvarianten skalierten Dispersionsrelation der Anregungen $\omega_{\mathbf{q}}/S$ bei Annäherung an $J_2^c \rightarrow 2|J_1|/3$ für den magnetischen Ordnungsvektor $\mathbf{Q}_A = (\pi, \pi, \pi)$ auf. Dabei zeigte sich, dass die Spinsteifigkeit $\rho(S)$ am Übergangspunkt endlich bleibt. Unter Einfluss der Temperatur wies diese außerdem die besondere Eigenschaft auf, bei starker Frustration in der Nähe der kritischen Temperatur $T \lesssim T_c$ mit der Temperatur anzusteigen. Anschließend wurde im Rahmen der HTE der skalare Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}$ entwickelt, um die Qualität der hieraus gewonnenen kritischen Temperaturen zu eruieren. Für den FM konnte für T_c als Funktion von J_2 ($0 \leq J_2 < J_2^c$) eine Fitfunktion der Form $T_c(S(S+1))^{-1} = A(S)(B(S) - \ln(2|J_1|/3 - J_2))^{-1}$ aufgestellt werden, die die numerischen Daten der RGM sehr gut beschreibt. Die Parameter $A(S)$ und $B(S)$ weisen dabei eine schwache Abhängigkeit vom Spin auf. Die HTE lieferte hier Werte, für den AFM und den FM, die bei kleinem J_2 und $S = 1/2$ gut mit der Literatur und der RGM übereinstimmen. Dabei war es insbesondere vorteilhaft, die entsprechende Reihe mittels der DA zu analysieren. Diese lieferte einerseits verlässliche Werte auch im Bereich starker Frustration. Andererseits konnte auch eine Schwankungsbreite bestimmt werden. Es ist an dieser Stelle zu konstatieren, dass die HTE vorbehaltlos in der Lage ist, (mindestens) einen magnetischen Ordnungsvektor (analytisch) anzugeben, der die am meisten bevorzugte Spinkonfiguration beschreibt. Für den AFM zeigt sich, dass die Minimalversion der RGM bei Spinquantenzahlen von $S \geq 1$ einer Erweiterung bedarf. Die in diesem Kapitel aufgeführten Gleichungen können nach geeigneter (geringfügiger) Modifikation den Ausgangspunkt solcher zukünftigen Untersuchungen darstellen.

3.7 Pyrochlor-Gitter

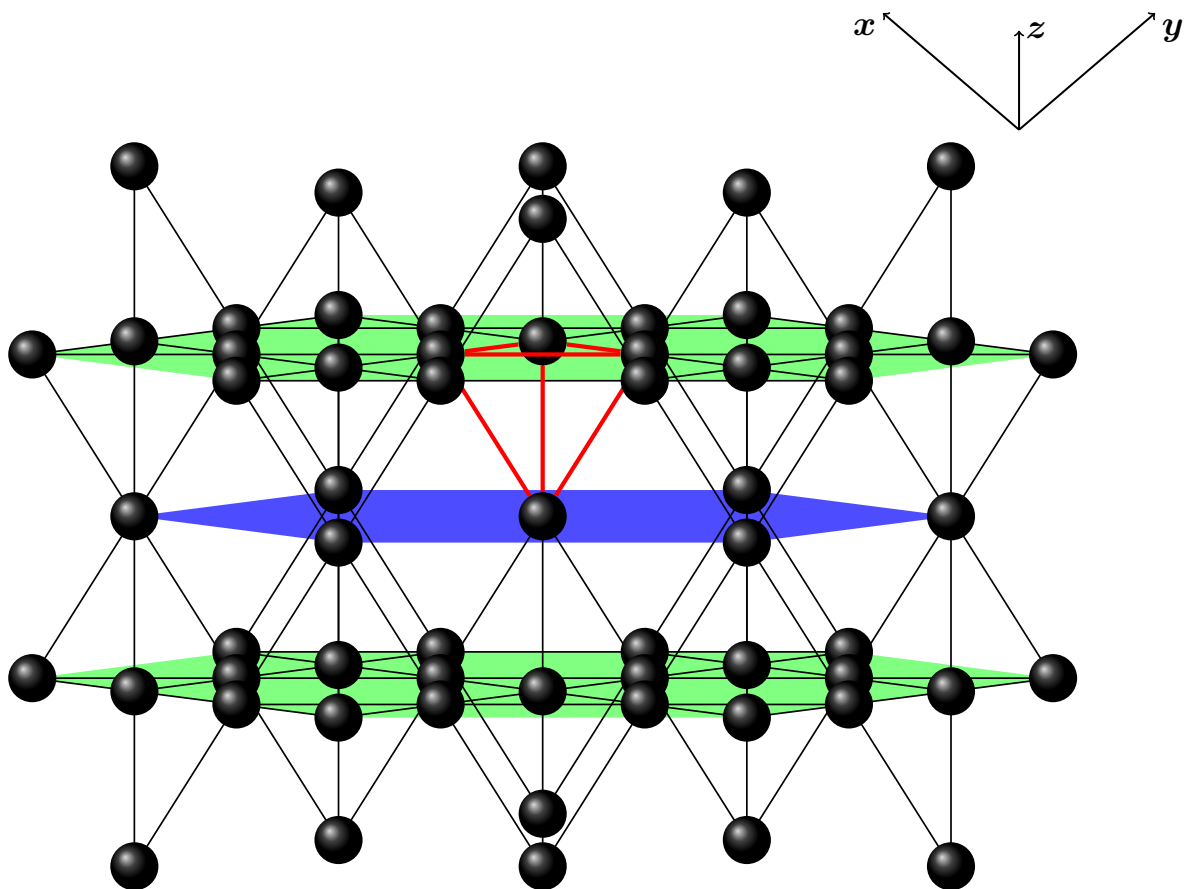


Abbildung 3.53.: Ausschnitt des Pyrochlor-Gitters. Rot markiert ist eine tetraedrische Elementarzelle ($N = 4$). Blau (Grün) eingefärbt ist die Unterstruktur der Dreiecksgitterebene (Kagome-Gitterebene).

In den vorhergehenden Kapiteln wurde der Frage nachgegangen, wie Frustration durch eine konkurrierende Bindung die Ordnungstemperatur in quasieindimensionalen Strukturen beeinflusst. Außerdem wurde das Verhalten von durch die Geometrie des Festkörpers bedingter Frustration eines aus über die Ecken verknüpfter Dreiecke bestehenden zweidimensionalen Modells, dem AFM auf dem Kagome-Gitter, bei unterschiedlicher Spinquantenzahl untersucht. Anschließend wurde das bindungsfrustrierte J_1 - J_2 Modell auf dem dreidimensionalen kubisch-raumzentrierten Gitter für beliebige S betrachtet. Ein dreidimensionales Netzwerk, das aus über die Ecken verknüpfter Tetraeder ($N = 4$) besteht und für das das J_1 -Modell geometrische Frustration aufweist, ist das sogenannte Pyrochlor-Gitter, siehe Abbildung 3.53.

Dieses Gitter, das in der Literatur manchmal als dreidimensionales Analogon des Kagome-Gitters bezeichnet wird, wurde in den letzten 25 Jahren intensiv von verschiedenen Experimentatoren und Theoretikern untersucht [158, 159]. Das entsprechende antiferromagnetische Heisenberg-Modell auf diesem Gitter hat sich als äußerst anspruchsvoll

und herausfordernd erwiesen [158–173]. Es existieren zahlreiche magnetische Materialien, die mit einem antiferromagnetischen Heisenberg-Modell auf dem Pyrochlor-Gitter für tiefe Temperaturen beschrieben werden können [158].²⁶ Bis heute ist weder der GS des entsprechenden antiferromagnetischen Modells hinreichend verstanden, noch sind präzise Werte für die Grundzustandsenergie verfügbar. In den folgenden Abschnitten soll zunächst der reine FM in Kapitel 3.7.1 studiert werden, wobei es sich zeigen wird, dass auch hier Charakteristika von frustrierten Spinsystemen aufzufinden sind. Anschließend soll der AFM in Kapitel 3.7.2 untersucht werden. In beiden Fällen wird erstmalig die RGM auf die entsprechenden Modelle angewendet.

3.7.1 J_1 -Modell: Ferromagnet

In der Literatur ist der reine FM ($J_1 = J < 0$) auf dem Pyrochlor-Gitter weniger im Blickpunkt theoretischer Betrachtungen als der AFM. Zum einen gibt es aber magnetische Materialien, die durch ein solches ferromagnetisches Heisenberg-Modell mit $S = 1/2$ beschrieben werden können [174–176]. Andererseits kann Frustration auch in einem rein ferromagnetischen System Einfluss auf die Thermodynamik nehmen.

$\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ ist ein ferromagnetischer Mott-Isolator mit kleinem *gap* zur ersten Anregung, der in der Pyrochlorstruktur kristallisiert. Den V^{4+} -Ionen kann ein Spin von $S = 1/2$ zugeordnet werden, welche auf den Plätzen eines Pyrochlor-Gitters lokalisiert sind. Aus experimentellen Analysen von $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ geht hervor, dass die entsprechende kritische Temperatur (Curie-Temperatur) $T_c \simeq 70$ K beträgt und die Daten der inelastischen Neutronenstreuung exzellent durch ein Heisenberg-Modell ferromagnetisch wechselwirkender nächster Nachbarn mit einer Stärke von $|J| \simeq 8.22(2)$ meV und einer schwachen Dzyaloshinskii-Moriya Wechselwirkung²⁷ von $D \simeq 1.5(1)$ meV ($T_c \approx 0.73|J|$) beschrieben werden. Für ein anderes ferromagnetisches Material $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ dieser Struktur wurde eine Ordnungstemperatur von $T_c \approx 0.24$ K (entspricht $T_c \approx 0.7|J|$) gemessen [179].

Zwar sind der klassisch kollineare GS und seine Energie nicht durch Frustration beeinflusst, aber die Zustände des AFM sind im vollständigen Spektrum vorhanden²⁸ und durch thermische Fluktuationen zugänglich. Die starke Frustration führt zu einer Verschiebung der antiferromagnetischen Zustände in Richtung des ferromagnetischen GS. Es ist hierbei zu erwarten, dass der reine FM bei $T > 0$ frustrationsbedingte Phänomene aufweisen kann und zum Beispiel die kritische Temperatur durch diesen Effekt reduziert ist. Da

²⁶Hierbei können experimentell relevante Effekte wie die magnetostatische Dipol-Dipol Wechselwirkung und phononische Beiträge, beziehungsweise resultierende Beiträge aus der Spin-Phonon-Kopplung, die magnetischen Eigenschaften substanziell verändern [158].

²⁷Bei der Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung handelt es sich um einen antisymmetrischen Term im Hamilton-Operator, der das Kreuzprodukt der VektorSpin-Operatoren berücksichtigt. Dieser Term ist ein phänomenologischer Ansatz, um in magnetisch geordneten Systemen eine Verkantung von Spins energetisch zu begünstigen. Zurückzuführen ist sie letztlich auf die Spin-Bahn-Kopplung [177, 178].

²⁸Man bedenke hierbei, dass ein Vorzeichenwechsel von $J \rightarrow -J$ die Reihenfolge der nach Größe geordneten Anregungsenergien gerade umkehrt.

innerhalb einer Molekularfeldnäherung nur die Zahl der nächsten Nachbarn $z = 6$ relevant ist, werden die folgenden Ergebnisse mit dem des einfach kubischen Gitters verglichen, welches ebenfalls $z = 6$ nächste Nachbarn besitzt. Für die entsprechenden Formeln der RGM sei auf Kapitel 3.6 verwiesen.²⁹ Die Ergebnisse der nachfolgenden Untersuchungen wurden in [180] veröffentlicht.

Gegenstand der weiteren Betrachtungen in diesem Kapitel soll wieder der Heisenberg-Operator mit einer Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn und beliebigem Spin $(\hat{\mathbf{S}}_{m\alpha})^2 = S(S+1)$ sein

$$\hat{H} = J \sum_{\langle m\alpha, n\beta \rangle} \hat{\mathbf{S}}_{m\alpha} \hat{\mathbf{S}}_{n\beta}.$$

Die vier Elemente der Basis, siehe rotes Tetraeder in Abbildung 3.53, seien nun durch folgende Punkte im Ortsraum beschrieben: $\mathbf{r}_1 = (0, 0, 0)$, $\mathbf{r}_2 = (0, 1/4, 1/4)$, $\mathbf{r}_3 = (1/4, 0, 1/4)$ und $\mathbf{r}_4 = (1/4, 1/4, 0)$. Mit dieser Festlegung wird das gesamte Gitter durch den Translationsvektor $\mathbf{R}_m = m_1 \mathbf{e}_1 + m_2 \mathbf{e}_2 + m_3 \mathbf{e}_3$ (m_1, m_2, m_3 ganzzahlig) mit den Basisvektoren $\mathbf{e}_1 = (0, 1/2, 1/2)$, $\mathbf{e}_2 = (1/2, 0, 1/2)$, und $\mathbf{e}_3 = (1/2, 1/2, 0)$ aufgespannt. Ein beliebiger Punkt im Gitter ist also durch den Vektor $\mathbf{R}_{m\alpha} = \mathbf{R}_m + \mathbf{r}_\alpha$ ($\alpha = 1, 2, 3, 4$) erreichbar. Die Elemente der symmetrischen 4×4 -Momentenmatrix nach Kapitel 3.2 ergeben sich zu

$$\begin{aligned} \frac{M_{\mathbf{q}11}}{J} &= \frac{M_{\mathbf{q}22}}{J} = \frac{M_{\mathbf{q}33}}{J} = \frac{M_{\mathbf{q}44}}{J} = -12c_{100}, \\ \frac{M_{\mathbf{q}12}}{J} &= 4c_{100} \cos\left(\frac{q_x + q_y}{4}\right), \quad \frac{M_{\mathbf{q}13}}{J} = 4c_{100} \cos\left(\frac{q_x + q_z}{4}\right), \\ \frac{M_{\mathbf{q}14}}{J} &= 4c_{100} \cos\left(\frac{q_y + q_z}{4}\right), \quad \frac{M_{\mathbf{q}23}}{J} = 4c_{100} \cos\left(\frac{q_y - q_z}{4}\right), \\ \frac{M_{\mathbf{q}24}}{J} &= 4c_{100} \cos\left(\frac{q_x - q_z}{4}\right), \quad \frac{M_{\mathbf{q}34}}{J} = 4c_{100} \cos\left(\frac{q_x - q_y}{4}\right). \end{aligned} \quad (3.134)$$

An dieser Stelle werden die Indizes ijk an den entsprechenden Größen eingeführt, die zum Beispiel Korrelationsfunktionen von Spins beschreiben, die mit dem Vektor $\mathbf{R} = i\mathbf{r}_2 + j\mathbf{r}_3 + k\mathbf{r}_4$ verknüpft sind: $c_{ijk} \equiv \langle \hat{S}_0^+ \hat{S}_{\mathbf{R}}^- \rangle$. Die Diagonalelemente der symmetrischen Frequenzmatrix sind mit

$$\begin{aligned} \frac{F_{\mathbf{q}11}}{J^2} &= 2 \left(f_1 + \tilde{\alpha}_{100} \left(\cos\left(\frac{q_x + q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x + q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y + q_z}{2}\right) \right) \right), \\ \frac{F_{\mathbf{q}22}}{J^2} &= 2 \left(f_1 + \tilde{\alpha}_{100} \left(\cos\left(\frac{q_x + q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x - q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y - q_z}{2}\right) \right) \right), \\ \frac{F_{\mathbf{q}33}}{J^2} &= 2 \left(f_1 + \tilde{\alpha}_{100} \left(\cos\left(\frac{q_x - q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x + q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y - q_z}{2}\right) \right) \right), \\ \frac{F_{\mathbf{q}44}}{J^2} &= 2 \left(f_1 + \tilde{\alpha}_{100} \left(\cos\left(\frac{q_x - q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x - q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y + q_z}{2}\right) \right) \right), \end{aligned} \quad (3.135)$$

²⁹Man setze hierfür zum Beispiel beim kubisch-raumzentrierten Gitter $J_2 = -1$ und $J_1 = 0$.

anzugeben. Die Nebendiagonalelemente lauten

$$\begin{aligned}
\frac{F_{\mathbf{q}12}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x - q_y}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_x + q_y}{4}\right) \right), \\
\frac{F_{\mathbf{q}13}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x - q_z}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_x + q_z}{4}\right) \right), \\
\frac{F_{\mathbf{q}14}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y - q_z}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_y + q_z}{4}\right) \right), \\
\frac{F_{\mathbf{q}23}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y + q_z}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_y - q_z}{4}\right) \right), \\
\frac{F_{\mathbf{q}24}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x + q_z}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_x - q_z}{4}\right) \right), \\
\frac{F_{\mathbf{q}34}}{J^2} &= \frac{2}{3} \left(6\tilde{\alpha}_{100} \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x + q_y}{4}\right) - f_2 \cos\left(\frac{q_x - q_y}{4}\right) \right),
\end{aligned} \tag{3.136}$$

mit $f_1 = 2S(S+1) + 3(\tilde{\lambda}_{100} + 2(\tilde{\alpha}_{100} + \tilde{\alpha}_{110}) + \tilde{\alpha}_{200})$, $f_2 = 2S(S+1) + 3(\tilde{\lambda}_{100} + 5\tilde{\alpha}_{100} + 2\tilde{\alpha}_{110} + \tilde{\alpha}_{200})$, $\tilde{\lambda}_{ijk} = \lambda_{ijk}c_{ijk}$, und $\tilde{\alpha}_{ijk} = \alpha_{ijk}c_{ijk}$. Die Matrizen kommutieren und lassen sich analytisch diagonalisieren. Die unnormierten Eigenvektoren $|\gamma\mathbf{q}\rangle$ ($\gamma = 1, 2, 3, 4$) ergeben

sich zu

$$\begin{aligned}
|1\mathbf{q}\rangle &\doteq \begin{pmatrix} -\frac{\sin\left(\frac{q_x-q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)} \\ \frac{\sin\left(\frac{q_y+q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)} \\ 0 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad |2\mathbf{q}\rangle \doteq \begin{pmatrix} -\frac{\sin\left(\frac{q_y-q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)} \\ \frac{\sin\left(\frac{q_x+q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)} \\ 1 \\ 0 \end{pmatrix}, \\
|3\mathbf{q}\rangle &\doteq \begin{pmatrix} \frac{2D_{\mathbf{q}} \sin\left(\frac{q_y+q_z}{4}\right) + \sin\left(\frac{2q_x+q_y-q_z}{4}\right) + \sin\left(\frac{2q_x-q_y+q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x-q_y}{2}\right) + \sin\left(\frac{q_x-q_z}{2}\right) - \sin\left(\frac{q_y+q_z}{2}\right)} \\ -\frac{2\left(D_{\mathbf{q}} \sin\left(\frac{q_x-q_z}{4}\right) + \sin\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x+q_z}{4}\right)\right)}{\sin\left(\frac{q_x-q_y}{2}\right) + \sin\left(\frac{q_x-q_z}{2}\right) - \sin\left(\frac{q_y+q_z}{2}\right)} \\ -\frac{2\left(D_{\mathbf{q}} \sin\left(\frac{q_x-q_y}{4}\right) + \sin\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)\right)}{\sin\left(\frac{q_x-q_y}{2}\right) + \sin\left(\frac{q_x-q_z}{2}\right) - \sin\left(\frac{q_y+q_z}{2}\right)} \\ 1 \end{pmatrix}, \\
|4\mathbf{q}\rangle &\doteq \begin{pmatrix} \frac{-2D_{\mathbf{q}} \sin\left(\frac{q_y+q_z}{4}\right) + \sin\left(\frac{2q_x+q_y-q_z}{4}\right) + \sin\left(\frac{2q_x-q_y+q_z}{4}\right)}{\sin\left(\frac{q_x-q_y}{2}\right) + \sin\left(\frac{q_x-q_z}{2}\right) - \sin\left(\frac{q_y+q_z}{2}\right)} \\ \frac{4 \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x-q_y}{4}\right) \left(D_{\mathbf{q}} + \cos\left(\frac{q_x+q_y}{2}\right) + 3\right) + 4 \cos\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right) \left(3D_{\mathbf{q}} + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + 3\right)}{\Upsilon_4} \\ \frac{2\left(D_{\mathbf{q}} \sin\left(\frac{q_x-q_y}{4}\right) - \sin\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x+q_y}{4}\right)\right)}{\sin\left(\frac{q_x-q_y}{2}\right) + \sin\left(\frac{q_x-q_z}{2}\right) - \sin\left(\frac{q_y+q_z}{2}\right)} \\ 1 \end{pmatrix},
\end{aligned} \tag{3.137}$$

$$\begin{aligned}
\text{mit } \Upsilon_4 &= \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \left(4(D_{\mathbf{q}} + 3) \cos\left(\frac{q_y - q_z}{4}\right) + 2 \cos\left(\frac{1}{4}(3q_y + q_z)\right) + \cos\left(\frac{1}{4}(q_y + 3q_z)\right)\right) \\
&+ 4 \cos\left(\frac{q_y + q_z}{4}\right) \left(3D_{\mathbf{q}} + \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + 3 - \sin\left(\frac{q_x}{2}\right) \sin\left(\frac{1}{4}(q_y + 3q_z)\right)\right) \\
&+ 4 \cos\left(\frac{q_y + q_z}{4}\right) \left(\cos\left(\frac{1}{4}(2q_x - q_y - 3q_z)\right)\right),
\end{aligned} \tag{3.138}$$

wobei

$$D_{\mathbf{q}}^2 = 1 + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \tag{3.139}$$

ist.

Mit diesen (temperaturunabhängigen) Eigenvektoren ergeben sich die Eigenwerte

$$\begin{aligned}
\frac{m_{1\mathbf{q}}}{J} = \frac{m_{2\mathbf{q}}}{J} = \frac{m_{3\mathbf{q}}}{J} + \frac{m_{4\mathbf{q}}}{J} &= -16c_{100}, \\
\frac{m_{3\mathbf{q}}}{J} - \frac{m_{4\mathbf{q}}}{J} &= -8c_{100}D_{\mathbf{q}},
\end{aligned} \tag{3.140}$$

der Momentenmatrix.

Das Spektrum der magnetischen Anregungen folgt aus den Eigenwerten der Frequenzma-

trix mit

$$\begin{aligned}\frac{\omega_{1\mathbf{q}}^2}{J^2} &= \frac{\omega_{2\mathbf{q}}^2}{J^2} = \frac{8}{3}(2S(S+1) + 3\tilde{\lambda}_{100} + 9\tilde{\alpha}_{100} + 6\tilde{\alpha}_{110} + 3\tilde{\alpha}_{200}), \\ \frac{\omega_{3\mathbf{q}}^2}{J^2} + \frac{\omega_{4\mathbf{q}}^2}{J^2} &= \frac{8}{3}(2S(S+1) + 3\tilde{\lambda}_{100} + 3(D_{\mathbf{q}}^2 - 1)\tilde{\alpha}_{100} + 6\tilde{\alpha}_{110} + 3\tilde{\alpha}_{200}), \\ \frac{\omega_{3\mathbf{q}}^2}{J^2} - \frac{\omega_{4\mathbf{q}}^2}{J^2} &= \frac{8}{3}D_{\mathbf{q}}S(S+1) + 4D_{\mathbf{q}}(\tilde{\lambda}_{100} + 3\tilde{\alpha}_{100} + 2\tilde{\alpha}_{110} + \tilde{\alpha}_{200}).\end{aligned}\quad (3.141)$$

In Gleichung (3.141) ist zunächst erkennbar, dass es zwei dispersionslose (flache) Äste im Spektrum, nämlich $\omega_{1\mathbf{q}}$ und $\omega_{2\mathbf{q}}$, gibt. Im langwelligigen Limes $|\mathbf{q}| \rightarrow 0$ ist erkennbar, dass $D_{\mathbf{q}}^2 \rightarrow 4$, $m_{3\mathbf{q}} \rightarrow m_{1\mathbf{q}} = m_{2\mathbf{q}}$, und $m_{4\mathbf{q}} \rightarrow 0^+$, sowie $\omega_{3\mathbf{q}}^2 \rightarrow \omega_{1\mathbf{q}}^2 = \omega_{2\mathbf{q}}^2$ und $\omega_{4\mathbf{q}}^2 \rightarrow 0^+$ gilt. Offensichtlich ist $\omega_{4\mathbf{q}}$ der akustische Ast des Spektrums.

Im Limes verschwindender Temperatur $T = 0$ und unendlich großer Temperatur $T \rightarrow \infty$ nehmen die Energien aus Gleichung (3.141) eine einfache Form an. Für $T = 0$ gelten $c_{ijk} = 2S^2/3$, $\alpha_{ijk} = 3/2$, und $\lambda_{ijk} = 2 - 1/S$, siehe Anhang D. Als Ergebnis folgen $\omega_{1\mathbf{q}}^2/J^2 = \omega_{2\mathbf{q}}^2/J^2 = 64S^2$, $\omega_{3\mathbf{q}}^2/J^2 = 4S^2(D_{\mathbf{q}} + 2)^2$ und $\omega_{4\mathbf{q}}^2/J^2 = 4S^2(D_{\mathbf{q}} - 2)^2$.

Für $T \rightarrow \infty$ ist offensichtlich, dass räumlich getrennte Spins $c_{ijk} = 0$ ($|i| + |j| + |k| \neq 0$) unkorreliert sind, was zu $\omega_{1\mathbf{q}}^2/J^2 = \omega_{2\mathbf{q}}^2/J^2 = 16S(S+1)/3$, $\omega_{3\mathbf{q}}^2/J^2 = 4S(S+1)(2 + D_{\mathbf{q}})/3$ und $\omega_{4\mathbf{q}}^2/J^2 = 4S(S+1)(2 - D_{\mathbf{q}})/3$ führt.

Die entsprechenden Äste für die beiden Temperaturgrenzfälle sind in Abbildung (3.54) dargestellt. Es soll an dieser Stelle noch einmal darauf hingewiesen werden, dass die Dispersionen der RGM eine Temperaturabhängigkeit besitzen. Diese zeichnen sich insbesondere im Hinblick auf die RPA und die lineare Spinwellentheorie durch eine detailliertere Beschreibung des behandelten Systems aus. Anhand von Abbildung (3.54) ist außerdem zu erkennen, dass die Breite des Spektrums beginnend von $T = 0$ mit $\Delta\omega(T \rightarrow 0) = 8S|J|$ variiert bis $\Delta\omega(T \rightarrow \infty) = 4S(S+1)|J|/\sqrt{3}$. Insbesondere fällt hierbei auf, dass die Breite des Spektrums bei steigenden Temperaturen für Werte von $S \leq 2$ eine Komprimierung erfährt. Am Γ -Punkt können die normierten Eigenvektoren durch folgende einfache Form

$$|1\mathbf{0}\rangle \doteq \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -1 \\ -1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}, |3\mathbf{0}\rangle \doteq \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ -1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}, |2\mathbf{0}\rangle \doteq \frac{1}{2} \begin{pmatrix} -1 \\ 1 \\ -1 \\ 1 \end{pmatrix}, |4\mathbf{0}\rangle \doteq \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 \\ 1 \\ 1 \\ 1 \end{pmatrix}, \quad (3.142)$$

beschrieben werden, wobei der Eigenvektor $|4\mathbf{0}\rangle$ der ferromagnetischen Konfiguration zuzuordnen ist. An dieser Stelle muss bemerkt werden, dass die Eigenwerte der Eigenvektoren $|\gamma\mathbf{0}\rangle$ ($\gamma = 1, 2, 3$) entartet sind und beliebige Linearkombinationen gebildet werden

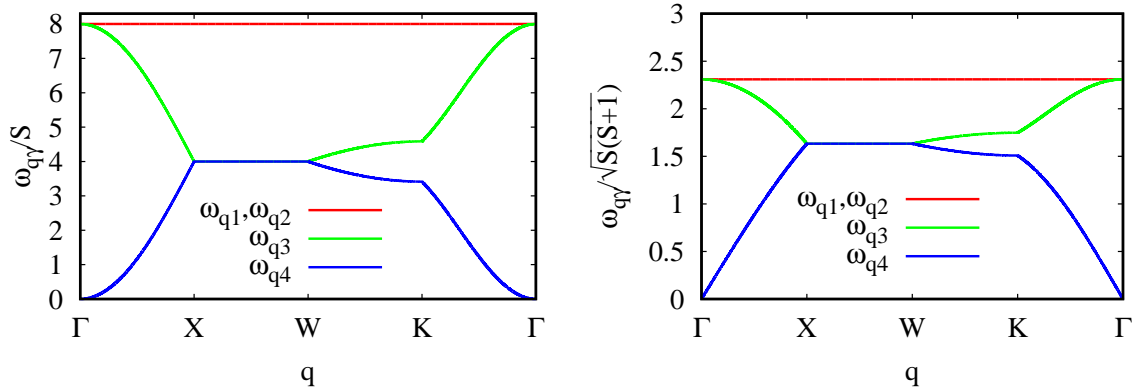


Abbildung 3.54.: Dispersion der magnetischen Anregungsenergien $\omega_{\mathbf{q}\gamma}$ (nach Gleichung (3.141), mit $J = -1$) bei $T = 0$ (links) und im Limes $T \rightarrow \infty$ (rechts). Hierbei ist $\omega_{\mathbf{q}\gamma}/S$ bei $T = 0$ unabhängig von S , wobei $\omega_{\mathbf{q}\gamma}/\sqrt{S(S+1)}$ unabhängig von S ist bei $T \rightarrow \infty$. Die Punkte Γ , X, W und K sind die entsprechenden Punkte der Brillouin-Zone eines kubisch flächenzentrierten Bravaisgitters und durch $\Gamma = (0, 0, 0)$, $X = (0, 2\pi, 0)$, $W = (\pi, 2\pi, 0)$, $K = (3\pi/2, 3\pi/2, 0)$ gegeben, siehe beispielsweise [181] oder Abbildung 3.69 im folgenden Kapitel 3.7.2 auf Seite 151.

können. Die uniforme Suszeptibilität besitzt ebenfalls eine einfache Form

$$\chi_0 = \lim_{(\mathbf{q}, \omega) \rightarrow (0, 0)} \frac{1}{4} \sum_{\alpha, \beta} \frac{\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}(\omega)}{2} = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \frac{m_{4\mathbf{q}}}{2\omega_{4\mathbf{q}}^2} = -\frac{3c_{100}}{\Delta}, \quad (3.143)$$

$$\frac{\Delta}{J} = 2S(S+1) + 3\tilde{\lambda}_{100} - 15\tilde{\alpha}_{100} + 6\tilde{\alpha}_{110} + 3\tilde{\alpha}_{200}, \quad (3.144)$$

und liefert zugleich die für den Bereich $T \leq T_c$ wichtige Kondensatregel $\Delta = 0$. Beschreibt man die Phase mit Kondensat, so müssen prinzipiell verschiedene Kondensatterme $C_{\mathbf{Q}\alpha\beta}$ nach Kapitel 3.2.1 berücksichtigt werden. Es erweist sich im Limes des ferromagnetischen Ordnungsvektors $\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q} = \mathbf{0}$ bei analytischer Untersuchung von $\chi_{\mathbf{q}\alpha\beta}^{+-}$, dass lediglich ein Kondensatterm C_0 unterschieden werden muss, was nicht zuletzt an den Eigenschaften der Eigenvektoren (3.142) liegt.

Die Korrelationslänge ergibt sich zu $\xi_0 = \sqrt{|J|\alpha_{100}\chi_0/8}$ (einfach kubisches Gitter: $\xi_0 = \sqrt{|J|\alpha_{100}\chi_0}$).³⁰ Der Unterschied im Faktor $1/\sqrt{8}$ lässt sich, wie man weiter unten sehen wird, aus Gründen der Geometrie verstehen.

Eine Entwicklung des akustischen Astes liefert, analog zu Kapitel 3.4.2, die Gleichungen

³⁰Hierbei ist, beispielsweise, α_{ijk} mit $\mathbf{R} = ie_x + je_y + ke_z$ entsprechend Kapitel 3.4.2 zu verstehen.

für die Spinwellengeschwindigkeit und die Spinsteifigkeit

$$\begin{aligned}\omega_{4\mathbf{q}}^2 &\approx v^2|\mathbf{q}|^2 + \varrho^2|\mathbf{q}|^4 - \frac{J\Delta}{1152} (q_x^2q_y^2 + q_x^2q_z^2 + q_y^2q_z^2), \\ \frac{v^2}{J^2} &= \frac{1}{24}(2S(S+1) + 3\tilde{\lambda}_{100} - 15\tilde{\alpha}_{100} + 6\tilde{\alpha}_{110} + 3\tilde{\alpha}_{200}) \\ &= \frac{\Delta}{24J},\end{aligned}\tag{3.145}$$

$$\begin{aligned}\frac{\varrho^2}{J^2} &= \frac{1}{4608}(-2S(S+1) - 3\tilde{\lambda}_{100} + 87\tilde{\alpha}_{100} - 6\tilde{\alpha}_{110} - 3\tilde{\alpha}_{200}) \\ &= \frac{-\Delta + 72\tilde{\alpha}_{100}J}{4608J},\end{aligned}\tag{3.146}$$

wobei offensichtlich im Bereich $T \leq T_c$ der führende Entwicklungskoeffizient durch ϱ^2 (also durch die Spinsteifigkeit $\rho = \varrho|_{\Delta=0} = |J|\sqrt{\tilde{\alpha}_{100}}/8$) bestimmt ist und die Dispersion am Γ -Punkt quadratisch ist. Für $T > T_c$ wechselt das qualitative Verhalten, die Dispersion wird linear in dieser Umgebung und der führende Entwicklungskoeffizient ist v^2 . Oberhalb der kritischen Temperatur $T > T_c$ ist $v = \sqrt{J\Delta/24}$ im Limes hoher Temperaturen begrenzt (aus den numerischen Daten geht hervor, dass Δ eine monotone Funktion der Temperatur ist) mit $v(T \rightarrow \infty) = |J|\sqrt{S(S+1)/12}$ (im Falle von $S = 1/2$ also $v(T \rightarrow \infty) = |J|/4$). Für $S = 1/2$ beim FM auf dem einfach kubischen Gitter gilt $v(T \rightarrow \infty) = |J|/\sqrt{2}$. Für $T = 0$ wiederum wird die für die Stabilität der ferromagnetischen Phase relevante Spinsteifigkeit zu $\rho(T = 0) = S|J|/8$ (einfach kubisches Gitter: $\rho(T = 0) = S|J|$). Diese Ergebnisse lassen sich ebenfalls mit der linearen Spinwellentheorie verifizieren, siehe beispielsweise [10]. Ebenfalls wird der Ursprung des Faktors $1/8$ offensichtlich, indem man die allgemeine Formel der linearen Spinwellentheorie für die Spinsteifigkeit $\rho = (S/(2\mathcal{N}N)) \sum_{m\alpha, n\beta} J_{m\alpha, n\beta} ((\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta})^2/|\mathbf{q}|^2)$ heranzieht. Im Fall des einfach kubischen Gitters ist die Elementarzelle primitiv ($N = 1$) und die Gitterplätze nächster Nachbarn sind durch Addition der Relativvektoren $\mathbf{r}_{\langle m\alpha, n\alpha \rangle} = (\pm 1, 0, 0)$, $(0, \pm 1, 0)$, $(0, 0, \pm 1)$ (der Abstand nächster Nachbarn ist $|\mathbf{r}_{\langle m\alpha, n\alpha \rangle}| = 1$) erreichbar. Für das Pyrochlor-Gitter müssen vier verschiedene Spins in der Elementarzelle beachtet werden ($N = 4$), von denen jeder sechs Nachbarn besitzt (der Abstand nächster Nachbarn ist $|\mathbf{r}_{\langle m\alpha, n\beta \rangle}| = d = 1/\sqrt{8}$). Über die oben genannte Formel kann das Ergebnis $\rho(T = 0) = S|J|/8$ bestätigt werden.

In der im Folgenden genutzten Minimalversion der RGM ist es nach Kapitel 3.2.1 ausreichend, die Vertexparameter in ihrer jeweiligen Klasse gleichzusetzen ($\lambda_{ijk} = \lambda$, $\alpha_{ijk} = \alpha$) und die Gleichung $r(T) = (\lambda(T) - \lambda(\infty))/(\alpha(T) - \alpha(\infty)) = r(0)$ zu nutzen, um eine vollständige Bestimmung aller Unbekannten im thermodynamischen Regime zu gewährleisten. Unter Beachtung der Integration über die erste Brillouin-Zone des kubisch-flächenzentrierten Gitters beim Übergang zum thermodynamischen Limes sind die erforderlichen Gleichungen in Tabelle 3.3 aufgelistet. Die unbekanntenen Größen bei beliebigen Temperaturen können demnach numerisch bestimmt werden. Die Ergebnisse werden nun nachfolgend vorgestellt.

Tabelle 3.3.: Übersicht der unbekanntenen Größen und das zur Bestimmung verwendete nichtlineare Gleichungssystem der RGM, nach Kapitel 3.2.1, beim FM auf dem Pyrochlor-Gitter.

Unbekannte Größen	$T < T_c$	$T = T_c$	$T > T_c$
$c_{m\alpha,n\beta}$	$c_{m\alpha,n\beta} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha,n\beta})$		
α	Summenregel		
λ	$r(T) = \frac{\lambda(T) - \lambda(\infty)}{\alpha(T) - \alpha(\infty)} = \frac{\lambda(0) - \lambda(\infty)}{\alpha(0) - \alpha(\infty)} = r(0)$		
T_c	\times	$\Delta = 0$	\times
C_0	$\Delta = 0$	$C_0 = 0$	$C_0 = 0$

In Abbildung 3.55 sind die Spinsteifigkeiten und die Spinwellengeschwindigkeiten aus der Entwicklung (3.145) beziehungsweise (3.146) oberhalb und unterhalb der kritischen Temperatur T_c dargestellt. Man stellt zunächst fest, dass die ferromagnetische Phase beim einfach kubischen Gitter robuster gegenüber thermischen Fluktuationen ist, siehe eingebettetes Diagramm in Abbildung 3.55. Dies entspricht der Erwartung und wird sich auch weiter unten an der Größe der kritischen Temperaturen zeigen. Man erkennt außerdem, dass beide Größen $\rho/(S|J|)$ und $v/(S|J|)$ mit der Größe des Spins abnehmen. In Abbildung 3.56 (links) sind sowohl der normierte Ordnungsparameter M/S unterhalb der kritischen Temperatur, als auch die inverse Suszeptibilität oberhalb der kritischen Temperatur gezeigt. Hierbei sind die kritischen Temperaturen, die man aus $M(T \rightarrow T_c - 0)/S \rightarrow 0$, $\chi_0^{-1}(T \rightarrow T_c + 0) \rightarrow 0$, beziehungsweise T_c direkt aus $\Delta = 0$ und $C_0 = 0$ (siehe Tabelle 3.3), zueinander äquivalent. Vergleicht man die Daten für χ_0^{-1} verschiedener Spinquantenzahlen S mit den entsprechenden Padé-Approximanten, siehe Abbildung 3.56 (rechts), so fällt zunächst auf, dass die reellen Nullstellen, und somit T_c , einander ähnlich sind. Für höhere Werte von S liefert die HTE tendenziell größere Werte für $T_c/S(S+1)$. Ebenfalls fällt auf, dass es einen deutlichen Unterschied zwischen den verschiedenen Gittertypen gibt. Für das Pyrochlor-Gitter, am Beispiel für $S = 1/2$, (einfach kubisches Gitter) liefert die RGM $T_c \approx 0.778$ ($T_c \approx 0.926$) und die HTE (Padé-Approximanten [5,5] und [5,6]) liefert $T_c \approx 0.724 \dots 0.754$ ($T_c \approx 0.827$, aus [71]). In beiden Fällen ist die kritische Temperatur für das einfach kubische Gitter signifikant größer. Die Ergebnisse für das einfach kubische Gitter können mit dem Wert aus dem Quanten-Monte-Carlo Verfahren verglichen werden: $T_c = 0.839(1)$, siehe [182]. Für den $S = 1/2$ -FM auf dem Pyrochlor-Gitter kann das ALPS-Paket (Loop-Algorithmus) genutzt werden, siehe [183, 184], und liefert $T_c \approx 0.718$. Die Ergebnisse für $S = 1/2$ sind in Tabelle 3.4 zusammengefasst. Erwähnenswert an dieser Stelle ist der artifizielle Wert $T_c = 0$, welcher mit einer phänomenologischen Renormierungsgruppentheorie in [185] für den $S = 1/2$ -FM auf dem Pyrochlor-Gitter ermittelt wurde.

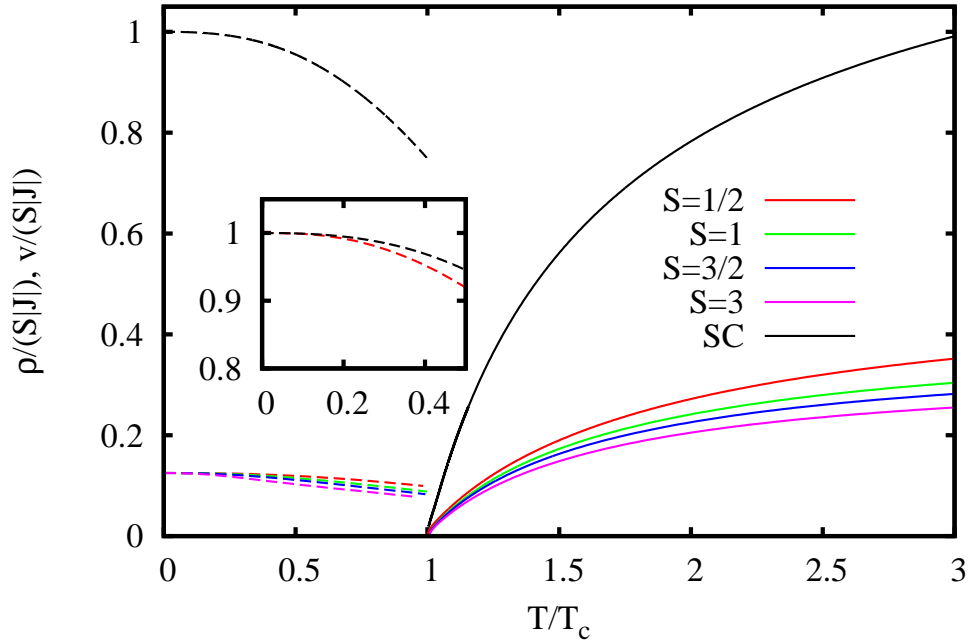


Abbildung 3.55.: Die skalierte Spinsteifigkeit $\rho/(S|J|)$ aus Gleichung (3.146) (gestrichelte Linien) und die skalierte Spinwellengeschwindigkeit $v/(S|J|)$ aus Gleichung (3.145) (durchgezogene Linien) als Funktion der normierten Temperatur T/T_c des FM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 3$ und für den FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) mit $S = 1/2$. Im eingebetteten Diagramm ist die skalierte Spinsteifigkeit $\rho/\rho(T = 0)$ für $S = 1/2$ als Funktion der Temperatur T dargestellt.

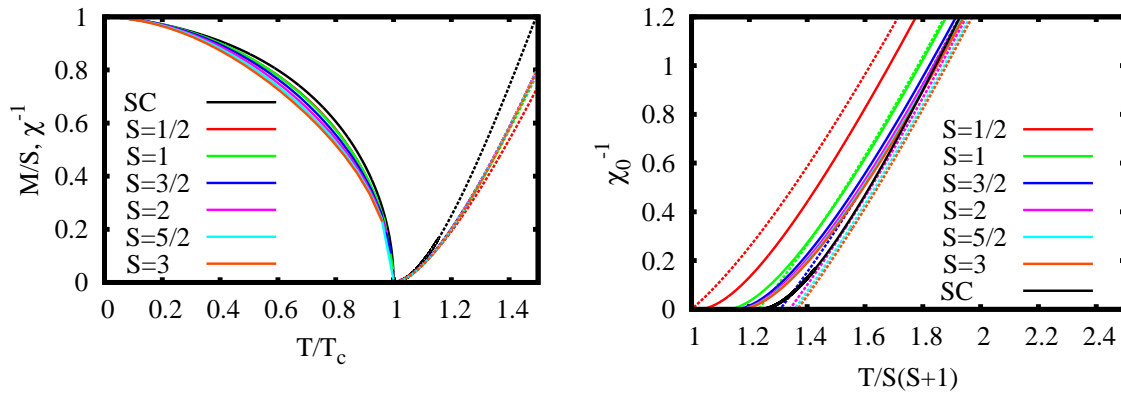


Abbildung 3.56.: (links) Der normierte magnetische Ordnungsparameter M/S ($T < T_c$) und die inverse uniforme Suszeptibilität χ_0^{-1} ($T > T_c$) als Funktion der normierten Temperatur T/T_c des FM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 3$ und für den FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) mit $S = 1/2$. (rechts) Die inverse uniforme Suszeptibilität χ_0^{-1} als Funktion der normierten Temperatur $T/S(S + 1)$ des FM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 3$ und für den FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) mit $S = 1/2$ (jeweils durchgezogene Linien) im Vergleich mit den korrespondierenden Padé-[5,6] Approximanten (gestrichelte Linien).

Tabelle 3.4.: Kritische Temperaturen T_c für den extremen Quantenfall ($S = 1/2$) beim FM auf dem Pyrochlor- und einfach kubischen Gitter ($J = -1$).

Methode	Pyrochlor-Gitter	einfach kubisches Gitter
RGM	0.778	0.926
HTE (Padé)	0.724...0.754	0.827
QMC	0.718	0.839(1)

Tabelle 3.5.: Kritische Temperaturen $T_c/(S(S+1))$ für den klassischen ($S \rightarrow \infty$) FM auf dem Pyrochlor- und einfach kubischen Gitter ($J = -1$). Die entsprechenden Resultate für den extremen Quantenfall $S = 1/2$ sind in den Klammern gegeben.

Methode	Pyrochlorgitter	einfach kubisches Gitter
RGM	1.172 (1.037)	1.330 (1.235)
HTE (Padé)	1.316...1.396 (0.965...1.005)	1.438 (1.103)
CMC (QMC)	1.317 (0.957)	1.443 (1.119)

Ein anderer wichtiger Limes ist der verschwindender Quantenfluktuationen $S \rightarrow \infty$. In diesem Limes liefert die RGM für das Pyrochlor-Gitter $T_c/(S(S+1)) \approx 1.172$, die HTE ((Padé): [5,5] und [5,6]) $T_c/(S(S+1)) \approx 1.316 \dots 1.396$ und die klassische Monte-Carlo Simulation $T_c/(S(S+1)) \approx 1.317$ [186]. Für das einfach kubische Gitter folgen $T_c/(S(S+1)) \approx 1.317$ (RGM), $T_c/(S(S+1)) \approx 1.438$ (HTE) [71] und $T_c/(S(S+1)) \approx 1.443$ (klassische Monte-Carlo Simulation [186, 187]). Auch wenn die Werte zwischen den verschiedenen Methoden leicht unterschiedliche T_c liefern, so ist das Resultat bezüglich der Gitter innerhalb der Methoden eindeutig. Alle Resultate indizieren, dass die Curie-Temperatur des Heisenberg-FM auf dem Pyrochlor-Gitter auf 85 % ($S = 1/2$, extremer Quantenfall), beziehungsweise 90 % ($S \rightarrow \infty$, klassischer Limes) reduziert sind, vergleicht man mit dem einfach kubischen Gitter. Die Ergebnisse für diese Fälle sind in Tabelle 3.5 zusammengefasst. Quantenfluktuationen scheinen diesen Unterschied zu verstärken. Qualitativ lässt sich dieser Effekt auch an der Entwicklung der normierten kritischen Temperaturen $T_c/S(S+1)$ als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$ in Abbildung 3.57 erkennen. Hier sind die entsprechenden Daten für die Werte $1/2 \leq S < \infty$ dargestellt. Die Korrelationsfunktionen in Abbildung 3.58 weisen die gleichen bereits diskutierten Eigenschaften auf. Auch hier zeichnet sich ab, dass die nächsten und übernächsten Nachbarn für geringe Temperaturen $T < T_c$ beim einfach kubischen Gitter eine erhöhte Stabilität aufweisen, siehe hierzu eingebettetes Diagramm in Abbildung 3.58. Für größere Werte des Spins fällt die Abnahme der normierten Korrelationen stärker aus.

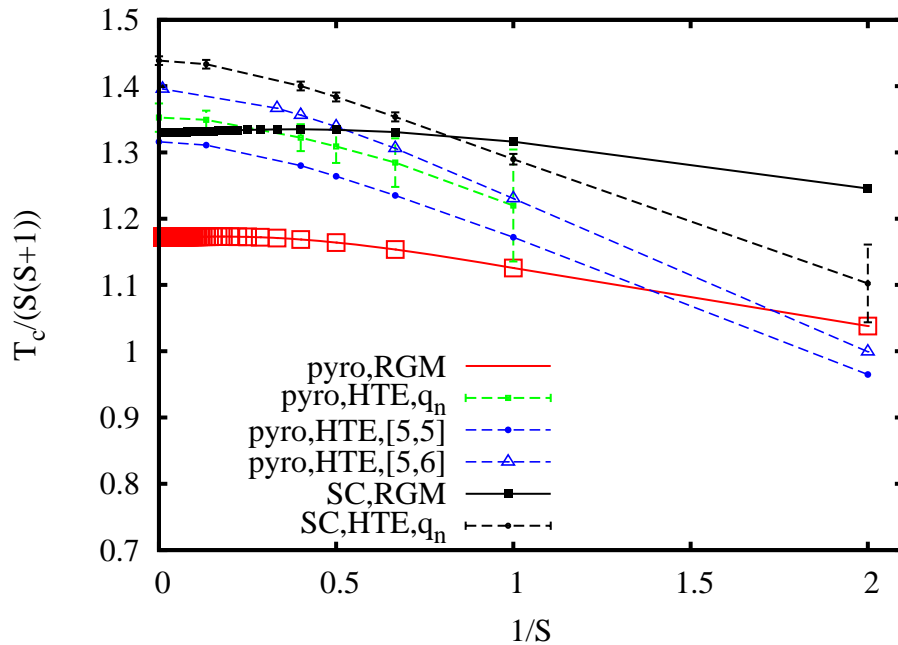


Abbildung 3.57.: Normierte kritische Temperaturen $T_c/S(S+1)$ des FM auf dem Pyrochlor-Gitter und dem FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$. Die kritischen Temperaturen aus der HTE wurden einerseits nach der Koeffizientenmethode (q_n : hier wurde $n = 5, 6, \dots, 11$ entsprechend [71] gewählt) und andererseits aus den Nullstellen des Nenners der angegebenen Padé-Approximanten ($[m, n]$) ermittelt, siehe Kapitel 3.3.1.

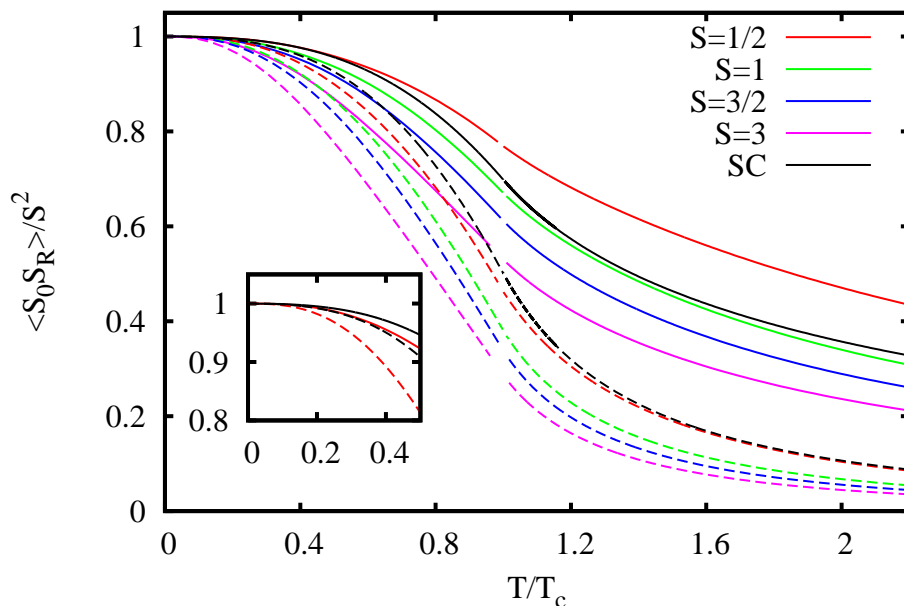


Abbildung 3.58.: Normierte Korrelationsfunktionen $\langle \hat{S}_0 \hat{S}_R \rangle / S^2$ (durchgezogene Linien: nächste Nachbarn; gestrichelte Linien: übernächste Nachbarn) als Funktion der normierten Temperatur T/T_c des FM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 3$ und für den FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) mit $S = 1/2$. Dargestellt sind Datenpunkte der Lösungen zweier verschiedener Gleichungssysteme (siehe Tabelle 3.3: $T < T_c$ und $T > T_c$). Im eingebetteten Diagramm sind die normierten Korrelationsfunktionen nächster Nachbarn $\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{100} \rangle / S^2$ für $S = 1/2$ als Funktion der Temperatur T dargestellt.

Das Temperaturprofil der spezifischen Wärme c_V in Abbildung 3.59 leitet sich in diesem Modell naturgemäß von der Korrelationsfunktion der nächsten Nachbarn ab. Im Hochtemperaturbereich ist die Übereinstimmung von HTE und RGM erwartungsgemäß erfüllt. Verglichen mit dem einfach kubischen Gitter ist das Maximum der spezifischen Wärme größer für den Fall $S = 1/2$. Mit zunehmender Größe des Spins ist der Anstieg aus dem paramagnetischen Bereich kommend stärker ausgeprägt, der Bereich unterhalb der Ordnungstemperatur $T < T_c$ zeichnet sich durch die Bildung einer Kinke aus.

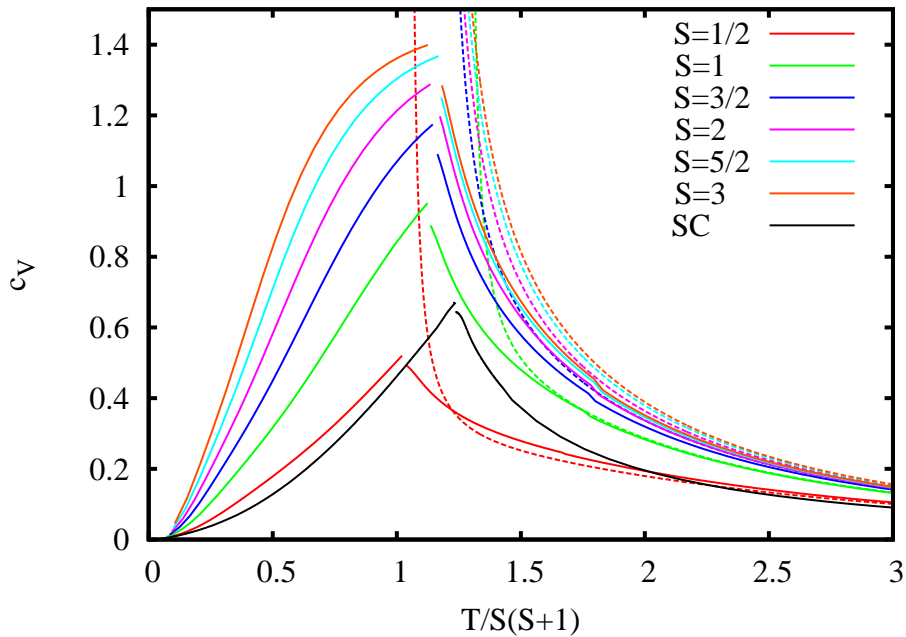


Abbildung 3.59.: Die spezifische Wärmekapazität c_V als Funktion der normierten Temperatur $T/S(S+1)$ des FM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 3$ und für den FM auf dem einfach kubischen Gitter (SC) mit $S = 1/2$ (jeweils durchgezogene Linien) im Vergleich mit den korrespondierenden Padé-[5,6] Approximanten (gestrichelte Linien). Dargestellt sind Datenpunkte der Lösungen zweier verschiedener Gleichungssysteme (siehe Tabelle 3.3: $T < T_c$ und $T > T_c$).

Der skalare statische Strukturfaktor wurde im Rahmen der HTE entwickelt und mit dem aus der RGM verglichen, siehe hierzu Abbildung 3.60. Für explizite Ausdrücke der niedrigsten Entwicklungsterme einiger Werte für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2$ sei auf das Kapitel 3.7.2 verwiesen. Die Abbildungen zeigen, dass die Resultate beider Methoden gut übereinstimmen. Neben den dominanten Maxima in Abbildung 3.60 fallen mehrere Nebenmaxima geringerer Höhe, etwa bei $q_x = q_y = q_z = 2\pi$, auf. Folgende Überlegung soll Aufschluss über die Ursache der Nebenmaxima bringen. Der Strukturfaktor divergiert am Übergangspunkt $T \rightarrow T_c$. Oberhalb der kritischen Temperatur ordnen sich beim Absenken der Temperatur weiter entfernte ferromagnetische Cluster sukzessiv.

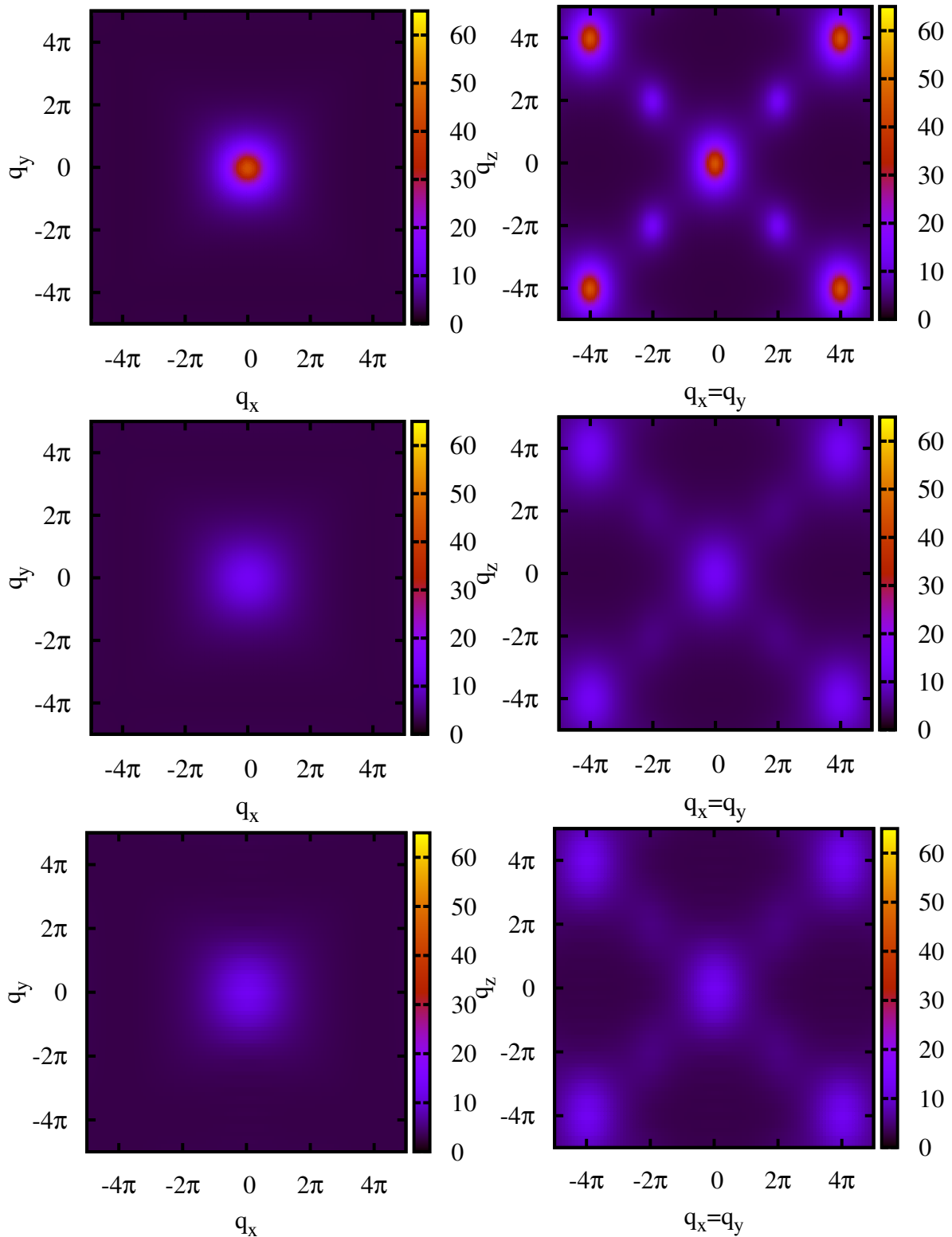


Abbildung 3.60.: Der normierte statische Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ beim FM auf dem Pyrochlor-Gitter für $S = 1/2$ in zwei verschiedenen Bragg-Ebenen (linke Spalte: $q_z = 0$; rechte Spalte: $q_x = q_y$). Die Resultate der RGM sind bei einer Temperatur von $T = 1.3T_c$ (obere Reihe) und $T = 2T_c$ (mittlere Reihe) dargestellt. Die untere Reihe zeigt die entsprechenden Ergebnisse aus der HTE (9te Ordnung; $T = 2T_c$).

Der Strukturfaktor kann nach Beiträgen von Nachbarn unterschiedlicher Distanz zerlegt werden

$$S_{\mathbf{q}} = S(S+1) + \langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\text{NN}} \rangle S_{\mathbf{q}}^{(NN)} + \langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\text{NNN}} \rangle S_{\mathbf{q}}^{(NNN)} + \dots, \quad (3.147)$$

$$S_{\mathbf{q}}^{(NN)} = \frac{1}{4} \sum_{\alpha, j'} \cos(\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{j'})), \quad (3.148)$$

$$S_{\mathbf{q}}^{(NNN)} = \frac{1}{4} \sum_{\alpha, j''} \cos(\mathbf{q}(\mathbf{R}_{m\alpha} - \mathbf{R}_{j''})), \quad (3.149)$$

wobei $\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\text{NN}} \rangle$ die Spin-Spin-Korrelation nächster Nachbarn, $\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\text{NNN}} \rangle$ die Spin-Spin Korrelation übernächster Nachbarn und so fort bezeichnen. Der Index j' in der Summe läuft über alle nächsten Nachbarn des Gitterplatzes $i = m\alpha$, j'' läuft über alle übernächsten Nachbarn des Gitterplatzes $i = m\alpha$ und so weiter. Betrachtet man nun den Pfad $\mathbf{q} = (q, q, q)$ im reziproken Raum, so kann man eine einfache Erklärung für die (kleineren) Nebenmaxima des magnetischen statischen Strukturfaktors in Abbildung 3.61, beziehungsweise Abbildung 3.60, finden. Man kann zunächst erkennen, dass die Beiträge $S_{(0,0,0)}^{(NN)} = 6$, $S_{(\pi,\pi,\pi)}^{(NN)} = S_{(2\pi,2\pi,2\pi)}^{(NN)} = S_{(3\pi,3\pi,3\pi)}^{(NN)} = 0$, $S_{(4\pi,4\pi,4\pi)}^{(NN)} = 6$, der Korrelation nächster Nachbarn zu $S_{\mathbf{q}}$ am Punkt $\mathbf{q} = (0, 0, 0)$ und $\mathbf{q} = (4\pi, 4\pi, 4\pi)$ ungleich 0 sind, am Punkt $\mathbf{q} = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$ jedoch verschwinden. Bezieht man für $S_{\mathbf{q}}$ am Punkt $\mathbf{q} = (2\pi, 2\pi, 2\pi)$ zusätzliche (schwächere) Korrelationen weiter entfernter Nachbarn mit ein, so sieht man, dass erst ab der Berücksichtigung drittnächster Nachbarn ein endlicher Beitrag zu $S_{\mathbf{q}}$ erfolgt: $S_{(2\pi,2\pi,2\pi)}^{(NNNN)} = 6$ (wobei $S_{(2\pi,2\pi,2\pi)}^{(NNN)} = 0$ ist). Das Resultat ist, dass $S_{(q,q,q)}$ als Funktion von q ein großes Maximum bei $q = 0$ (ebenfalls natürlich durch die Periodizität des Gitters bedingt, bei $q = \pm 4\pi$, und so weiter) und zwei Nebenmaxima bei $q = \pm 2\pi$ besitzt. Diese Maxima divergieren schließlich beide im Limes $T \rightarrow T_c$.

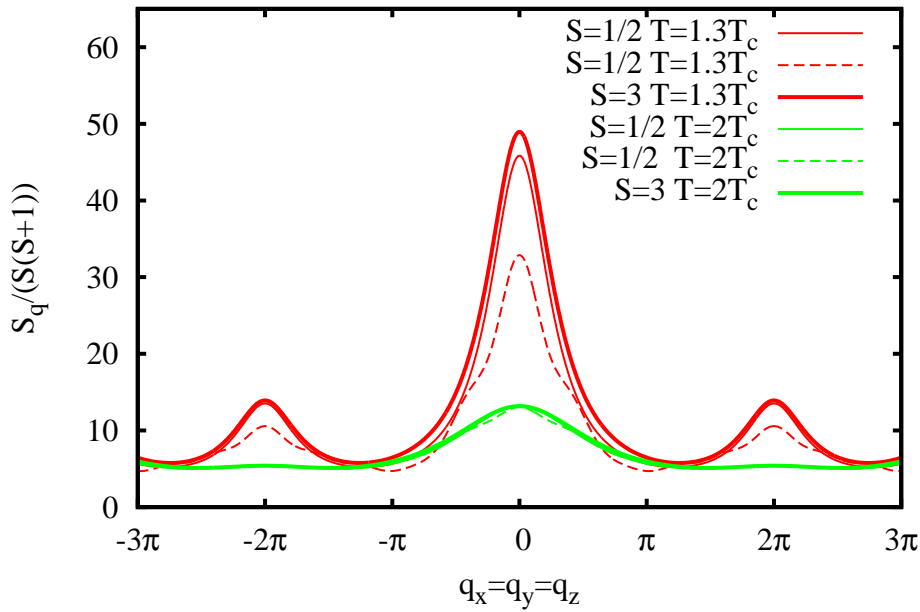


Abbildung 3.61.: Der normierte statische Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ beim FM auf dem Pyrochlor-Gitter für $S = 1/2$ (dünne Linien) und $S = 3$ (dicke Linien) bei einer Temperatur von $T = 1.3T_c$ (rot) und $T = 2T_c$ (grün) für die RGM (durchgezogene Linien) und die HTE (9te Ordnung; gestrichelte Linien) dargestellt entlang des Pfades $q = q_x = q_y = q_z$.

In Abbildung 3.62 ist der dynamische Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ nach Kapitel 3.2.1 gezeigt. Die gewählte Temperatur von $T = 0.0425|J|$ hängt mit den experimentellen Daten aus [176] für das ferromagnetische Material $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ folgendermaßen zusammen: wenn $J = 8.22 \text{ meV}$ entspricht, dann ist die mit $0.0425|J|$ korrespondierende Temperatur mit $T_{exp} \simeq 4 \text{ K}$ anzugeben (entsprechend hängt $T = 0.425|J|$ mit $T_{exp} \simeq 40 \text{ K}$ zusammen). Der dynamische Strukturfaktor ist am stärksten entlang des dispersiven magnetischen Anregungsspektrums ausgeprägt. Die nichtuniforme Verteilung in der Umgebung der höchsten Energien ω des Astes $\omega_{3\mathbf{q}\approx 0} \approx 4|J|$ können im Experiment genutzt werden, um die Größe der Austauschkopplung J zu bestimmen. Darüberhinaus sagt die RGM eine Temperaturabhängigkeit des Punktes der höchsten Energie voraus (dies ist durch den Vergleich der beiden Abbildungen in 3.62 ersichtlich), die in der Umkehr temperaturabhängige Effekte bei der experimentellen Bestimmung von J verdeutlicht. In Abbildung 3.63 wurde eine Darstellung von $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ als Funktion des sogenannten reduzierten Momentes $t = 2 - D_{\mathbf{q}}$ gewählt, die mit der Darstellung der experimentellen Daten in [176] übereinstimmt. Hierbei muss bemerkt werden, dass in der Darstellung $\mathbf{q} = q(1, 1, 1)$ natürlich nur Punkte mit $0 \leq t \leq 1$ erreicht werden können. Eine weitere Besonderheit der Wahl dieser Parametrisierung findet sich im verschwindenden Gewicht der nichtdispersiven Äste in den Abbildungen 3.62 und 3.63. Die Eigenvektoren der Frequenzmatrix (Momentenmatrix) mit den nichtdispersiven entarteten Eigenwerten $\omega_{1\mathbf{q}} = \omega_{2\mathbf{q}}$ ($m_{1\mathbf{q}} = m_{2\mathbf{q}}$) haben für $\mathbf{q} = q(1, 1, 1)$ die einfache Form $|1\mathbf{q}\rangle \doteq (0, -1, 0, 1)^T$ und $|2\mathbf{q}\rangle \doteq (0, -1, 1, 0)^T$. Beiträge zum dynamischen Strukturfaktor nach Gleichung 3.48 heben sich deswegen gerade weg.

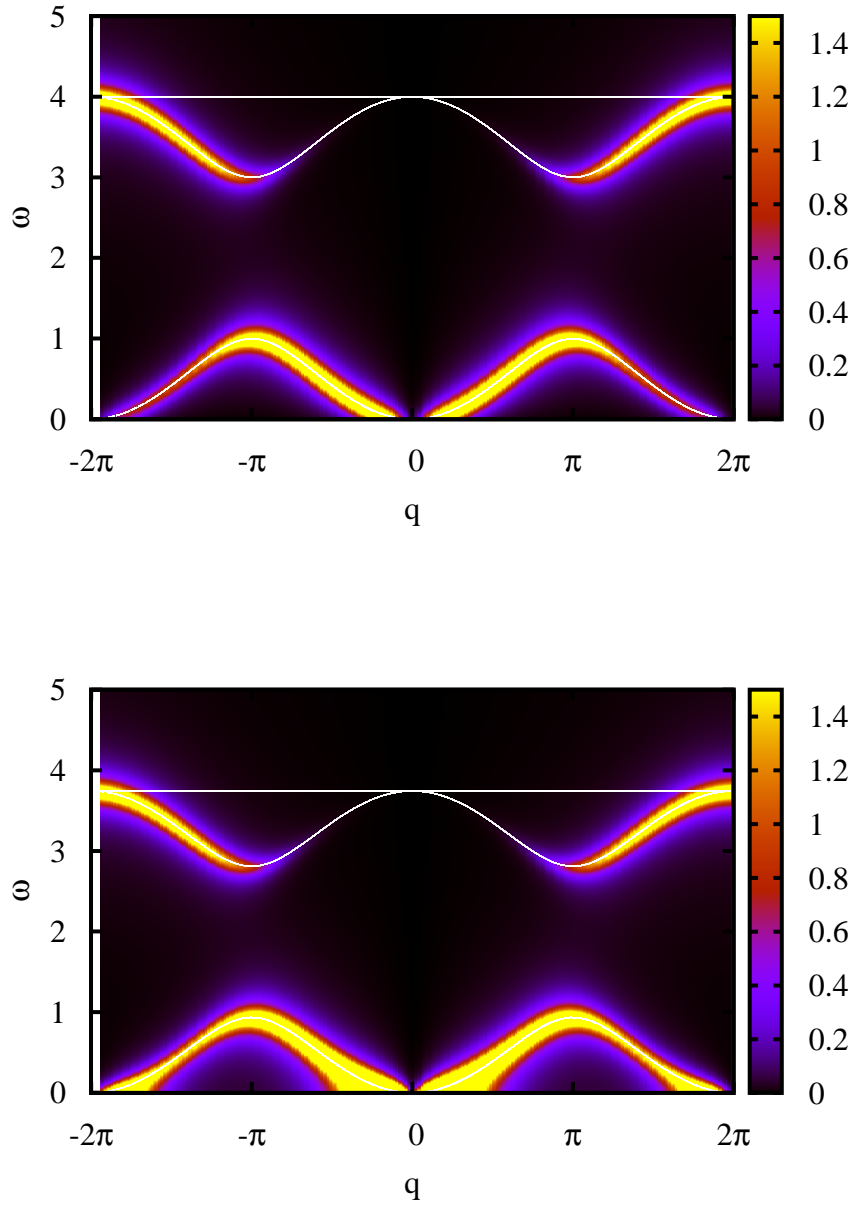


Abbildung 3.62.: Dynamischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ des $S = 1/2$ -FM auf dem Pyrochlore-Gitter entlang des Pfades $q = q_x = q_y = q_z$ für $T = 0.0425$ (oben) und $T = 0.425$ (unten), mit einem Parameter von $\varepsilon = 0.1$, siehe Kapitel 3.2.1 Gleichung 3.48. Die weißen Linien entsprechen den Dispersionsrelationen aus Gleichung (3.141).

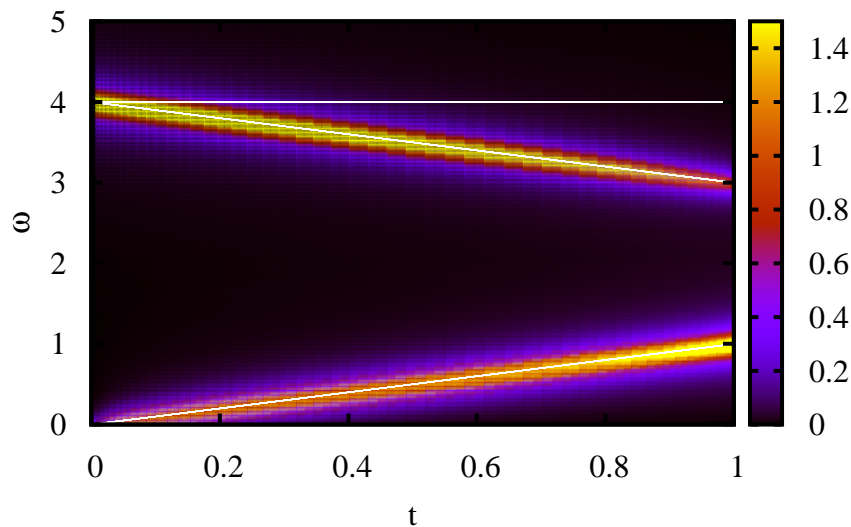


Abbildung 3.63.: Dynamischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ des $S = 1/2$ -FM auf dem Pyrochlor-Gitter als Funktion des reduzierten Momentes $t = 2 - D_{\mathbf{q}}$, siehe [176], mit $\mathbf{q} = (q, q, q)$ für $T = 0.0425$ mit einem Parameter von $\varepsilon = 0.1$, siehe Kapitel 3.2.1. Die weißen Linien entsprechen den Dispersionsrelationen aus Gleichung (3.141).

3.7.2 J_1 -Modell: Antiferromagnet

Der Pyrochlor-AFM ist ein potentieller Kandidat für eine 3D Quanten-Spin-Flüssigkeit bei $T \rightarrow 0$ [160–164, 171–173, 188, 189]. Vor allem die Tatsache, dass es eine ganze Klasse magnetischer Festkörper gibt, die sich sehr gut mittels des Heisenberg-AFM auf dem Pyrochlor-Gitter beschreiben lassen,³¹ liefert eine potentiell enge Schnittstelle zwischen Theorie und Experiment. Wie auch beim Kagome-AFM aus dem vorherigen Kapitel 3.5 ist die Motivation dieser Arbeit, die RGM für $S \geq 1/2$ bei $T \geq 0$ anzuwenden, die HTE als Vergleichsmethode zu verwenden und beide Methoden zu nutzen, um mögliche sich bildende magnetische Strukturen zu ermitteln. Die analytischen Ausdrücke der RGM aus dem vorhergehenden Kapitel 3.7.1, Gleichungen (3.134) bis (3.144), können für den AFM ($J > 0$) übernommen werden. Zunächst sei die klassische Konfiguration des antiferromagnetischen Modells diskutiert. Hierfür lohnt es sich, die Summation auf eine

³¹Von der Klasse der Oxidfamilie $A_2B_2O_7$, wobei A ein beliebiges Metall der seltenen Erden und B ein Übergangsmetall ist, ist bekannt, dass diese für tiefe Temperaturen magnetischen Isolatoren in der Pyrochlor-Struktur kristallisieren, siehe [188].

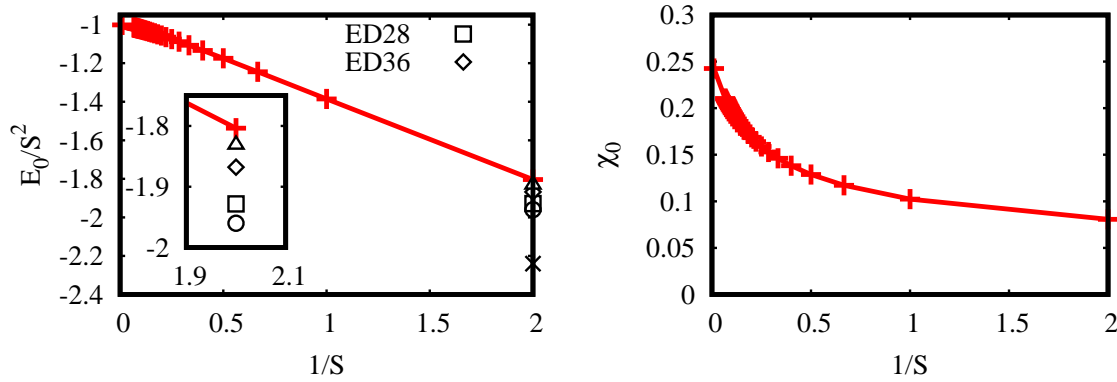


Abbildung 3.64.: Die normierte Grundzustandsenergie E_0/S^2 (links; schwarze Symbole bezeichnen Daten, die der Literatur entnommen wurden: Kreis: [160, 164], Vierecke: [189] (die Zahl in der Legende bezeichnet die verwendete Gittergröße der ED-Daten), Dreieck: [163], Kreuz: [162]) und die uniforme Suszeptibilität χ_0 (rechts) als Funktion der inversen Spinquantenzahl $1/S$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter innerhalb der RGM ($J = 1$; Minimalvariante).

Summe über alle $2\mathcal{N} \rightarrow \infty$ Tetraeder aufzuspalten ³²:

$$U(S \rightarrow \infty, \mathcal{N} \rightarrow \infty) = \frac{J}{2} \left(\sum_{T=1}^{2\mathcal{N}} |\mathbf{S}_T|^2 - \underbrace{\sum_{T=1}^{2\mathcal{N}} \sum_{\alpha=1}^N \mathbf{S}_{T\alpha}^2}_{2S^2\mathcal{N}\mathcal{N}} \right), \quad (3.150)$$

wobei mit $\mathbf{S}_T = \mathbf{S}_{T1} + \mathbf{S}_{T2} + \mathbf{S}_{T3} + \mathbf{S}_{T4}$ der Gesamtspin des Tetraeders T bezeichnet ist. Offensichtlich ist eine klassische Grundzustandskonfiguration also gerade dann realisiert, wenn $\mathbf{S}_T = \mathbf{0}$ auf jedem Tetraeder gilt. Die klassische Grundzustandsentartung ist durch die Anzahl der verschiedenen Möglichkeiten der Anordnungen, gerade weil die Restriktion für den GS die Tetraeder unabhängig voneinander lässt, massiv. Somit ergibt sich eine GS-Energie von $U(T = 0, S \rightarrow \infty, \mathcal{N} \rightarrow \infty) = -JS^2\mathcal{N}\mathcal{N}$. Durch die Berücksichtigung von Quantenfluktuationen kann jedoch eine Klasse von Zuständen selektiert werden. Es sollen in diesem Kapitel die Ergebnisse der RGM und HTE des letzten Kapitels 3.7.1 analog für den AFM auf dem Pyrochlor-Gitter untersucht werden. Wie für den AFM auf dem Kagome-Gitter wird die Minimalvariante ($\lambda_{i,j}(T) = \lambda(T)$ und $\alpha_{i,j}(T) = \alpha(T)$) auf ihre Qualität geprüft.

Als erstes Ergebnis für den GS kann festgestellt werden, dass die RGM das Fehlen von LRO signalisiert, der Strukturfaktor also in allen Bereichen endlich ist und sich alle möglichen Kondensatterme zu 0 ergeben. In Abbildung 3.64 ist die normierte GS-Energie nach der Minimalvariante über $1/S$ aufgetragen. Es zeigt sich, dass im Gegensatz zum Kagome-AFM der klassische Limes, ohne weitere Korrekturgrößen einführen zu

³²Dieser Schritt ist insofern hervorzuheben, als dass das Gitter geometrisch in zwei zueinander verschieden orientierte Tetraedersorten zerlegt werden kann. Eine Sorte davon ist die gewählte Elementarzelle. Bei der Zerlegung muss dann berücksichtigt werden, dass jeder Spin Teil von beiden Sorten ist.

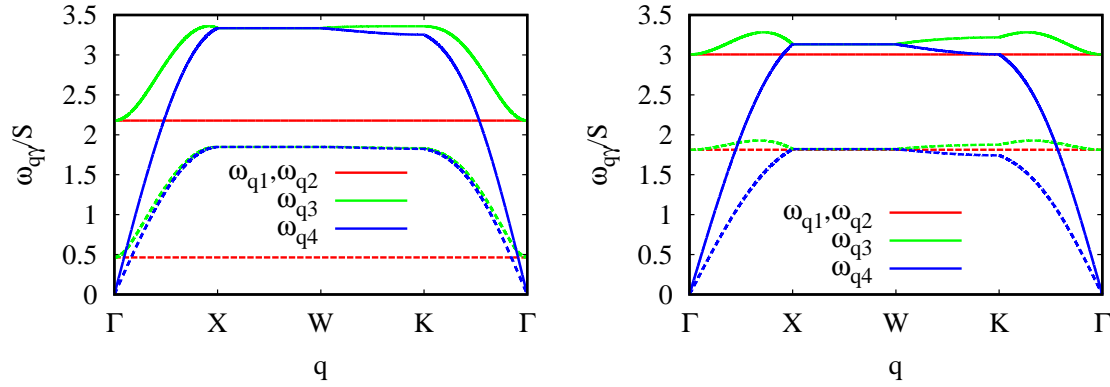


Abbildung 3.65.: Dispersion der magnetischen Anregungsenergien $\omega_{q\gamma}$ (nach den Gleichungen (3.141), mit $J = 1$) bei $T = 0$ (links) und für $T = 1.5S(S + 1)$ (rechts). Hierbei ist $\omega_{q\gamma}/S$ bei $T = 0$ abhängig von S (durchgezogene Linien: $S = 1/2$; gestrichelte Linien: $S = 3$). Das Verhalten für $T \rightarrow \infty$ ist identisch zum FM (Abbildung 3.54 auf Seite 134). Die Punkte Γ , X , W und K sind die entsprechenden Punkte der Brillouin-Zone eines kubisch flächenzentrierten Bravaisgitters und durch $\Gamma = (0, 0, 0)$, $X = (0, 2\pi, 0)$, $W = (\pi, 2\pi, 0)$, $K = (3\pi/2, 3\pi/2, 0)$ gegeben, siehe beispielsweise [181] oder Abbildung 3.69 auf Seite 151.

müssen, erreicht wird. Die uniforme Suszeptibilität χ_0 zeigt qualitativ einen ähnlichen Verlauf für $S \rightarrow \infty$, wie beim Kagome-AFM. Die Vertexparameter bei $T = 0$ sind hier ($\lambda(0) = 2 - 1/S$): $\alpha(0, S = 1/2) = 1.3644$, $\alpha(0, S = 1) = 1.1519$, $\alpha(0, S = 3/2) = 1.0297$, $\alpha(0, S = 2) = 0.9480, \dots, \alpha(0, S = 100) = 0.5153$, also ein Wert unter 1 für $S \geq 2$. Dies führte im vorangegangenen Kapitel 3.5 gerade zu Problemen bei der Anwendung der Minimalversion für $T > 0$. Die magnetischen Anregungen (Gleichungen (3.141), mit $J = 1$) aus Abbildung 3.65 zeigen für $T = 0$ einige bedeutende Unterschiede zum FM aus Kapitel 3.7.1. Der akustische Ast ist in der Umgebung $\mathbf{q} \approx \Gamma$ linear und wird beschrieben durch die Spinwellengeschwindigkeit Gleichung (3.145). Das flache (entartete) Band ist nicht mehr, wie beim FM aus Kapitel 3.7.1, das energetisch höchste und senkt sich für $S \rightarrow \infty$ auf $\omega_{q\gamma}/S \rightarrow 0$ ($\gamma = 1, 2$) ab. Dieses Verhalten ist analog zu dem in Kapitel 3.5 gezeigten. Insbesondere besitzt das gesamte Dispersionsspektrum $\omega_{q\gamma}/S$ eine Abhängigkeit von der Spinquantenzahl S .

In Kapitel 3.7.1 wurden die Ergebnisse teilweise mit dem einfach kubischen Gitter ($z = 6$) verglichen. Die beiden Modelle unterscheiden sich beim AFM grundlegend. LRO etabliert sich hier beim AFM für $S = 1/2$ unterhalb der Néel-Temperatur $T < T_N$. Das Vorhandensein der semiklassischen Néel-Ordnung zeigt sich am Abklingverhalten der Korrelationsfunktionen über den Abstand, siehe Abbildung 3.66.³³ Die mit dem Abstand abnehmenden Korrelationsfunktionen des AFM auf dem einfach kubischen Gitter weisen durch die Asymptote $C_{\mathbf{Q}=(\pi,\pi,\pi)} \neq 0$, siehe graue Linie in Abbildung 3.66, das Vorhandensein eines Kondensatterms auf, siehe Gleichung 3.35, der auf eine Magnetisierung von $M/(1/2) \approx 0.783$ ($M/(1/2) \approx 0.8328 \dots 0.842$ mittels CCM aus [150]) führt. Die Korrelationsfunktionen des Pyrochlor-AFM hingegen gehen exponentiell gegen 0. Das Entwickeln

³³Für die entsprechenden Formeln der RGM sei hier wieder auf das Kapitel 3.6 verwiesen ($J_2 = 1, J_1 = 0$).

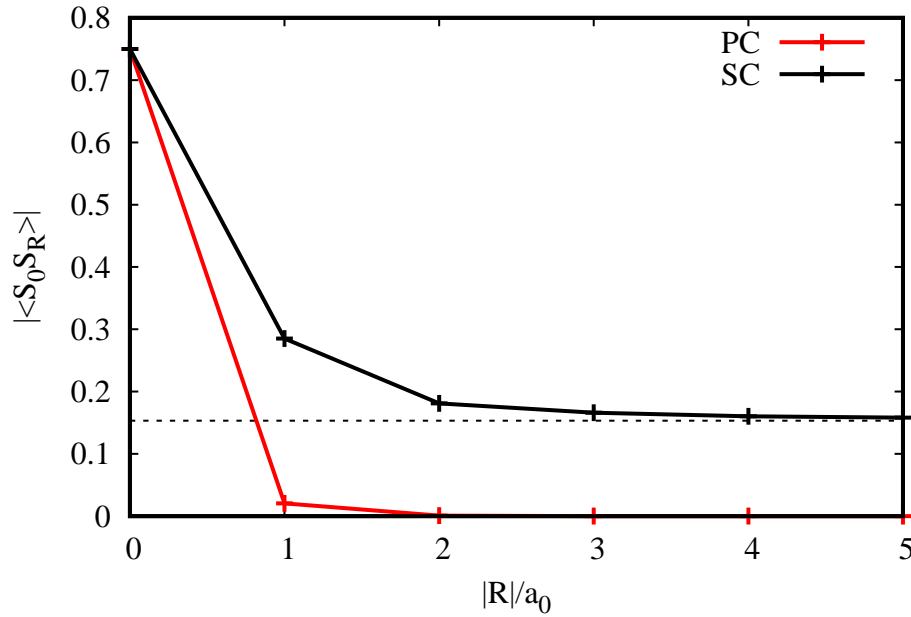


Abbildung 3.66.: Darstellung des Betrags der Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{R}} \rangle|$ als Funktion des skalierten Abstands $|\mathbf{R}|/a_0$ (einfach kubisches Gitter „SC“: $a_0 = |\mathbf{e}_1| = |(1, 0, 0)|$, entsprechend Kapitel 3.6, mit Richtung entlang $\mathbf{R} = n\mathbf{e}_1$; Pyrochlor-Gitter „PC“: $a_0 = |\mathbf{e}_1| = |(0, 1/2, 1/2)|$, mit Richtung entlang $\mathbf{R} = n\mathbf{e}_1$) für $S = 1/2$, wobei a_0 die Gitterkonstante bezeichnet.

einer Korrelationslänge $\xi_{\mathbf{Q}}$ nach Kapitel 3.2.1 geht implizit von der Herausbildung einer bestimmten magnetischen Konfiguration aus. In dem vorliegenden Fall ist im Vorherin nicht klar, wie \mathbf{Q} zu wählen ist, oder ob es überhaupt einzelne ordnungsbeschreibende Vektoren gibt. Nach [161] lässt sich eine Korrelationslänge abschätzen mit $|\langle \hat{\mathbf{S}}_0 \hat{\mathbf{S}}_{\mathbf{R}} \rangle| \propto \exp(-|\mathbf{R}|/\xi)$. Eine Ausgleichsrechnung der Form $f(\mathbf{R}) = a \cdot \exp(-|\mathbf{R}|/b) + c$, mit den Daten aus Abbildung 3.67, liefert: $a \approx 1 \pm 10^{-5}$, $b = 0.196347(\pm 0.09\%)$ und $c = 10^{-5} \approx 0$. Somit lässt sich $\xi(T = 0, S = 1/2)/d \approx 0.2\sqrt{8} \approx 0.566$ erhalten. Mit dem Anwachsen der Spinquantenzahl werden die Korrelationen angehoben, fallen aber ebenso exponentiell über den Abstand ab. Für $S = 3$ ergibt sich: $a \approx 1 \pm 10^{-4}$, $b = 0.257755(\pm 0.38\%)$ und $c = 10^{-4} \approx 0$, also $\xi(T = 0, S = 3)/d \approx 0.26\sqrt{8} \approx 0.735$ eine leicht größere Korrelationslänge, die die Kurzreichweitigkeit der magnetischen Interaktionen auch für größere Spinquantenzahlen hervorhebt. Daraus geht hervor, dass die Korrelationen der Spins untereinander kaum eine Elementarzelle übersteigen. Vergleicht man mit dem Resultat des entsprechenden Modells auf dem Kagome-Gitter aus Kapitel 3.5, siehe Abbildung 3.67, so sieht man deutlich, dass der dimensional bedingte höhere Grad der klassischen GS-Entartung sich in den Spin-Spin-Korrelationsfunktionen niederschlägt. Wie im Kapitel zum FM werden nun zwei bestimmte Ebenen in der Brillouin-Zone für $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ in Abbildung 3.68 betrachtet. Analog zum AFM auf dem Kagome-Gitter bleibt der Strukturfaktor wegen der kurzreichweitigen Korrelationen im gesamten Gebiet endlich. In der $(q_x = q_y, q_z)$ -Ebene lassen sich die typischen Muster aus Kapitel 3.5 wiederfinden. Hier sind die Knotenpunk-

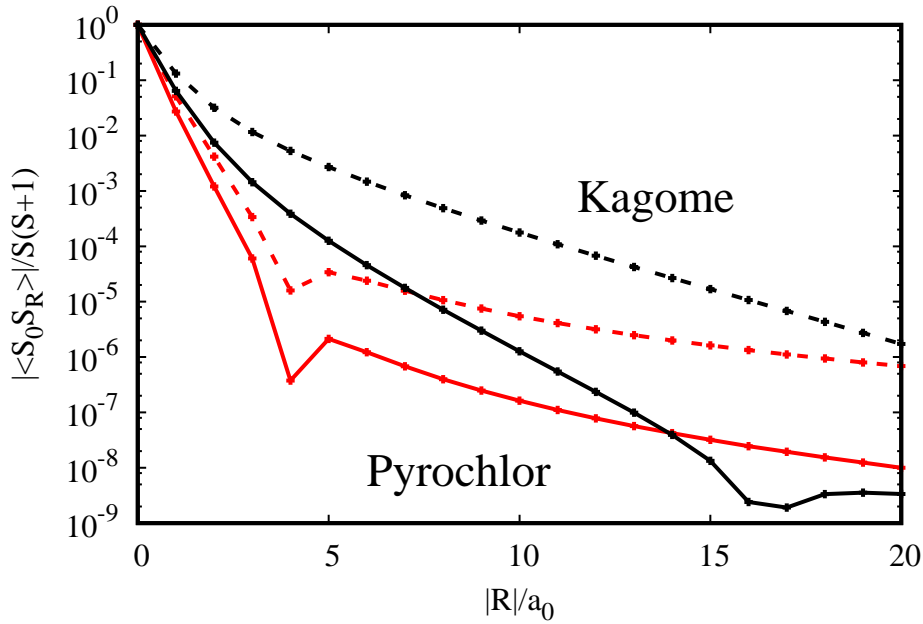


Abbildung 3.67.: Vergleich des Betrags der normierten Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{S}_0 \hat{S}_{\mathbf{R}} \rangle|/S(S+1)$ als Funktion des skalierten Abstands $|\mathbf{R}|/a_0$ (Kagome: $a_0 = |\mathbf{a}_1|$, siehe Kapitel 3.5, mit Richtung entlang $\mathbf{R} = n\mathbf{a}_1$; Pyrochlor: $a_0 = |\mathbf{e}_1| = |(0, 1/2, 1/2)|$, mit Richtung entlang $\mathbf{R} = n\mathbf{e}_1$) zwischen dem Kagome-AFM (gestrichelte Linien) und dem Pyrochlor-AFM (durchgezogene Linien) für $S = 1/2$ (rot) und $S = 3$ (schwarz), wobei a_0 die Gitterkonstante bezeichnet.

te, siehe zum Beispiel $\mathbf{Q}_p = (0, 0, 4\pi)$ und alle symmetriebedingt äquivalenten Punkte, Maxima in $S_{\mathbf{q}}$. Auf im Rahmen der numerischen Genauigkeit gleicher Höhe ist aber auch in der „ $q_z = 0$ “-Ebene eine ganze auf einem Quadrat ($q_x(q_y) = \pm 4\pi, -4\pi \leq q_y(q_x) \leq 4\pi$) befindliche kontinuierliche Schar von \mathbf{q} -Punkten in der Brillouin-Zone, siehe schwarze Linien in Abbildung 3.68 (ebenso für $T > 0$). Auch die Tendenz des Strukturfaktors, für größere Werte der Spinquantenzahl S schärfere Konturen auszubilden, ist ähnlich zu dem in Kapitel 85 gefundenen Verhalten. In Abbildung 3.69 ist der normierte skalare Strukturfaktor entlang eines typischen Pfads in der Brillouin-Zone, wie in Abbildung 3.65, gezeigt. Zum einen für $T = 0$ innerhalb der RGM und zum anderen im Vergleich mit der HTE bei der Temperatur $T = 1.7S(S+1)$. Zunächst fällt die wie auch schon im Kapitel 3.5 zum Kagome-Gitter (Abbildung 3.38, auf Seite 105) gute Übereinstimmung von HTE und RGM auf. Die qualitative Übereinstimmung ist über weite Bereiche gegeben. Geringe Abweichungen zeigen sich beispielsweise in der Umgebung $\mathbf{q} \approx \Gamma$ für $S = 3$ (10. Ordnung HTE). In beiden Fällen des in der Abbildung gewählten Spins zeigt sich eine Tendenz zu einem Absinken des normierten Strukturfaktors im Limes geringer Temperaturen $T \rightarrow 0$ ($\lim_{T \rightarrow \infty} S_{\mathbf{q}}/S(S+1) = 1$, siehe Kapitel 36). Dies ist verglichen mit dem AFM auf dem Kagome-Gitter ein anderes Verhalten. Die Neigung zu stärkerer Unordnung bei verschwindenden thermischen Fluktuationen ist in der gezeigten Abbildung stärker für größere Werte des Spins S ausgeprägt. Für den Fall endlicher

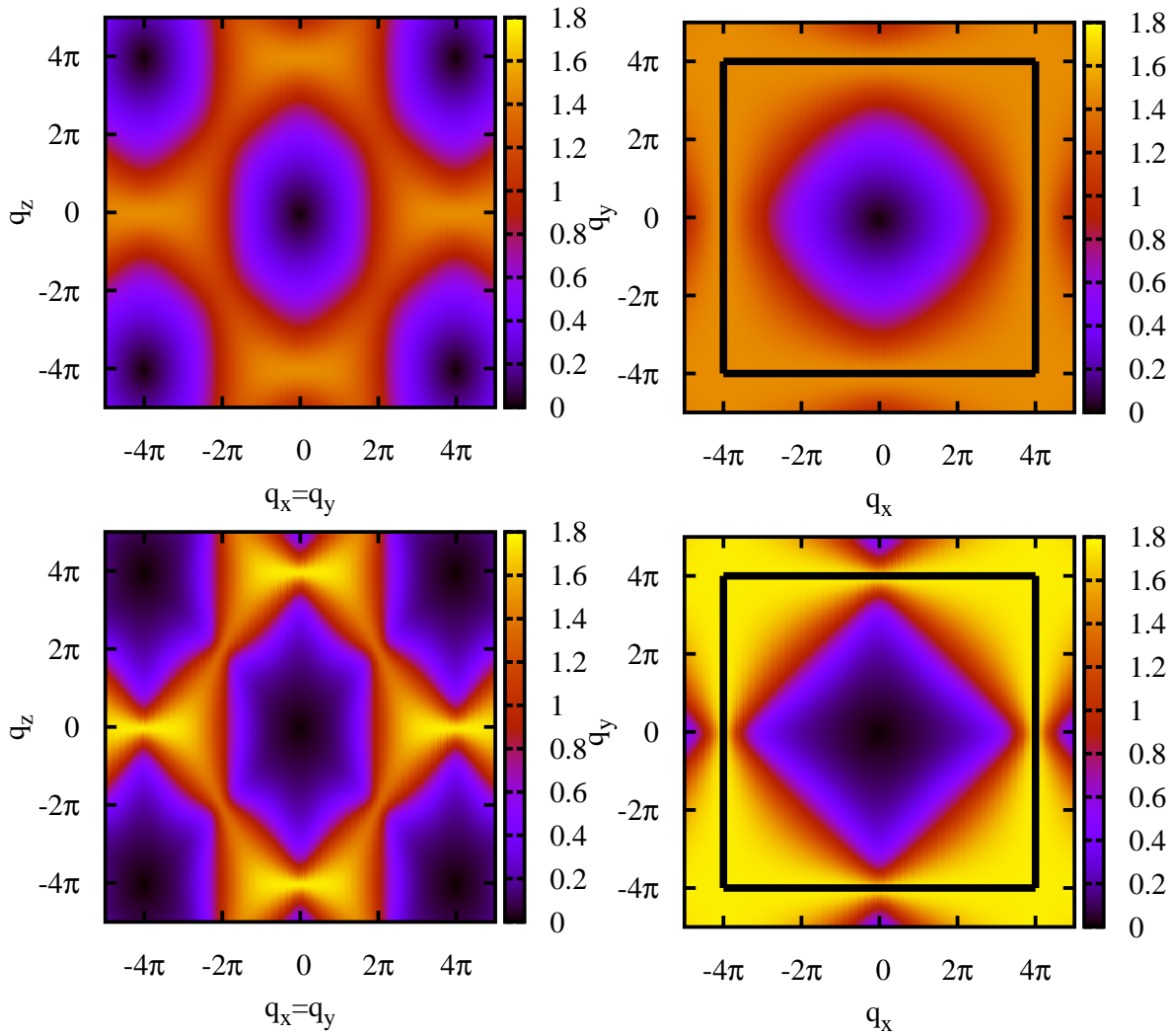


Abbildung 3.68.: Normierter statischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ innerhalb der RGM am Temperaturnullpunkt $T = 0$ für den AFM auf dem Pyrochlore-Gitter für $S = 1/2$ (oben) und $S = 3$ (unten) in den zwei Bragg-Ebenen $q_y = q_x$ (links) und $q_z = 0$ (rechts; das schwarze Quadrat markiert die Punkte, an denen $S_{\mathbf{q}}$ maximal ist).

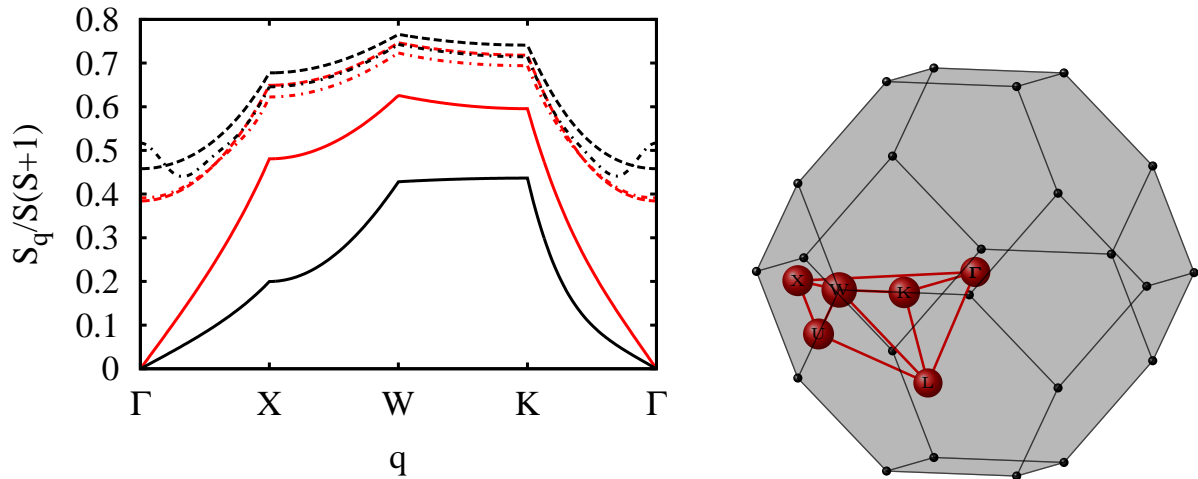


Abbildung 3.69.: (links) Normierter statischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ für $S = 1/2$ (rot) und $S = 3$ (schwarz) aus der RGM ($T = 0$: durchgezogene Linien; $T = 1.7S(S+1)$: gestrichelte Linien) und der HTE ($T = 1.7S(S+1)$: punkt-gestrichelte Linien; $S = 1/2$: 12. Ordnung, $S = 3$: 10. Ordnung). (rechts) Die Punkte Γ , X , W und K sind die entsprechenden Punkte der Brillouin-Zone eines kubisch flächenzentrierten Bravaisgitters und durch $\Gamma = (0, 0, 0)$, $X = (0, 2\pi, 0)$, $W = (\pi, 2\pi, 0)$, $K = (3\pi/2, 3\pi/2, 0)$ gegeben, siehe beispielsweise [181].

Tabelle 3.6.: Übersicht der unbekanntenen Größen und das zur Bestimmung verwendete nichtlineare Gleichungssystem der RGM nach Kapitel 3.2.1.

Unbekannte Größen	$T = 0$	$T > 0$
$c_{m\alpha, n\beta}$	$c_{m\alpha, n\beta} = \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} c_{\mathbf{q}\alpha\beta} \cos(\mathbf{q}\mathbf{r}_{m\alpha, n\beta})$	
α	Summenregel	
λ	$\lambda(0) = 2 - \frac{1}{S}$	$\frac{\lambda(0) - \lambda(\infty) + 1}{\alpha(0) - \alpha(\infty) + 1} = \frac{\lambda(T) - \lambda(\infty) + 1}{\alpha(T) - \alpha(\infty) + 1}$

Temperaturen $T > 0$ ist wegen der Vertexparameter ($\alpha(S \geq 2, T = 0) < 1$) zu erwarten, dass es, analog zum AFM auf dem Kagome-Gitter, Probleme für größere S beim Lösen der Gleichungssysteme gibt. Die Ursache dafür, konnte in den aufgestellten Gleichungen gefunden werden. Der kritische Vorzeichenwechsel in einer dieser Gleichungen, der durch den Vertexparameter $\alpha(S, T = 0) < 1$ im Bereich mittlerer Temperaturen hervorgerufen wurde, konnte dort durch die Unterscheidung eines weiteren Vertexparameters umgangen werden ($\alpha_1(S, T) > 1, \alpha_2(S, T) > 1$). An dieser Stelle soll eine andere Variante vorgestellt werden, die das entsprechende Problem innerhalb der Minimalversion der RGM beheben kann und ohne zusätzliche Informationen über den GS auskommt. Dafür werden die Gleichungen nach Tabelle 3.6 genutzt. Dieses Gleichungssystem ist für $T > 0$ für alle Werte von $S \geq 1$ unter anderem deswegen konsistent lösbar, da der Ausdruck $\alpha(T) - \alpha(\infty) + 1$ stets dasselbe Vorzeichen besitzt. Die Korrelationsfunktionen in Abbildung 3.70 sind

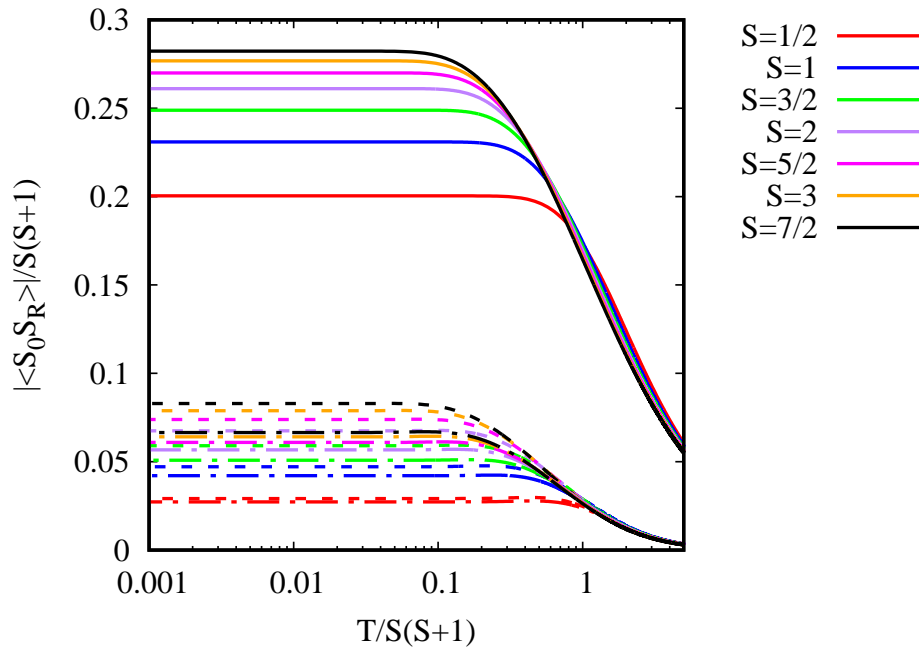


Abbildung 3.70.: Darstellung des Betrages der normierten Korrelationsfunktionen $|\langle \hat{S}_0 \hat{S}_R \rangle| / (S(S+1))$ (nächste Nachbarn - durchgezogene Linien; übernächste Nachbarn - gestrichelte Linien; drittnächste Nachbarn - gepunktete Linien) als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2$.

bei niedrigen Temperaturen, wie auch schon beim Kagome-AFM, siehe Abbildung 3.31, annähernd unabhängig von der Temperatur. Die uniforme Suszeptibilität χ_0 ist in Abbildung 3.71 dargestellt. Der Vergleich mit der HTE liefert eine gute Übereinstimmung. Für niedrigere Temperaturen wird die Kongruenz beider Methoden erwartungsgemäß schlechter. Dabei liefern die Ergebnisse für $S = 1$ nahezu deckungsgleiche Kurven bis zu einer Temperatur von $T \approx 0.5S(S+1)$. Für größere Werte des Spins steigt die Abweichung beider Methoden an. Diese ist in der Abbildung für $S = 3$ am größten und ist mit einer relativen Abweichung von $\approx 10\%$ bei $T \approx 0.5S(S+1)$ anzugeben. Innerhalb der RGM ist erkennbar, dass sich in χ_0 mit dem Anwachsen der Spinquantenzahl ein kleines Maximum bei tiefen Temperaturen ausbildet. Qualitativ gute Übereinstimmungen zwischen der HTE und der RGM zeigen auch die Resultate der spezifischen Wärme in Abbildung 3.71. Das Maximum von c_V steigt mit S an und verschiebt sich zu immer niedrigeren Temperaturen $T/S(S+1)$. Dies ist beim AFM auf dem Kagome-Gitter ein bekanntes Resultat, siehe hierfür zum Beispiel Kapitel 3.5 oder [71]. Die Ergebnisse der HTE und der RGM scheinen für höhere S bei tiefen Temperaturen besser übereinzustimmen.

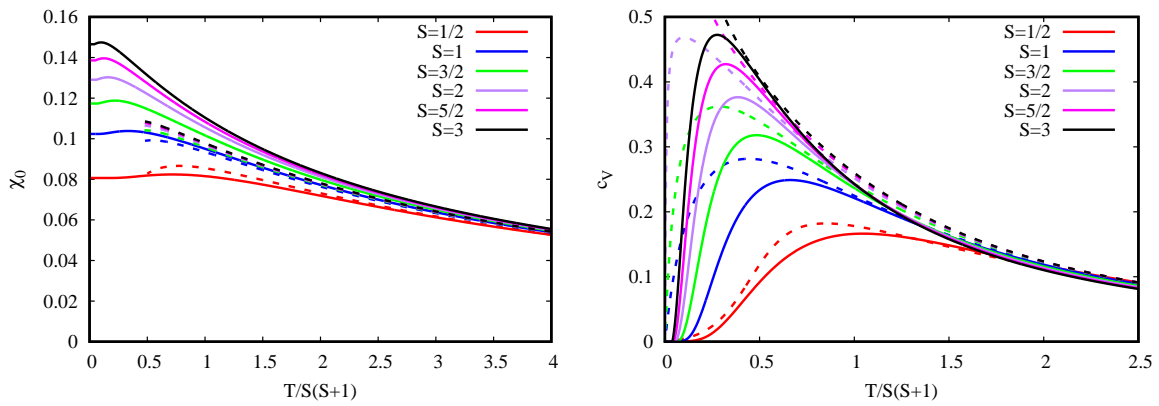


Abbildung 3.71.: (links) Die uniforme Suszeptibilität χ_0 als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 2, 5/2, 3$ im Vergleich mit den korrespondierenden Padé-[6,5] (Padé-[7,6]: $S = 1/2$) Approximanten (gestrichelte Linien). (rechts) Die spezifische Wärmekapazität c_V als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2, 2, 5/2, 3$ im Vergleich mit den korrespondierenden Padé-[5,6] (Padé-[6,7]: $S = 1/2$) Approximanten (gestrichelte Linien).

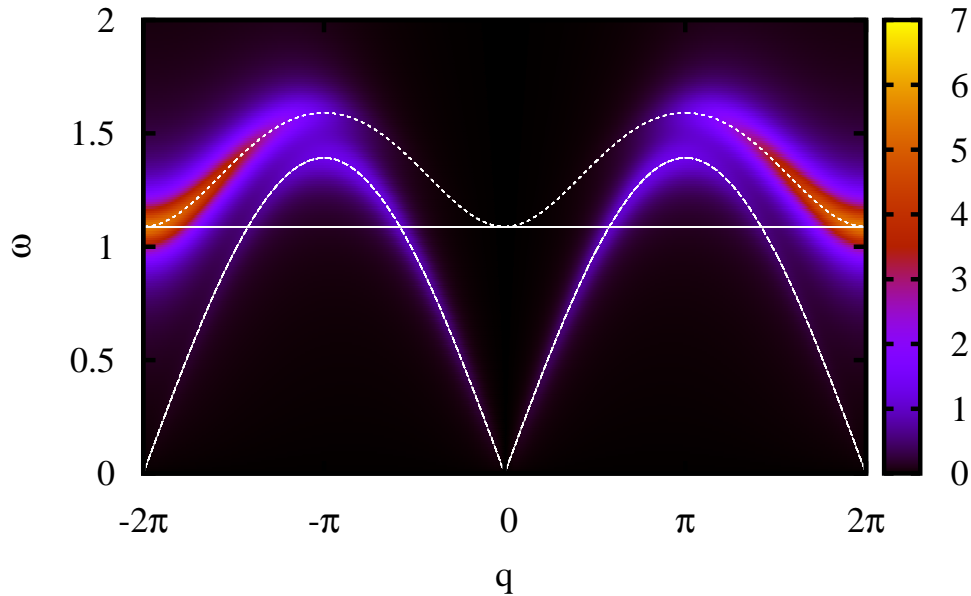


Abbildung 3.72.: Dynamischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter für $S = 1/2$ entlang des Pfades $q = q_x = q_y = q_z$ für $T = 0$, mit einem Parameter von $\varepsilon = 0.1$, siehe Kapitel 3.2.1 Gleichung (3.48). Die weißen Linien entsprechen den Dispersionsrelationen aus Gleichung (3.141).

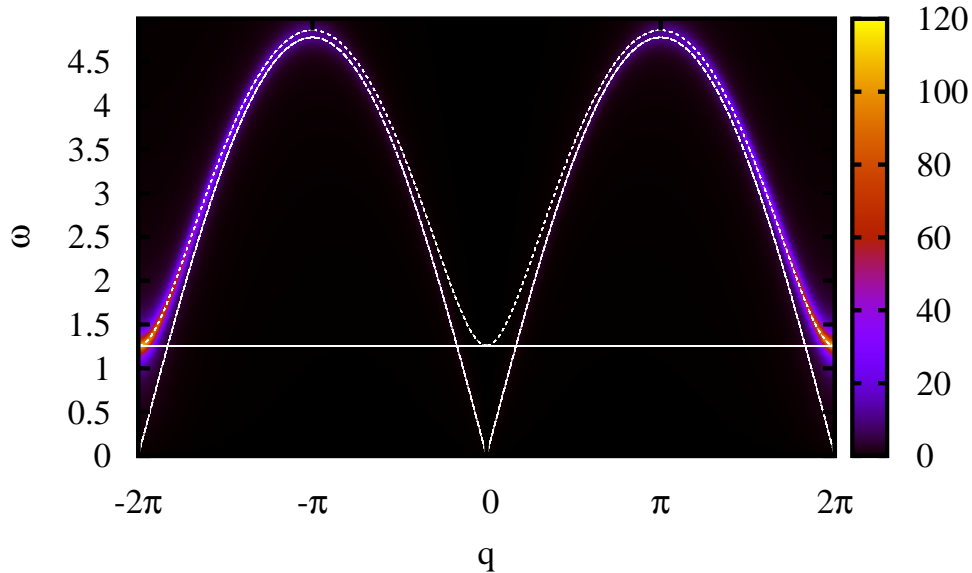


Abbildung 3.73.: Dynamischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ des AFM auf dem Pyrochlor-Gitter für $S = 3$ entlang des Pfades $q = q_x = q_y = q_z$ für $T = 0$, mit einem Parameter von $\epsilon = 0.1$, siehe Kapitel 3.2.1 Gleichung (3.48). Die weißen Linien entsprechen den Dispersionsrelationen aus Gleichung (3.141).

An dieser Stelle soll wie im vorangegangenen Kapitel für das ferromagnetische Modell der dynamische Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ in den Abbildungen 3.72 und 3.73 vorgestellt werden. Deutlich weniger ausgeprägt sind hier die Beiträge des akustischen Astes zum dynamischen Strukturfaktor. Aus Gründen, die bereits im vorherigen Kapitel erwähnt wurden, entfällt der Beitrag des nichtdispersiven Bandes auch hier. Die Beiträge mit größtem Wert von $S_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega)$ sind am deutlichsten ausgeprägt.

An dieser Stelle soll nun der skalare Strukturfaktor der HTE betrachtet werden. Für die Spinquantenzahlen $S = 1/2, 1, 3/2$ sind nachfolgend die jeweils ersten beiden Entwicklungskoeffizienten in der renormierten Temperaturskala $\tilde{T} = T/(S(S + 1))$ explizit

angegeben

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q},S=1/2}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \right) \\
&\quad - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \left(\cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \left(\cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) (2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + 1) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) (2 \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + 1) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} (2 \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + 1) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q},S=1/2,12}}{[S(S+1)]^{11} \tilde{T}^{12}}, \tag{3.151}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q},S=1}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \right) \\
&\quad - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \left(\cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \left(\cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) (2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \frac{13}{8}) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) (2 \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \frac{13}{8}) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} (2 \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + \frac{13}{8}) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q},S=1,10}}{[S(S+1)]^{11} \tilde{T}^{10}}, \tag{3.152}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\frac{S_{\mathbf{q},S=3/2}}{S(S+1)} &= 1 - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \left(\cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \right) \right) \\
&\quad - \frac{1}{\tilde{T}} \left(\frac{2J}{3} \left(\cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \left(\cos\left(\frac{q_z}{2}\right) \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \left(2 \cos\left(\frac{q_z}{2}\right) + \frac{9}{5} \right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \cos\left(\frac{q_x}{4}\right) \left(2 \cos\left(\frac{q_y}{2}\right) + \frac{9}{5} \right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \frac{1}{\tilde{T}^2} \left(\frac{2J^2}{9} \left(2 \cos\left(\frac{q_x}{2}\right) + \frac{9}{5} \right) \cos\left(\frac{q_y}{4}\right) \cos\left(\frac{q_z}{4}\right) \right) \\
&\quad + \dots + \frac{s_{\mathbf{q},S=3/2,10}}{[S(S+1)]^{11} \tilde{T}^{10}}. \tag{3.153}
\end{aligned}$$

Vergleicht man zum Beispiel mit Kapitel 3.4.2, so findet sich in den normierten skalaren Struktur Faktoren aus der HTE auch hier einen Unterschied in der zweiten Ordnung, erkennbar an den Vorfaktoren der Terme $\sim \cos\left(\frac{q_i}{4}\right) \cos\left(\frac{q_j}{4}\right)$ ($\{i \neq j\} = (x, y, z)$). Es ist nun das typische Vorgehen, Maxima in den gegebenen analytischen Gleichungen aufzufinden. Von den Ergebnissen der RGM ist bekannt, an welchen Stellen in $S_{\mathbf{q}}$ sich für den GS geeignete magnetische Ordnungsvektoren auffinden lassen, siehe hierzu das schwarze Quadrat in Abbildung 3.68 und Abbildung 3.74. Legt man dieses Gebiet zugrunde, so findet man in den niedrigsten Ordnungen entlang einer Kante des Quadrats in der Tat ein Plateau von Punkten maximaler $S_{\mathbf{q}}$. Die absolute Höhe ist dabei abhängig von der Ordnung und vom gewählten Spin S . Die Werte von $S_{\mathbf{q}}$ entlang des Plateaus hängen bei moderaten Temperaturen schwach von der Ordnung ab und liefern ein praktisch nahezu identisches Bild zur RGM. Eine Besonderheit zeigt sich in der siebten Ordnung der HTE, siehe hierzu Tabelle 3.7. Ab dieser Ordnung bildet sich zunächst eine besondere magnetische Konfiguration mit sehr geringer Amplitude heraus. Der Term $\cos\left(\frac{q_x}{2}\right)$ mit negativem Vorfaktor sorgt für eine Favorisierung der Punkte $q_x = \pm 2\pi$ und symmetriebedingt auf jeder der drei anderen Kanten des Quadrats. Die renormierten Entwicklungsterme zeigen, dass es sich um einen quantengetriebenen Selektionsprozess handelt, verschwinden doch die Vorfaktoren mit wachsendem S : $S = 1/2 \curvearrowright \frac{560}{688905} \approx 0.00081$, $S = 1 \curvearrowright \frac{4480}{39191040} \approx 0.00011$ und $S = 3/2 \curvearrowright \frac{1750000}{53820703125} \approx 0.00003$. Interessanterweise ändert sich das Vorzeichen teilweise mit der Ordnung und eine zweite konkurrierende Spin-Konfiguration, nämlich $q_x = \{\pm 4\pi, 0\}$ (und alle symmetrischen Punkte dazu) tritt auf. Das Vorzeichen scheint ebenso spinabhängig zu sein, siehe zum Beispiel Ordnung 8 in Tabelle 3.7. Es verbleibt die Frage, wie diese Konfigurationen, deren Vertreter nun mit $\mathbf{Q}_0 = (4\pi, 4\pi, 0)$ und $\mathbf{Q}_1 = (2\pi, 4\pi, 0)$ gegeben sein sollen, zu interpretieren sind. In [161] wurde das Modell störungstheoretisch mit dem Ausgangspunkt isolierter Tetraeder gekoppelt über J' (mit $\lambda = J'/J$ als Parameter der PT) untersucht. Dabei konnten die Eigenwerte (dort mit

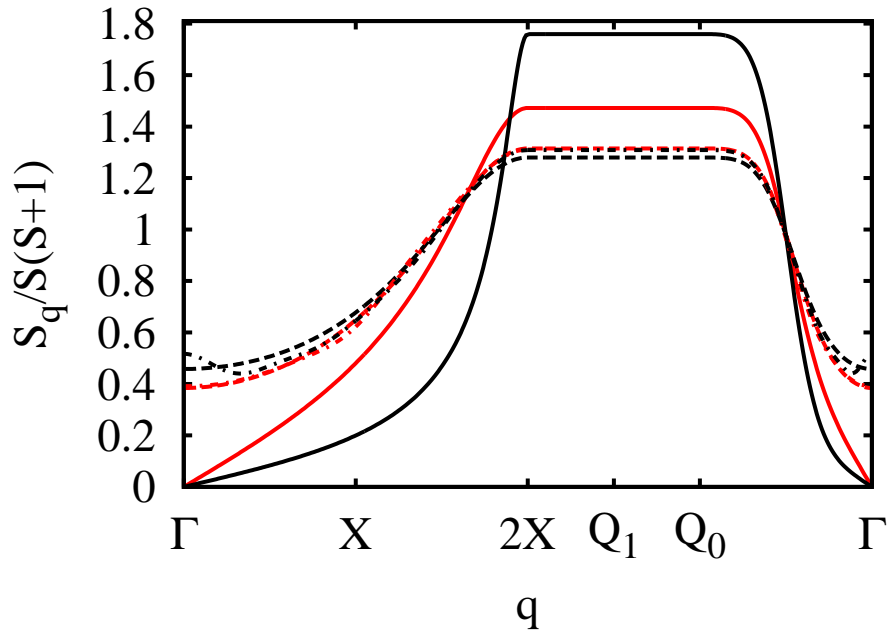


Abbildung 3.74.: (links) Normierter statischer Strukturfaktor $S_{\mathbf{q}}/S(S+1)$ für $S = 1/2$ (rot) und $S = 3$ (schwarz) aus der RGM ($T = 0$: durchgezogene Linien; $T = 1.7S(S+1)$: gestrichelte Linien) und der HTE ($T = 1.7S(S+1)$: punkt-gestrichelte Linien; $S = 1/2$: 12. Ordnung, $S = 3$: 10. Ordnung). (rechts) Die Punkte Γ , X , \mathbf{Q}_1 und \mathbf{Q}_0 sind durch $\Gamma = (0, 0, 0)$, $X = (0, 2\pi, 0)$, $\mathbf{Q}_1 = (2\pi, 4\pi, 0)$ und $\mathbf{Q}_0 = (4\pi, 4\pi, 0)$ gegeben, siehe beispielsweise [181].

Tabelle 3.7.: Entwicklungsterme des normierten skalaren Strukturfaktors $\frac{S_{\mathbf{q}, S, n}}{[S(S+1)]^{n+1} J^n}$ der HTE für $S = 1/2, 1, 3/2$ am Punkt $q_z = 0, q_y = 4\pi$ beim AFM auf dem Pyrochlor-Gitter.

n	$S = 1/2$	$S = 1$	$S = 3/2$
1	$\frac{2}{3}$	$\frac{2}{3}$	$\frac{2}{3}$
2	0	$-\frac{5}{36}$	$-\frac{8}{45}$
3	$-\frac{20}{27}$	$-\frac{10}{27}$	$-\frac{2588}{10125}$
4	$\frac{62}{243}$	$\frac{1721}{5184}$	$\frac{8662}{30375}$
5	$\frac{1312}{1215}$	$\frac{133}{810}$	$\frac{84448}{3796875}$
6	$-\frac{28006}{32805}$	$-\frac{32309}{69120}$	$-\frac{142434998}{512578125}$
7	$\frac{-1031308-560\cos(\frac{qx}{2})}{688905}$	$\frac{6039471-4480\cos(\frac{qx}{2})}{39191040}$	$\frac{11132918004-1750000\cos(\frac{qx}{2})}{53820703125}$
8	$\frac{4423862+3608\cos(\frac{qx}{2})}{2066715}$	$\frac{1552120827+633088\cos(\frac{qx}{2})}{3762339840}$	$\frac{552725758-498920\cos(\frac{qx}{2})}{6458484375}$
9	$\frac{18947028+8576\cos(\frac{qx}{2})}{11160261}$	$\frac{-573191935+107488\cos(\frac{qx}{2})}{1128701952}$	$\frac{-31183199780044+38350832000\cos(\frac{qx}{2})}{108986923828125}$

$\omega_{\mathbf{q}}^{\alpha}$ symbolisiert) des tensoriellen Strukturfaktors ausgewertet werden und es zeigte sich, dass auch hier die Entartung in höherer Ordnung schwach ($\Delta\omega_{\mathbf{Q}_{\max}}^{\alpha}/\omega_{\mathbf{Q}_{\text{Plateau}}}^{\alpha} \approx 10^{-6}$) gebrochen wurde. Die beiden relevanten Spin-Konfigurationen wurden als eine Phase sogenannter kohärenter Tetraeder (\mathbf{Q}_0) und eine sogenannte π -Phase (\mathbf{Q}_1) identifiziert. Eine Möglichkeit zu prüfen, ob es sich in diesem Fall ebenso um diese Art von magnetischer Konfiguration handelt, liefert das Betrachten des Phasenfaktors, ausgehend von dem Spin an der Stelle $\mathbf{r}_1 = (0, 0, 0)$ ($\alpha = 0$): $\psi_{hkl}(\mathbf{Q}_i) = e^{i\mathbf{Q}_i \cdot (h\mathbf{r}_2 + k\mathbf{r}_3 + l\mathbf{r}_4)}$ (wobei $\mathbf{r}_2 = (0, 1/4, 1/4)$, $\mathbf{r}_3 = (1/4, 0, 1/4)$ und $\mathbf{r}_4 = (1/4, 1/4, 0)$). Betrachtet man beispielsweise exemplarisch $k = l = 0$, also einfache Schritte entlang des Gitters, so sieht man: $\psi_h(\mathbf{Q}_0) = (-1)^h$ und $\psi_h(\mathbf{Q}_1) = (-1)^{h/2}$ und beachtet man außerdem, dass für $0 \neq 2h \in \mathbb{Z}$ eine andere Elementarzelle erreicht wird, dann zeigt sich das beschriebene Verhalten. Rückblickend auf das Kapitel 3.5, ist auch hier mit einem magnetischen Ordnungsvektor \mathbf{Q}_0 ein Zustand mit einer kleinen magnetischen Elementarzelle ($\mathbf{Q}_0 \iff „q = 0“$, identisch zur geometrischen Elementarzelle) und mit dem magnetischen Ordnungsvektor \mathbf{Q}_1 ein konkurrierender Zustand mit einer vergrößerten magnetischen Elementarzelle ($\mathbf{Q}_1 \iff „\sqrt{2} \times \sqrt{2}“$) verknüpft.

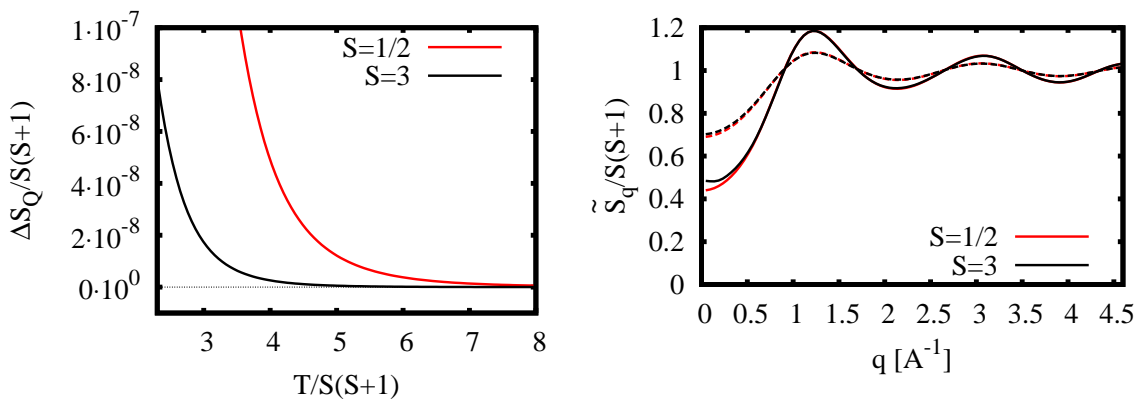


Abbildung 3.75.: (links) Differenz der normierten skalaren Strukturformfaktoren $\Delta S_{\mathbf{Q}} = (S_{\mathbf{Q}_1} - S_{\mathbf{Q}_0}) / S(S+1)$ mit $\mathbf{Q}_0 = (4\pi, 4\pi, 0)$ und $\mathbf{Q}_1 = (2\pi, 4\pi, 0)$ der HTE mit der Spinquantenzahl $S = 1/2$ (Ordnung 12; rot) als Funktion der skalierten Temperatur $T/S(S+1)$ und $S = 3$ (Ordnung 10; schwarz). (rechts) sphärisch gemittelter und skaliertes Strukturformfaktor $\tilde{S}_q/S(S+1)$ nach Gleichung (3.4) der HTE mit der Spinquantenzahl $S = 1/2$ (Ordnung 12; rot) und $S = 3$ (Ordnung 10; schwarz) als Funktion von q in Einheiten von \AA^{-1} (unter Berücksichtigung des experimentell ermittelten Gitterabstands von $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ mit $a \approx 10.154 \text{\AA}$ aus [190]) bei zwei Temperaturen $T/S(S+1) = 2$ (durchgezogene Linien) und $T/S(S+1) = 5$ (gestrichelte Linien).

Der Unterschied zwischen diesen Konfigurationen ist hingegen um ein Vielfaches kleiner, jedoch wird ebenso eine, verglichen mit dem Translationsgitter, ausgedehntere magnetische Elementarzelle bevorzugt. Dass die Selektion der Zustände ein Prozess ist, bei dem Quantenfluktuationen bei niedrigen Temperaturen relevant sind, zeigt sich an Abbildung 3.75 (links). Der sphärisch gemittelte Strukturformfaktor ist in Abbildung 3.75 (rechts) gegeben (die Maxima befinden sich hier bei $q_1 \approx 1.23 \text{\AA}^{-1}$ und $q_2 \approx 3.08 \text{\AA}^{-1}$). Für $S = 1/2$ gibt

es in [191] experimentelle Daten über beide Maxima $q'_1 \approx 1.2 \text{ \AA}^{-1}$ und $q'_1 \approx 3.1 \text{ \AA}^{-1}$ einer Probe von $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ und stimmen damit sehr gut mit den theoretischen Ergebnissen überein.

Zusammenfassung Kapitel 3.7: Pyrochlor-Gitter

In Kapitel 3.7 wurde das Pyrochlor-Gitter mit einer Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn bei beliebiger Spinquantenzahl S untersucht. Zunächst wurden die allgemeinen Gleichungen der RGM entwickelt, um sie auf das ferromagnetische Modell anzuwenden. Dabei zeigte sich, dass LRO mit dem Übergang von einer linearen ($T \geq T_c$) zu einer quadratischen Dispersion ($T < T_c$) des akustischen Astes verknüpft ist. Die Minimalversion der RGM lieferte im gesamten Temperaturbereich konsistente und zuverlässige Daten. Insbesondere für $S = 1/2$ wurde eine kritische Temperatur von $T_c \approx 0.778$ gefunden, die sehr gut mit den Befunden experimenteller Untersuchungen übereinstimmt ($T_c \approx 0.7 \dots 0.73$). Die Abhängigkeit der kritischen Temperatur vom Spin $T_c(S)/S(S+1)$ wurde mit dem analogen Modell für das einfach kubische Gitter, das die gleiche Koordinationszahl besitzt, innerhalb der RGM und der HTE untersucht. Hier zeigte sich deutlich, dass die kritischen Temperaturen für jedes S beim Pyrochlor-Gitter um 10% bis 15% frusturationsbedingt reduziert sind, wobei der Unterschied mit der Spinquantenzahl abnimmt. Der dynamische Strukturfaktor der RGM stimmt mit den experimentellen Ergebnissen für das magnetische Material $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$ gut überein. Die Minimalversion der RGM lieferte für den AFM im Gegensatz zum entsprechenden Modell auf dem Kagome-Gitter den korrekten klassischen Limes für die Energie des GS, wobei für alle betrachteten S keine LRO gefunden wurde. Verglichen mit dem Modell auf dem Kagome-Gitter fallen die Korrelationsfunktionen auf dem Pyrochlor-Gitter schneller ab, dabei ist die Korrelationslänge für $S = 1/2$ des stark frustrierten dreidimensionalen Modelles mit $\xi/d \approx 0.566$ am geringsten. Da die Vertexparameter ohne Modifikation auch in diesem Fall Divergenzen bei den Lösungen des nichtlinearen Gleichungssystems für $T > 0$ erzeugen, wurden Gleichungen vorgeschlagen, die dieses Problem nicht aufweisen. Die entsprechenden thermodynamischen Größen der HTE (c_V, χ_0) stimmen für beliebige S bis zu einer Temperatur von ungefähr $T \approx 0.5S(S+1)$ gut überein. Der Strukturfaktor zeigte in den zwei betrachteten Bragg-Ebenen das Auftreten von *pinch-points* und *bow-ties* und das Vorhandensein eines kontinuierlichen Pfades konstanter maximaler Punkte in $S_q/S(S+1)$ in der Form eines Quadrats. Hierbei zeigte sich, dass die Strukturen für $T \rightarrow 0$ mit der Spinquantenzahl kontrastreicher werden. Der skalare Strukturfaktor aus der HTE bestätigte das gefundene qualitative Resultat mit dem Unterschied, dass in höherer Ordnung (7) die Symmetrie der favorisierten magnetischen Ordnung zugunsten zweier konkurrierender Zustände schwach gebrochen wird, wobei eine Abhängigkeit von der Spinquantenzahl festgestellt wurde. Diese unterscheiden sich durch die Ausdehnung der magnetischen Elementarzelle. Dabei erwies sich der Zustand mit der größeren magnetischen Elementarzelle für alle betrachteten S als vom System leicht bevorzugt. Der sphärisch gemittelte Strukturfaktor $\tilde{S}_q/S(S+1)$ der HTE wurde für den Fall $S = 1/2$ dargestellt, wobei die Maxima $q_1 \approx 1.23 \text{ \AA}^{-1}$ und $q_2 \approx 3.08 \text{ \AA}^{-1}$ sehr gut mit experimentellen Befunden übereinstimmen.

In diesem Abschnitt werden die verwendeten Formeln der PT bis zur sechsten Ordnung vorgestellt, diese sind auch beispielweise in [20] zu finden. Der zu untersuchende \mathcal{N} -Zellen Hamiltonian wird gemäß der Rayleigh-Schrödinger-PT in einen ungestörten Teil \hat{H}_0 und einen Störterm \hat{V} , mit $\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V}$, aufgespalten. Alle Eigenzustände $|\alpha\rangle$ und Eigenenergien E_α von \hat{H}_0 sind bekannt. Gegenstand der Untersuchungen ist das Hubbard-Modell mit einem Elektron je Elektronenfalle, also der Unterraum mit $n = \mathcal{N}$ Elektronen. Der Grundzustand $|GS\rangle$ des ungestörten Hamiltonians \hat{H}_0 ist 2^n -fach entartet ($\hat{H}_0 = \sum_{\sigma=\uparrow,\downarrow,m} t_2 \hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger \hat{c}_{m,2,\sigma} + \text{h.c.}$, t_2 definiert voneinander isolierte Elektronenfalle), da jede Zelle mit einem bezüglich der Quantisierungsachse parallelen Spin $|\uparrow\rangle$ oder antiparallelen Spin $|\downarrow\rangle$ besetzt werden kann. Die Energie des Grundzustands wird im Folgenden mit E_{GS} bezeichnet. Außerdem gilt für alle betrachteten Fälle $\langle GS|\hat{V}|GS\rangle = 0$. Die Terme der Grundzustandsenergiekorrekturen höherer Ordnung $\tilde{E}_{GS} = E_{GS} + E_{GS}^{(2)} + E_{GS}^{(3)} + E_{GS}^{(4)} + E_{GS}^{(5)} + E_{GS}^{(6)}$ sind durch:

$$\begin{aligned}
 E_{GS}^{(2)} &= \sum_{\alpha}' \frac{\langle GS|\hat{V}|\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{V}|GS\rangle}{E_{GS} - E_{\alpha}}, \\
 E_{GS}^{(3)} &= \sum_{\alpha}' \sum_{\beta}' \frac{\langle GS|\hat{V}|\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{V}|\beta\rangle\langle\beta|\hat{V}|GS\rangle}{(E_{GS} - E_{\alpha})(E_{GS} - E_{\beta})}, \\
 E_{GS}^{(4)} &= \sum_{\alpha}' \sum_{\beta}' \sum_{\gamma}' \frac{\langle GS|\hat{V}|\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{V}|\beta\rangle\langle\beta|\hat{V}|\gamma\rangle\langle\gamma|\hat{V}|GS\rangle}{(E_{GS} - E_{\alpha})(E_{GS} - E_{\beta})(E_{GS} - E_{\gamma})} \\
 &\quad - \sum_{\alpha}' \sum_{\beta}' \frac{\langle GS|\hat{V}|\alpha\rangle\langle\alpha|\hat{V}|GS\rangle\langle GS|\hat{V}|\beta\rangle\langle\beta|\hat{V}|GS\rangle}{(E_{GS} - E_{\alpha})^2(E_{GS} - E_{\beta})},
 \end{aligned} \tag{A.1}$$

$$\begin{aligned}
 E_{GS}^{(5)} &= (1, 1, 1, 1) + \frac{1}{2}(2, 1, 0, 1) + \frac{1}{2}(1, 2, 0, 1) + \frac{1}{2}(1, 1, 0, 2) \\
 &+ \frac{1}{2}(2, 0, 1, 1) + \frac{1}{2}(1, 0, 2, 1) + \frac{1}{2}(1, 0, 1, 2), \\
 E_{GS}^{(6)} &= (1, 1, 1, 1, 1) + \frac{1}{2}(2, 1, 1, 0, 1) \\
 &+ \frac{1}{2}(1, 2, 1, 0, 1) + \frac{1}{2}(1, 1, 2, 0, 1) + \frac{1}{2}(1, 1, 1, 0, 2) + \frac{1}{2}(2, 1, 0, 1, 1) \\
 &+ \frac{1}{2}(1, 2, 0, 1, 1) + \frac{1}{2}(1, 1, 0, 2, 1) + \frac{1}{2}(1, 1, 0, 1, 2) + \frac{1}{2}(2, 0, 1, 1, 1) \\
 &+ \frac{1}{2}(1, 0, 2, 1, 1) + \frac{1}{2}(1, 0, 1, 2, 1) + \frac{1}{2}(1, 0, 1, 1, 2) + \frac{1}{2}(3, 0, 1, 0, 1) \\
 &+ \frac{3}{8}(2, 0, 2, 0, 1) + \frac{1}{4}(2, 0, 1, 0, 2) + \frac{3}{8}(1, 0, 2, 0, 2) + \frac{1}{2}(1, 0, 1, 0, 3),
 \end{aligned} \tag{A.2}$$

gegeben [20]. Der eingeführte hochgestellte Index an den Summenzeichen „ \sum' “ symbolisiert die Summation über alle Zustände des ungestörten Hamiltonians \hat{H}_0 , mit Ausnahme der Grundzustände. Die eingeführte Kurzschreibweise für $E_{GS}^{(5)}$ und $E_{GS}^{(6)}$, die auch in [20] verwendet wird, ist durch folgende Vorschrift

$$\begin{aligned}
 (k_1, k_2, \dots, k_n) &= \langle GS | \hat{V} R^{(k_1)} \hat{V} R^{(k_2)} \hat{V} \dots \hat{V} R^{(k_n)} \hat{V} | GS \rangle, \\
 R^{(k)} &= \begin{cases} -|GS\rangle\langle GS|, & k = 0, \\ \left(\sum'_{\alpha} \frac{|\alpha\rangle\langle\alpha|}{E_{GS} - E_{\alpha}} \right)^k, & k > 0, \end{cases}
 \end{aligned} \tag{A.3}$$

erklärt. Es ist offensichtlich, dass der analytische Aufwand sehr stark mit der Ordnung anwächst und die Verwendung eines Computeralgebrasystems eine naheliegende Option ist. Zur Auswertung wurde Mathematica unter der Zuhilfenahme des Pakets SNEG [192], das die Handhabung mit nichtkommutierenden Größen erleichtert, verwendet, wobei es möglich war, für kleine Cluster ($\mathcal{N} = 2$) die Energiekorrekturen bis zur sechsten Ordnung zu berechnen. Für Cluster der Größe $\mathcal{N} = 3$, $\mathcal{N} = 4$ und $\mathcal{N} = 5$ wurden die Energiekorrekturen bis zur vierten Ordnung berechnet. Es besteht durch die Entartung eine Freiheit in der Wahl der angesetzten Grundzustände. In [11] wurde gezeigt, dass im Falle der frustrierten Diamant-Kette, siehe Kapitel 3, ein effektiver Heisenberg-Hamiltonian aufgestellt werden kann, der die tieflegenden Energieniveaus beschreibt. Deshalb wird als initiales Set der Grundzustände für die PT das Eigensystem eines dem Modell entsprechenden äquivalenten Heisenberg-Systems genutzt, siehe hierzu nachfolgenden Anhang (A.1). Ein zusätzlicher Vorteil dieser Wahl besteht dann sowohl in der Gewährleistung der $SU(2)$ -Symmetrie als auch in der von den Clustern abhängigen implizierten Raumsymmetrie der Zustände.

A.1 Grundzustände des ungestörten Hamiltonians

Die Grundzustände des ungestörten Hamiltonians \hat{H}_0 mit der Energie $E_{\text{GS}} = -nt_2$ sind 2^n -fach entartet. Bevor die Formeln der störungstheoretischen Energiekorrekturen aus Anhang A angewandt werden können, werden die 2^n -fach entarteten Grundzustände so miteinander kombiniert, dass diese $SU(2)$ -symmetrische Eigenzustände des korrespondierenden Heisenberg-Modells sind. Dabei ist anzumerken, dass die Zustände der $SU(2)$ -Multipletts Eigenzustände von \hat{H}_0 sind und die einzelnen Komponenten durch den Störoperator \hat{V} keine energetische Aufspaltung erfahren. Dennoch gibt es für die Energie der Multipletts erst ab der zweiten Ordnung Korrekturen, da $\langle \text{GS} | \hat{V} | \text{GS} \rangle = 0$ gilt. Dadurch kann die Anzahl der unterschiedlichen Energien mittels PT im Falle eines Clusters mit $\mathcal{N} = 2, 3, 4, 5$ Zellen, die Werte 2, 3, 6, 10 nicht übersteigen.

Beginnend mit dem Fall von $\mathcal{N} = 2$ Zellen (siehe Abbildung 2.1 mit $m = 1, 2$) und $n = 2$ Elektronen sind die symmetrischen ungestörten Grundzustände wie folgt zu wählen:

$$\begin{aligned}
 |t, 1\rangle &= \hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\uparrow}^\dagger |0\rangle, & |t, 0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\downarrow}^\dagger + \hat{l}_{1,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{2,\uparrow}^\dagger \right) |0\rangle, & |t, -1\rangle &= \hat{l}_{1,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{2,\downarrow}^\dagger |0\rangle, \\
 |s\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\downarrow}^\dagger - \hat{l}_{1,\downarrow}^\dagger \hat{l}_{2,\uparrow}^\dagger \right) |0\rangle, & & & & & \text{(A.4)} \\
 \text{mit } \hat{l}_{m,\sigma}^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{2}} \left(\hat{c}_{m,1,\sigma}^\dagger - \hat{c}_{m,2,\sigma}^\dagger \right).
 \end{aligned}$$

Dies sind die drei Triplet-Zustände $|t\rangle$ und der Singulett-Zustand $|s\rangle$. Nachfolgend wird Gebrauch von der Kurzschreibweise $|\uparrow\uparrow\rangle = \hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\uparrow}^\dagger |0\rangle$, $|\uparrow\downarrow\rangle = \hat{l}_{1,\uparrow}^\dagger \hat{l}_{2,\downarrow}^\dagger |0\rangle$, \dots , gemacht, so dass aus den Gleichungen (A.4)

$$\begin{aligned}
 |t, 1\rangle &= |\uparrow\uparrow\rangle, & |t, 0\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle), & |t, -1\rangle &= |\downarrow\downarrow\rangle, \\
 |s\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle), & & & & & \text{(A.5)}
 \end{aligned}$$

wird. Für 3 Zellen und $n = 3$ Elektronen bei offenen Randbedingungen wurden die

ungestörten Grundzustände wie folgt gewählt:

$$\begin{aligned}
\left|q, \frac{3}{2}\right\rangle &= |\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, \\
\left|q, \frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle), \\
\left|q, -\frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{3}} (|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\uparrow\rangle), \\
\left|q, -\frac{3}{2}\right\rangle &= |\downarrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
\left|d1, \frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle), \\
\left|d1, -\frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{2}} (|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - |\downarrow\downarrow\uparrow\rangle), \\
\left|d2, \frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} (|\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - 2|\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\rangle), \\
\left|d2, -\frac{1}{2}\right\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} (|\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - 2|\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\downarrow\uparrow\rangle).
\end{aligned} \tag{A.6}$$

Hierbei werden mit $|q\rangle$ die Quadruplett-Zustände und mit $|d1\rangle$, $|d2\rangle$ die beiden verschiedenen Dublett-Zustände bezeichnet. Hierbei ist der totale Spin von $|d1\rangle$ und $|d2\rangle$ jeweils $1/2$ und die lokalen S_j^z -Werte für die einzelnen Zellen $j = 1, 2, 3$ sind: $0, \pm 1/2, 0$ für $|d1\rangle$ und $\pm 1/3, \mp 1/6, \pm 1/3$ für $|d2\rangle$. Die angegebenen Zustände in den Gleichungen (A.6) sind Eigenzustände von $(\hat{\mathbf{S}}_1 + \hat{\mathbf{S}}_2 + \hat{\mathbf{S}}_3)^2$, $\hat{S}_1^z + \hat{S}_2^z + \hat{S}_3^z$ und des Heisenberg-Hamiltonians $\hat{H} = \hat{\mathbf{S}}_1\hat{\mathbf{S}}_2 + \hat{\mathbf{S}}_2\hat{\mathbf{S}}_3$, siehe Kapitel 3, (Heisenberg-Hamiltonian mit offenen Randbedingungen, drei Gitterplätzen und $J_{m\alpha, n\beta} = J = 1$ mit einer antiferromagnetischen Wechselwirkung nächster Nachbarn) mit den zugehörigen Energien $1/2$ ($|q\rangle$), 0 ($|d1\rangle$) und -1 ($|d2\rangle$).

Für ein System mit $\mathcal{N} = 4$ Zellen in einer Reihe mit $n = 4$ Elektronen ergeben sich die

ungestörten $SU(2)$ -symmetrischen Grundzustände zu

$$\begin{aligned}
|Q, 2\rangle &= |\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, \dots, |Q, -2\rangle = |\downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
|t1, 1\rangle &= \frac{1}{2\sqrt{2-\sqrt{2}}} \left[-|\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + (1-\sqrt{2})|\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - (1-\sqrt{2})|\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle \right], \dots, \\
|t2, 1\rangle &= \frac{1}{2} (|\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle) + \frac{1}{2} (-|\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle), \dots, \\
|t3, 1\rangle &= \frac{1}{2\sqrt{2+\sqrt{2}}} \left[-|\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + (1+\sqrt{2})|\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - (1+\sqrt{2})|\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle \right], \dots, \\
|s1\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} \left[\frac{1}{2} (-1-\sqrt{3})|\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - \frac{1}{2} (1-\sqrt{3})|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle \right. \\
&\quad \left. + |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \frac{1}{2} (1-\sqrt{3})|\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \frac{1}{2} (-1-\sqrt{3})|\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle \right], \\
|s2\rangle &= \frac{1}{\sqrt{6}} \left[\frac{1}{2} (-1+\sqrt{3})|\uparrow\uparrow\downarrow\downarrow\rangle - \frac{1}{2} (1+\sqrt{3})|\uparrow\downarrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle \right. \\
&\quad \left. + |\downarrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - \frac{1}{2} (1+\sqrt{3})|\downarrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + \frac{1}{2} (-1+\sqrt{3})|\downarrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle \right],
\end{aligned} \tag{A.7}$$

wobei $|Q\rangle$ das Quintett, $|t1\rangle$, $|t2\rangle$, $|t3\rangle$ die drei Triplets und $|s1\rangle$, $|s2\rangle$ die beiden Singulets sind. Die Zustände sind Eigenzustände des Heisenberg-Hamiltonians $\hat{H} = \sum_{i=1}^3 \hat{\mathbf{S}}_i \hat{\mathbf{S}}_{i+1}$ mit den Energien $3/4$ ($|Q\rangle$), $(-1 + 2\sqrt{3})/4$ ($|t1\rangle$), $-1/4$ ($|t2\rangle$), $(-1 - 2\sqrt{3})/4$ ($|t3\rangle$), $(-3 + 2\sqrt{3})/4$ ($|s1\rangle$) und $(-3 - 2\sqrt{3})/4$ ($|s2\rangle$).

Im Falle von $\mathcal{N} = 5$ Zellen und $n = 5$ Elektronen werden die folgenden Zustände verwendet

$$\begin{aligned}
\left| S, \frac{5}{2} \right\rangle &= |\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle, \dots, \left| S, -\frac{5}{2} \right\rangle = |\downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\downarrow\rangle, \\
\left| q1, \frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{2} (|\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle), \dots, \\
\left| q2, \frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{2} (|\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle - |\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle), \dots, \\
\left| q3, \frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{2} (|\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle - |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle), \dots, \\
\left| q4, \frac{3}{2} \right\rangle &= \frac{1}{2\sqrt{5}} (|\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\rangle + |\uparrow\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\rangle - 4|\uparrow\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\rangle + |\uparrow\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle + |\downarrow\uparrow\uparrow\uparrow\uparrow\rangle), \dots, \tag{A.8}
\end{aligned}$$

wobei $|S\rangle$ das Sextett und $|q1\rangle$, $|q2\rangle$, $|q3\rangle$, $|q4\rangle$ die vier Quadruplets sind. Die entsprechenden Dublett-Zustände sind an dieser Stelle nicht aufgeführt, da diese für die PT nicht verwendet wurden, siehe hierzu Kapitel 2.2. Die Geometrie des Clusters ist die eines sogenannten Heisenberg-Sterns, siehe zum Beispiel [193, 194], mit dem Zentralspin $\hat{\mathbf{S}}_3$, oder anders ausgedrückt sind die Zustände Eigenzustände des Heisenberg-Hamiltonians $\hat{H} = \hat{\mathbf{S}}_1 \hat{\mathbf{S}}_3 + \hat{\mathbf{S}}_2 \hat{\mathbf{S}}_3 + \hat{\mathbf{S}}_3 \hat{\mathbf{S}}_4 + \hat{\mathbf{S}}_3 \hat{\mathbf{S}}_5$ mit offenen Randbedingungen und den Energien 1 ($|S\rangle$), $1/2$ ($|q1\rangle$, $|q2\rangle$, und $|q3\rangle$) und $-3/2$ ($|q4\rangle$).

Für die PT wurden die Gleichungen (A.5) und (A.6) für die Diamant-Kette, die Gleichungen

chungen (A.5), (A.6), und (A.7) für die Leiter und die Gleichungen (A.8) für die Bilayer-Struktur genutzt. Im Falle von $\mathcal{N} = 5$ der Bilayer-Struktur wurden auf Grund der erhöhten Komplexität lediglich die Energien E_S und $E_{q1}, E_{q2}, E_{q3}, E_{q4}$ berechnet.

A.2 Resultate der PT für die frustrierte Diamant-Kette

A.2.1 $n = 2$ Elektronen auf der Diamant-Kette mit 2 Elektronenfällen

Mit offenen Randbedingungen, das heißt die Zahl der Gitterpunkte ist 5, sind die Korrekturen der Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -2t_2$ bis zur sechsten Ordnung gegeben durch:

$$E^{(2)} = -\frac{(t_3 - t_1)^2}{t_2}, \quad (\text{A.9})$$

$$E_t^{(4)} = -\frac{(t_3 + t_1)^2(t_3 - t_1)^2}{2t_2^3} + \frac{(t_3 - t_1)^4}{t_2^3}, \quad (\text{A.10})$$

$$E_s^{(4)}(U) = -\frac{(t_3 + t_1)^2(t_3 - t_1)^2}{4t_2^3} + \frac{(t_3 - t_1)^4}{t_2^3} - \frac{(8t_2 + U)(t_3 - t_1)^4}{4t_2^3 U} - \frac{(t_3 + t_1)^2(t_3 - t_1)^2}{2(2t_2 + U)t_2^2} \quad (\text{A.11})$$

$$E_t^{(6)} = -\frac{(t_3 - t_1)^2(t_3^4 - 14t_3^3t_1 + 34t_3^2t_1^2 - 14t_3t_1^3 + t_1^4)}{2t_2^5},$$

$$E_s^{(6)}(U) = -\frac{(t_3 - t_1)^2[192t_2^4(t_3 - t_1)^4 + 48t_2^3U(t_3 - t_1)^2(5t_3^2 - 2t_3t_1 + 5t_1^2)]}{12t_2^5U^2(2t_2 + U)^2} - \frac{(t_3 - t_1)^2[4t_2^2U^2(22t_3^4 + 21t_3^3t_1 - 38t_3^2t_1^2 + 21t_3t_1^3 + 22t_1^4)]}{12t_2^5U^2(2t_2 + U)^2} - \frac{(t_3 - t_1)^2[4t_2U^3(2t_3^4 + 27t_3^3t_1 - 34t_3^2t_1^2 + 27t_3t_1^3 + 2t_1^4)]}{12t_2^5U^2(2t_2 + U)^2} - \frac{(t_3 - t_1)^2[U^4(t_3^4 + 12t_3^3t_1 - 14t_3^2t_1^2 + 12t_3t_1^3 + t_1^4)]}{12t_2^5U^2(2t_2 + U)^2}. \quad (\text{A.12})$$

Die Resultate aus [11] wurden bis zur vierten Ordnung bestätigt. Darüber hinaus wurden die Korrekturen um die sechste Ordnung ergänzt.

A.2.2 $n = 3$ Elektronen auf der Diamant-Kette mit 3 Elektronenfallen

Für den Fall offener Randbedingungen, das bedeutet die Zahl der Gitterpunkte ist 8, sind die Korrekturen der Grundzustandsenergie $E^{(0)} = -3t_2$ bis zur vierten Ordnung:

$$\begin{aligned}
 E^{(2)} &= -\frac{2(t_1 - t_3)^2}{t_2}, \\
 E_q^{(4)} &= \frac{(t_1 - t_3)^2 (7t_1^2 - 26t_1t_3 + 7t_3^2)}{4t_2^3}, \\
 E_{d1}^{(4)}(U) &= \frac{(t_1 - t_3)^2 [-24t_2^2(t_1 - t_3)^2 + t_2U(t_1^2 - 50t_1t_3 + t_3^2) + 2U^2(7t_1^2 - 23t_1t_3 + 7t_3^2)]}{8t_2^3U(2t_2 + U)}, \\
 E_{d2}^{(4)}(U) &= \frac{(t_1 - t_3)^2 [-40t_2^2(t_1 - t_3)^2 - t_2U(17t_1^2 + 14t_1t_3 + 17t_3^2) + 14U^2(t_1^2 - 3t_1t_3 + t_3^2)]}{8t_2^3U(2t_2 + U)}.
 \end{aligned} \tag{A.13}$$

A.3 Resultate der PT für die frustrierte Leiter

A.3.1 $n = 2$ Elektronen auf der Leiter mit 2 Elektronenfallen

Für die Leiter mit $\mathcal{N} = 2$ Zellen und offenen Randbedingungen ($\mathcal{N}\mathcal{N} = 4$) sind die Korrekturen der Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -2t_2$ bis zur vierten Ordnung gegeben durch:

$$\begin{aligned}
 E_t^{(2)} &= -\frac{(t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2}{4t_2}, \\
 E_s^{(2)}(U) &= -\frac{(t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22})^2}{4t_2} - \frac{(t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2}{2(2t_2 + U)} \\
 &\quad - \frac{2(t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22})^2}{U},
 \end{aligned} \tag{A.14}$$

$$\begin{aligned}
E_t^{(4)} &= \frac{1}{64t_2^3} \left[t_{11}^4 - 4t_{11}^3 t_{22} + 2t_{11}^2 (3t_{22}^2 - t_{21}^2 - 6t_{21}t_{12} - t_{12}^2) - 4t_{11}t_{22} (t_{22}^2 + 3t_{21}^2 - 14t_{21}t_{12} + 3t_{12}^2) \right. \\
&\quad \left. + t_{22}^4 - 2t_{22}^2 (t_{21}^2 + 6t_{21}t_{12} + t_{12}^2) + (t_{21} - t_{12})^4 \right], \\
E_s^{(4)}(U) &= \frac{1}{64t_2^3 U^3 (2t_2 + U)^3} \left\{ 4096t_2^6 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22})^4 + 7680t_2^5 U (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22})^4 \right. \\
&\quad + t_{11} \left[67t_{22}^2 - 132t_{22} (t_{12} + t_{21}) + 66 (t_{12} + t_{21})^2 \right] + 21t_{22}^3 - 66t_{22}^2 (t_{12} + t_{21}) + 66t_{22} (t_{12} + t_{21})^2 \\
&\quad + 256t_2^4 U^2 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22}) \left[21t_{11}^3 + t_{11}^2 (67t_{22} - 66 (t_{12} + t_{21})) - (t_{12} + t_{21}) (21t_{21}^2 + 46t_{12}t_{21} + 21t_{12}^2) \right] \\
&\quad + t_{11}^2 \left[406t_{22}^2 - 784t_{22} (t_{12} + t_{21}) + 386 (t_{12} + t_{21})^2 \right] \\
&\quad + 32t_2^3 U^3 \left[55t_{22}^4 - 248t_{22}^3 (t_{12} + t_{21}) + 386t_{22}^2 (t_{12} + t_{21})^2 - 8t_{22} (t_{12} + t_{21}) (31t_{21}^2 + 57t_{12}t_{21} + 31t_{12}^2) \right] \\
&\quad + 32t_2^3 U^3 (55t_{21}^4 + 256t_{21}^3 t_{12} + 406t_{12}^2 t_{21}^3 + 256t_{21}t_{12}^3 + 55t_{12}^4) \\
&\quad + 32t_2^3 U^3 4t_{11} \left[-2 (t_{12} + t_{21}) (31t_{21}^2 + 67t_{12}t_{21} + 31t_{12}^2) \right] \\
&\quad + 32t_2^3 U^3 \left[55t_{11}^4 + 8t_{11}^3 (32t_{22} - 31 (t_{12} + t_{21})) \right] \\
&\quad + 4t_{11} \left[64t_{22}^2 - 196t_{22}^2 (t_{12} + t_{21}) + t_{22} (193t_{21}^2 + 392t_{12}t_{21} + 193t_{12}^2) \right] \\
&\quad + t_{11}^2 \left[156t_{22}^2 - 311t_{22} (t_{12} + t_{21}) + 4 (38t_{21}^2 + 77t_{12}t_{21} + 38t_{12}^2) \right] \\
&\quad + t_{11} \left[100t_{22}^3 - 311t_{22}^2 (t_{12} + t_{21}) + 4t_{22} (77t_{21}^2 + 158t_{21}t_{12} + 77t_{12}^2) - (t_{12} + t_{21}) (97t_{21}^2 + 214t_{12}t_{21} + 97t_{12}^2) \right] \\
&\quad + 20t_{22}^4 - 97t_{22}^3 (t_{12} + t_{21}) + 4t_{22}^2 (38t_{21}^2 + 77t_{12}t_{21} + 38t_{12}^2) - t_{22} (t_{12} + t_{21}) (97t_{21}^2 + 214t_{12}t_{21} + 97t_{12}^2) \\
&\quad + 16t_2^2 U^4 \left[20t_{11}^4 + t_{11}^3 (100t_{22} - 97 (t_{12} + t_{21})) + 4 (5t_{21}^4 + 25t_{21}^3 t_{12} + 39t_{21}^2 t_{12}^2 + 25t_{21}t_{12}^3 + 5t_{12}^4) \right] \\
&\quad + 2t_2 U^5 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22}) \left[23t_{22}^3 - 69t_{22}^2 (t_{12} + t_{21}) + 69t_{22} (t_{12} + t_{21})^2 \right] \\
&\quad - 2t_2 U^5 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22}) \left[(t_{12} + t_{21}) (23t_{21}^2 + 30t_{12}t_{21} + 23t_{12}^2) \right] \\
&\quad + 2t_2 U^5 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22}) \left[23t_{11}^3 + t_{11}^2 (53t_{22} - 69 (t_{12} + t_{21})) \right] \\
&\quad + 2t_2 U^5 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22}) \left[t_{11} (53t_{22}^2 - 138t_{22} (t_{12} + t_{21}) + 69 (t_{12} + t_{21})^2) \right] \\
&\quad \left. + U^6 (t_{11} - t_{12} - t_{21} + t_{22})^2 \left[t_{11}^2 + 2t_{11} (t_{22} - 3 (t_{12} + t_{21})) + t_{22}^2 - 6t_{22} (t_{12} + t_{21}) + (t_{12} + t_{21})^2 \right] \right\}. \quad (\text{A.15})
\end{aligned}$$

Die Formeln für die sechste Ordnung PT sind sehr lang und können deswegen, auch wenn sie in Kapitel 2.2 verwendet wurden, nicht angegeben werden. Für eine Auswahl spezieller Abweichungen von der idealen Geometrie, siehe hierzu Kapitel 2.3.2, vereinfachen sich die Gleichungen. Für die symmetrische Abweichung ergibt sich

$$\begin{aligned}
E_t^{(2)} &= 0, \\
E_s^{(2)}(U) &= -\frac{(t_{11} - t_{12})^2 (8t_2 + U)}{t_2 U}, \quad (\text{A.16})
\end{aligned}$$

für die zweite Ordnung und

$$\begin{aligned}
E_t^{(4)} &= 0, \\
E_s^{(4)}(U) &= \frac{(t_{11} - t_{12})^2 \left[512t_2^3 (t_{11} - t_{12})^2 + 192t_2^2 U (t_{11} - t_{12})^2 \right]}{4t_2^3 U^3} \\
&\quad + \frac{(t_{11} - t_{12})^2 \left[32t_2 U^2 (t_{11} - t_{12})^2 + U^3 (t_{11}^2 - 6t_{11}t_{12} + t_{12}^2) \right]}{4t_2^3 U^3} \quad (\text{A.17})
\end{aligned}$$

für die vierte Ordnung. Für die semi-symmetrische Abweichung ergibt sich

$$\begin{aligned} E_t^{(2)} &= -\frac{(t_{11} - t_{21})^2}{2t_2}, \\ E_s^{(2)}(U) &= -\frac{(t_{11} - t_{21})^2}{2t_2 + U}, \end{aligned} \quad (\text{A.18})$$

für die zweite Ordnung und

$$\begin{aligned} E_t^{(4)} &= -\frac{t_{11}t_{21}(t_{11} - t_{21})^2}{2t_2^3}, \\ E_s^{(4)}(U) &= -\frac{(t_{11} - t_{21})^2 [8t_2t_{11}t_{21} + U(t_{11} + t_{21})^2]}{2t_2(2t_2 + U)^3}, \end{aligned} \quad (\text{A.19})$$

für die vierte Ordnung. In diesen Fällen kann auch die sechste Ordnung PT angegeben werden:

$$\begin{aligned} E_t^{(6)} &= 0, \\ E_s^{(6)}(U) &= -\frac{1}{8t_2^5U^5(16t_2^2 + U^2)} [(t_{11} - t_{12})^2 (524288t_2^7(t_{11} - t_{12})^4 \\ &\quad + 327680t_2^6U(t_{11} - t_{12})^4 + 131072t_2^5U^2(t_{11} - t_{12})^4 \\ &\quad + 1024t_2^4U^3(t_{11} - t_{12})^2 (35t_{11}^2 - 76t_{11}t_{12} + 35t_{12}^2) \\ &\quad + 256t_2^3U^4(t_{11} - t_{12})^2 (28t_{11}^2 - 65t_{11}t_{12} + 28t_{12}^2) \\ &\quad + 8t_2^2U^5 (121t_{11}^4 - 556t_{11}^3t_{12} + 886t_{11}^2t_{12}^2 - 556t_{11}t_{12}^3 + 121t_{12}^4) \\ &\quad + 16t_2U^6(t_{11} - t_{12})^2 (4t_{11}^2 - 17t_{11}t_{12} + 4t_{12}^2) \\ &\quad + U^7 (t_{11}^4 - 14t_{11}^3t_{12} + 34t_{11}^2t_{12}^2 - 14t_{11}t_{12}^3 + t_{12}^4))] \end{aligned} \quad (\text{A.20})$$

(symmetrische Abweichung) und

$$\begin{aligned} E_t^{(6)} &= \frac{(t_{11} - t_{21})^2 (t_{21}^4 + 4t_{21}^3t_{11} - 26t_{21}^2t_{11}^2 + 4t_{21}t_{11}^3 + t_{11}^4)}{32t_2^5}, \\ E_s^{(6)}(U) &= \frac{(t_{11} - t_{21})^2 (t_{21}^4 + 4t_{21}^3t_{11} - 26t_{21}^2t_{11}^2 + 4t_{21}t_{11}^3 + t_{11}^4)}{(2t_2 + U)^5} \\ &\quad + \frac{(t_{11} - t_{21})^2 [t_2U(t_{11} + t_{21})^2 (3t_{21}^2 - 14t_{21}t_{11} + 3t_{11}^2) - 2t_{21}t_{11}U^2(t_{11} + t_{21})^2]}{2t_2^2(2t_2 + U)^5} \end{aligned} \quad (\text{A.21})$$

(semi-symmetrische Abweichung).

A.3.2 $n = 3$ Elektronen auf der Leiter mit 3 Elektronenfallen

Für die Leiter mit $\mathcal{N} = 3$ Zellen und offenen Randbedingungen ($\mathcal{N}\mathcal{N} = 6$) sind die Korrekturen der Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -3t_2$ gegeben durch:

$$\begin{aligned}
E_q^{(2)} &= -\frac{(t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2}{2t_2}, \\
E_{d1}^{(2)}(U) &= \frac{1}{4} \left(\frac{-2t_{11}^2 + t_{11}(2t_{22} + t_{12} + t_{21}) - 2t_{22}^2 + t_{22}(t_{12} + t_{21}) - 2(t_{12}^2 - t_{12}t_{21} + t_{21}^2)}{t_2} \right. \\
&\quad \left. - \frac{(t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2}{2t_2 + U} - \frac{4(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{U} \right), \\
E_{d2}^{(2)}(U) &= -\frac{1}{4t_2U(2t_2 + U)} \left[(8t_2 + U) (3t_2(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2 \right. \\
&\quad \left. + U(t_{11}(2t_{22} - 3(t_{12} + t_{21})) + 2t_{22}^2 - 3t_{22}(t_{12} + t_{21})) \right. \\
&\quad \left. + U(2t_{11}^2 + 2(t_{12}^2 + t_{12}t_{21} + t_{21}^2)) \right], \tag{A.22}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_q^{(4)} &= \frac{1}{16t_2^3} \left[t_{11}^4 - 4t_{11}^3t_{22} + t_{11}^2(6t_{22}^2 - 3t_{12}^2 - 10t_{12}t_{21} - 3t_{21}^2) \right. \\
&\quad \left. + 2t_{11}t_{22}(-2t_{22}^2 + t_{12}^2 + 14t_{12}t_{21} + t_{21}^2) + t_{22}^4 \right. \\
&\quad \left. - t_{22}^2(3t_{12}^2 + 10t_{12}t_{21} + 3t_{21}^2) + 4t_{12}t_{21}(t_{12} - t_{21})^2 \right], \tag{A.23}
\end{aligned}$$

wobei die Formeln für die Korrekturen $E_{d1}^{(4)}(U)$ und $E_{d2}^{(4)}(U)$ bereits in der vierten Ordnung zu lang sind, um hier angegeben werden zu können. Die Formeln für die Grundzustandskorrekturen, Gleichungen (A.22) und (A.23), sind in Abbildung 2.8 als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für drei spezifische Konfigurationen der Parameter dargestellt.

A.3.3 $n = 4$ Elektronen auf der Leiter mit 4 Elektronenfallen

Für die Leiter mit $\mathcal{N} = 4$ Zellen und offenen Randbedingungen ($\mathcal{N}\mathcal{N} = 8$) sind die Korrekturen der Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -4t_2$ gegeben durch:

$$\begin{aligned}
E_Q^{(2)} &= -\frac{3((t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2)}{4t_2}, \\
E_{t_1}^{(2)}(U) &= \frac{1}{4(\sqrt{2} - 2)t_2U(2t_2 + U)} \left[2t_2U \left((21 - 13\sqrt{2})t_{11}^2 \right. \right. \\
&\quad + 2t_{11} \left((9 - 7\sqrt{2})t_{22} + 5(2\sqrt{2} - 3)(t_{12} + t_{21}) \right) \\
&\quad \left. \left(21 - 13\sqrt{2} \right) t_{22}^2 + 10(2\sqrt{2} - 3)t_{22}(t_{12} + t_{21}) + (21 - 13\sqrt{2})t_{12}^2 \right. \\
&\quad \left. + 2(9 - 7\sqrt{2})t_{12}t_{21} + (21 - 13\sqrt{2})t_{21}^2 \right] \\
&\quad - \frac{1}{4(\sqrt{2} - 2)t_2U(2t_2 + U)} \left[U^2 \left(3(\sqrt{2} - 2)t_{11}^2 \right. \right. \\
&\quad + 2t_{11} \left(\sqrt{2}t_{22} + (3 - 2\sqrt{2})(t_{12} + t_{21}) \right) + 3(\sqrt{2} - 2)t_{22}^2 \\
&\quad + (6 - 4\sqrt{2})t_{22}(t_{12} + t_{21}) + 3(\sqrt{2} - 2)t_{12}^2 + 2\sqrt{2}t_{12}t_{21} + 3(\sqrt{2} - 2)t_{21}^2 \left. \right] \\
&\quad - \frac{16(2\sqrt{2} - 3)t_2^2(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{4(\sqrt{2} - 2)t_2U(2t_2 + U)}, \tag{A.24} \\
E_{t_2}^{(2)}(U) &= \frac{1}{4} \left(\frac{-3t_{11}^2 + 2t_{11}(t_{22} + t_{12} + t_{21}) - 3t_{22}^2 + 2t_{22}(t_{12} + t_{21}) - 3t_{12}^2 + 2t_{12}t_{21} - 3t_{21}^2}{t_2} \right. \\
&\quad \left. - \frac{2((t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2)}{2t_2 + U} - \frac{8(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{U} \right), \\
E_{t_3}^{(2)}(U) &= -\frac{1}{4(2 + \sqrt{2})t_2U(2t_2 + U)} \left[2t_2U \left((21 + 13\sqrt{2})t_{11}^2 \right. \right. \\
&\quad + 2t_{11} \left((9 + 7\sqrt{2})t_{22} - 5(3 + 2\sqrt{2})(t_{12} + t_{21}) \right) \\
&\quad + (21 + 13\sqrt{2})t_{22}^2 - 10(3 + 2\sqrt{2})t_{22}(t_{12} + t_{21}) \\
&\quad \left. + 2(9 + 7\sqrt{2})t_{12}t_{21} + (21 + 13\sqrt{2})t_{21}^2 \right] \\
&\quad - \frac{1}{4(2 + \sqrt{2})t_2U(2t_2 + U)} \left[U^2 \left(3(2 + \sqrt{2})t_{11}^2 \right. \right. \\
&\quad + 2t_{11} \left(\sqrt{2}t_{22} - (3 + 2\sqrt{2})(t_{12} + t_{21}) \right) + 3(2 + \sqrt{2})t_{22}^2 \\
&\quad - 2(3 + 2\sqrt{2})t_{22}(t_{12} + t_{21}) + 3(2 + \sqrt{2})t_{12}^2 + 2\sqrt{2}t_{12}t_{21} + 3(2 + \sqrt{2})t_{21}^2 \left. \right] \\
&\quad - \frac{16(3 + 2\sqrt{2})t_2^2(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{4(2 + \sqrt{2})t_2U(2t_2 + U)},
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_{s_1}^{(2)}(U) &= \frac{1}{4} \left(-\frac{3t_{11}^2 + t_{11}((\sqrt{3}-3)(t_{12}+t_{21})-2\sqrt{3}t_{22})}{t_2} \right. \\
&\quad + \frac{3t_{22}^2 + (\sqrt{3}-3)t_{22}(t_{12}+t_{21}) + 3t_{12}^2 - 2\sqrt{3}t_{12}t_{21} + 3t_{21}^2}{t_2} \\
&\quad \left. + \frac{(\sqrt{3}-3)((t_{11}-t_{22})^2 + (t_{12}-t_{21})^2)}{2t_2+U} + \frac{4(\sqrt{3}-3)(t_{11}+t_{22}-t_{12}-t_{21})^2}{U} \right), \\
E_{s_2}^{(2)}(U) &= \frac{1}{4} \left(\frac{-3t_{11}^2 + t_{11}((3+\sqrt{3})(t_{12}+t_{21})-2\sqrt{3}t_{22}) - 3t_{22}^2}{t_2} \right. \\
&\quad + \frac{(3+\sqrt{3})t_{22}(t_{12}+t_{21}) - 3t_{12}^2 - 2\sqrt{3}t_{12}t_{21} - 3t_{21}^2 - 3t_{22}^2}{t_2} \\
&\quad \left. - \frac{(3+\sqrt{3})((t_{11}-t_{22})^2 + (t_{12}-t_{21})^2)}{2t_2+U} - \frac{4(3+\sqrt{3})(t_{11}+t_{22}-t_{12}-t_{21})^2}{U} \right), \tag{A.25}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_Q^{(4)} &= \frac{1}{64t_2^3} [7t_{11}^4 - 28t_{11}^3t_{22} + t_{11}^2(42t_{22}^2 - 22t_{12}^2 - 68t_{12}t_{21} - 22t_{21}^2) \\
&\quad + 28t_{11}t_{22}(-t_{22}^2 + t_{12}^2 + 6t_{12}t_{21} + t_{21}^2) \\
&\quad + 7t_{22}^4 - 2t_{22}^2(11t_{12}^2 + 34t_{12}t_{21} + 11t_{21}^2) - (t_{12}-t_{21})^2(t_{12}^2 + 30t_{12}t_{21} + t_{21}^2)], \tag{A.26}
\end{aligned}$$

wobei die Formeln für $E_{t_1}^{(4)}(U)$, $E_{t_2}^{(4)}(U)$, $E_{t_3}^{(4)}(U)$, $E_{s_1}^{(4)}(U)$ und $E_{s_2}^{(4)}(U)$ zu lang sind, um sie hier darzustellen. Die Formeln für die Grundzustandskorrekturen, Gleichungen (A.24), (A.25) und (A.26) sind in Abbildung A.1 als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für drei spezifische Konfigurationen der Parameter dargestellt.

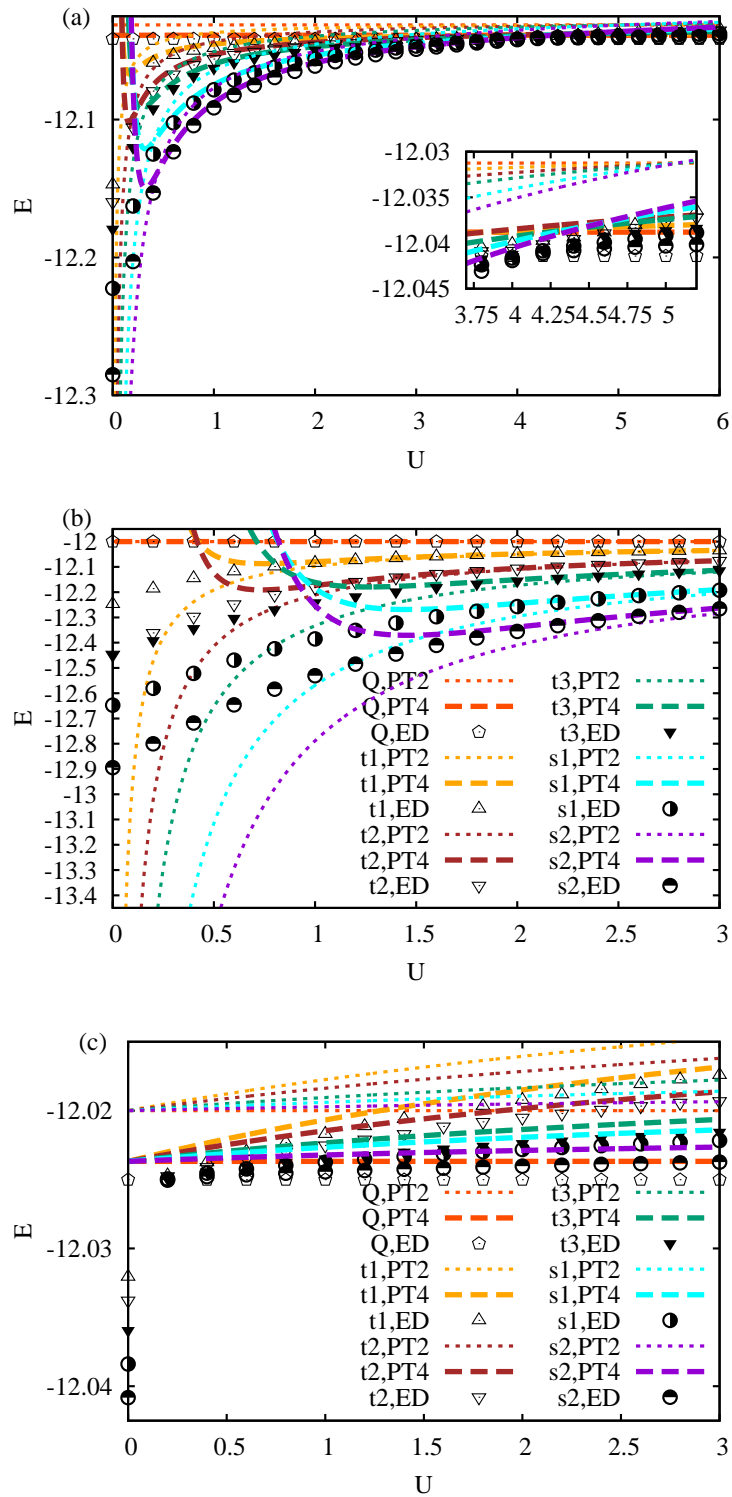


Abbildung A.1.: Grundzustandsenergien (bis zur vierten Ordnung PT im Vergleich mit ED) als Funktion der Coulomb-Wechselwirkung U für $n = 4$ Elektronen auf der Leiter mit offenen Randbedingungen mit $\mathcal{N} = 4$ Zellen. (a) $t_2 = 3$, $t_{11} = 0.85$, $t_{12} = 0.95$, $t_{21} = 1$, $t_{22} = 1.2$ (generelle Abweichung). (b) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{22} = 1.1$, $t_{12} = t_{21} = 0.9$ (symmetrische Abweichung). (c) $t_2 = 3$, $t_{11} = t_{21} = 1.1$, $t_{12} = t_{22} = 0.9$ (semi-symmetrische Abweichung).

A.4 Resultate der PT für das frustrierte Bilayer-Gitter

A.4.1 $n = 5$ Elektronen auf dem Bilayer-Gitter mit 5 Elektronenfallen

Für das Bilayer-Gitter (mit Stern-Geometrie) mit $\mathcal{N} = 5$ Zellen und offenen Randbedingungen ($\mathcal{N}\mathcal{N} = 10$) sind die Korrekturen der Grundzustandsenergien $E^{(0)} = -5t_2$ gegeben durch:

$$\begin{aligned}
E_S^{(2)} &= -\frac{(t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2}{t_2}, \\
E_{q1}^{(2)}(U) &= E_{q2}^{(2)}(U) = E_{q3}^{(2)}(U) \\
&= \frac{1}{16} \left(\frac{-16t_{11}^2 + t_{11}(14t_{22} + 9(t_{12} + t_{21})) - 16t_{22}^2 + 9t_{22}(t_{12} + t_{21}) - 2(8t_{12}^2 - 7t_{12}t_{21} + 8t_{21}^2)}{t_2} \right. \\
&\quad \left. - \frac{9((t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2)}{2t_2 + U} - \frac{36(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{U} \right), \\
E_{q4}^{(2)}(U) &= \frac{1}{16} \left(\frac{-16t_{11}^2 + t_{11}(22t_{22} + 5(t_{12} + t_{21})) - 16t_{22}^2 + 5t_{22}(t_{12} + t_{21}) - 2(8t_{12}^2 - 11t_{12}t_{21} + 8t_{21}^2)}{t_2} \right. \\
&\quad \left. - \frac{5((t_{11} - t_{22})^2 + (t_{12} - t_{21})^2)}{2t_2 + U} - \frac{20(t_{11} + t_{22} - t_{12} - t_{21})^2}{U} \right), \tag{A.27}
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
E_S^{(4)} &= \frac{1}{4t_2^3} [t_{11}^4 - 4t_{11}^3 t_{22} + 2t_{11}^2 (3t_{22}^2 - t_{12}^2 - 6t_{12}t_{21} - t_{21}^2) - 4t_{11}t_{22} (t_{22}^2 + 3t_{12}^2 - 14t_{12}t_{21} + 3t_{21}^2) \\
&\quad + t_{22}^4 - 2t_{22}^2 (t_{12}^2 + 6t_{12}t_{21} + t_{21}^2) + (t_{12} - t_{21})^4], \tag{A.28}
\end{aligned}$$

wobei die Formeln für $E_{q1}^{(4)}(U)$, $E_{q2}^{(4)}(U)$, $E_{q3}^{(4)}(U)$ und $E_{q4}^{(4)}(U)$ zu lang sind, um sie hier darzustellen.

Anhang

RANDOM-PHASE- APPROXIMATION



Die ursprünglich von D. Bohm und D. Pines vorgeschlagene Methode wurde anfänglich nicht zur Beschreibung von Heisenberg-Systemen genutzt [6, 195–197]. Tyablikov übertrug die quasiverallgemeinerte Molekularfeldnäherung im Rahmen der Greensfunktionstheorie zunächst auf den $S = 1/2$ -FM [198]. R. Tahir-Kheli und D. ter Haar erweiterten die Methodik, um sie zunächst auf Spinsysteme mit beliebigem Spin $S \geq 1/2$ anwendbar zu machen [64, 199]. A. C. Hewson und D. ter Haar betrachteten schließlich einen einfachen bipartiten AFM und zerlegten diesen in seine (beiden) Untergitter, um die RPA darauf anzuwenden [200]. Wie bereits in Kapitel 3.2 erwähnt, wird die RPA genutzt, um in erster Ordnung der Bewegungsgleichung (siehe Gleichung 3.13) ein geschlossenes Gleichungssystem zu erhalten. Nachfolgend sollen die wesentlichen Resultate aus [200] kurz zusammengefasst werden. Dies wird vor allem deswegen gemacht, um die Verbesserung der physikalischen Resultate, die durch die RGM gewonnen werden, zu verdeutlichen. Benötigt wird die Kenntnis über eine Schar von Greensfunktionen im Ortsraum $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{g}}^+ \hat{S}_{\mathbf{l}}^z; f_m(\hat{S}_{\mathbf{g}'}^-) \rangle\rangle_{\mathbf{g} \neq \mathbf{l}}$, wobei $f_m(\hat{S}_{\mathbf{g}'}^-) \equiv (\hat{S}_{\mathbf{g}'}^z)^m \hat{S}_{\mathbf{g}'}^-$ und mit \mathbf{g} und \mathbf{l} die disjunkten Untergitter bezeichnet werden. Mit dem Entkopplungsschema $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{g}}^+ \hat{S}_{\mathbf{l}}^z; f_m(\hat{S}_{\mathbf{g}'}^-) \rangle\rangle_{\mathbf{g} \neq \mathbf{l}} \rightarrow \langle \hat{S}_{\mathbf{l}}^z \rangle \langle\langle \hat{S}_{\mathbf{g}}^+; f_m(\hat{S}_{\mathbf{g}'}^-) \rangle\rangle$ wird der Ordnungsparameter $\langle S_{\pm} \rangle$ als der Mittelwert des Anteils in z -Richtung $\langle \hat{S}_{\mathbf{a}}^z \rangle$ der Untergitter $\mathbf{a} = \{\mathbf{l}, \mathbf{g}\}$ eingeführt. Zur Überführung in ein geschlossenes Gleichungssystem muss dennoch für die verbleibenden Greensfunktionen $\langle\langle \hat{S}_{\mathbf{g}}^+; f_m(\hat{S}_{\mathbf{g}'}^-) \rangle\rangle$ die Bewegungsgleichungen aufgestellt und die Translationsinvarianz des Hamiltonians genutzt werden. Mit der Operatoridentität $\prod_{r=-S}^S (\hat{S}^z - r) = 0$, die an jedem Gitterplatz gültig ist, kann ein geschlossenes System von $2S$ Gleichungen aufgestellt werden, dessen Lösung analytisch zu einer Untergitter-Magnetisierung von

$$\langle S_{\pm} \rangle = \frac{(S - \Psi_{\pm})(1 + \Psi_{\pm})^{2S+1} + (S + 1 + \Psi_{\pm})\Psi_{\pm}^{2S+1}}{(1 + \Psi_{\pm})^{2S+1} - \Psi_{\pm}^{2S+1}}, \quad (\text{B.1})$$

führt [200], die selbstkonsistent bestimmt werden muss. Hier bezeichnet Ψ_{\pm} einen Ausdruck, der im Wesentlichen von den Parametern des Hamiltonians und $\langle S_{\pm} \rangle$ abhängt.¹ Am Phasenübergangspunkt verschwindender Untergitter-Magnetisierung ergibt sich die kritische (Néel)-Temperatur T_N zu

$$T_N = \frac{2JzS(S+1)}{3} \left[\frac{1}{\mathcal{N}} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{1-\gamma_{\mathbf{q}}} \right]^{-1}, \quad (\text{B.2})$$

mit z als Zahl der nächsten Nachbarn und $\gamma_{\mathbf{q}} = \frac{1}{2} \sum_{\langle \mathbf{l}, \mathbf{g} \rangle} e^{i(\mathbf{q}\mathbf{g}-\mathbf{l})}$. Dies ist aber gerade dasselbe Resultat, das man im Falle rein ferromagnetischer Wechselwirkungen erwarten würde und man sieht innerhalb der RPA: $T_C \equiv T_N$. Die RGM hingegen unterscheidet beide Fälle im Allgemeinen und es zeigt sich, in Übereinstimmung mit anderen Methoden, dass oftmals bei reinen AFM beziehungsweise FM die Erwartung $T_N \neq T_C$ erfüllt wird, siehe hierzu auch Kapitel 3.6.

¹Für die vollständige Darstellung der Größen sei auf [200] verwiesen.

Anhang
C

STRUKTURFAKTOR AUS DER HTE

Dieses Kapitel soll erläutern, wie das *bash*-Skript „*strucfacQ_order.sh*“ bedient wird, um die Koeffizienten des Strukturfaktors aus der HTE zu berechnen. In der aktuellen Fassung wird neben dem Strukturfaktor in tensorieller und skalarer Form ebenso die Korrelationslänge nach Kapitel 3.1 ausgegeben. Zudem werden neben der reinen Koeffizientenreihe auch die möglichen Padé-Approximanten erzeugt. Wie die Ergebnisse genutzt werden können, wird nachfolgend erklärt. Grundlegend für die Anwendung ist neben der Bereitstellung einer strukturierten Datei mit den Informationen über die Kopplungen des Systems, wie es auch in [69, 71] benötigt wird, die Information über die Koordinaten der Gitterpunkte. Für ein kleines System ist dies zum Beispiel in Abbildung C.1 gezeigt. Von Bedeutung ist der *string* „*NN=Number_of_sites*“, dessen Position genutzt wird, damit das Skript automatisch eine für das HTE-Programm zur Berechnung einzelner Korrelationsfunktionen kompatible Definitionsdatei erzeugt.

```

11 #+++model+++
12 # NN=Number_of_sites Nw=Number_of_bonds Nv=Number_of_sites_in_unit_cell
13 4 4 2
14 # NP
15 0
16 1
17 # s X Y Z N_uc(s=siteindex (X Y Z)=position) N_uc=number in unit cell
18 0 0.000 0.000 0.000 1
19 1 1.000 0.000 0.000 2
20 2 1.000 1.000 0.000 1
21 3 0.000 1.000 0.000 2
22 # Bond s1 s2 p_J
23 0 0 1 j1
24 1 0 2 j1
25 2 2 3 j2
26 3 3 0 j3
27 #---model---
```

Abbildung C.1.: Beispiel eines Auszugs der Definitionsdatei für das Skript *strucfacQ_order.sh* zur Berechnung des Strukturfaktors aus der HTE eines fiktiven Modells.

Der einzige Unterschied zu der in [69, 71] benötigten Datei besteht in dem Block „# s X Y Z N_uc“, bei dem nachfolgend die globale Nummer der Spins, deren Koordinaten und der Index innerhalb der Elementarzelle ($\alpha = 1, 2, \dots, N$) aufgeführt sind. Das Skript *strucfacQ_order.sh*, die Datei *pade_all* und die Definitionsdatei müssen sich im Verzeichnis des HTE-Programms zur Berechnung einzelner Korrelationsfunktionen befinden und kann beispielsweise durch folgenden Aufruf gestartet werden: „*bash strucfacQ_order.sh toymodel.def toymodel_spin05_9 0.5 2 9*“. Dabei sind die nachfolgenden Kommandozeilenparameter wie folgt zu verstehen: Name der Definitionsdatei, Name für die Ausgabe/Funktionen, Spin, Zahl der Spins je Elementarzelle (Konsistenzprüfung) und die gewünschte Ordnung der HTE.

Es ist möglich, eine bereits begonnene Rechnung wiederaufzunehmen, wobei sich hierfür der Aufruf des Skripts vom vorherigen Start nicht unterscheiden darf und sich die während der Laufzeit erzeugten Dateien im Ausführungsverzeichnis befinden müssen. Besteht die Notwendigkeit die Rechnung zu unterbrechen, so sollte dies über das Kommando „*sh kill_script*“ im gleichen Verzeichnis erfolgen (in kritischen Speicherphasen ist das Beenden nicht möglich, sodass es mit einer geringen Wahrscheinlichkeit notwendig ist, den Vorgang zu wiederholen).

Ist die Berechnung abgeschlossen, so befinden sich je Aufruf sieben Dateien im Verzeichnis. Dabei ist die Bezeichnung wie folgt zu verstehen. In der Datei ohne Zusatz beim Dateinamen sind die Elemente des tensoriellen Strukturfaktors, siehe Abbildung C.2, gespeichert. Befindet sich der Zusatz *scalar* beziehungsweise *powder_average* am Ende des Dateinamens, so sind hierin der skalare Strukturfaktor beziehungsweise der sphärisch gemittelte Strukturfaktor, siehe hierzu Kapitel 3.1, enthalten. Dabei haben die Koeffizienten eine mit *Mathematica* kompatible Form.

```

9 # s0[1,1] : 0.375
10 # s1[1,1] : (+(+0+(-3/16*J1)*Cos[qx*1.000000+qy*1.000000+qz*0])/1.
11 # s2[1,1] : (+(+0+(-3/64*J1^2+3/64*J2*J3)*Cos[qx*1.000000+qy*1.000000+qz*0])/1.
12 # s3[1,1] : (+(+0+(+3/256*J1^3+1/128*J1*J2^2+1/128*J1*J2*J3+1/256*J2^2*J3+1/128*J1*J3^2+1/256*J2*J3^2)*Cos
13 # s4[1,1] : (+(+0+(+5/512*J1^4+3/1024*J1^2*J2^2+1/512*J1*J2^3-11/1024*J1^2*J2*J3+3/1024*J1^2*J3^2-3/1024*J1
14 # s5[1,1] : (+(+0+(+1/2560*J1^5-1/1024*J1^3*J2^2+13/20480*J1^2*J2^3-3/640*J1^3*J2*J3-3/10240*J1*J2^4-1/1024
15 # s6[1,1] : (+(+0+(-119/81920*J1^6-217/245760*J1^4*J2^2-17/61440*J1^3*J2^3+99/81920*J1^4*J2*J3-11/81920*J1
16 # s7[1,1] : (+(+0+(-2629/6881280*J1^7-17/1146880*J1^5*J2^2-203/983040*J1^4*J2^3+2249/1720320*J1^5*J2*J3+41,
17 # s8[1,1] : (+(+0+(+401/2752512*J1^8+955/5505024*J1^6*J2^2+89/13762560*J1^5*J2^3+293/3932160*J1^6*J2*J3+15
18 # s9[1,1] : (+(+0+(+5081/55050240*J1^9+14617/330301440*J1^7*J2^2+1013/23592960*J1^6*J2^3-120367/495452160*J1
19 #
20 #
21 # s0[1,2] : 0
22 # s1[1,2] : (+(+0+(-3/16*J1)*Cos[qx*1.000000+qy*0+qz*0]+(-3/16*J3)*Cos[qx*0+qy*1.000000+qz*0])/1.
23 # s2[1,2] : (+(+0+(-3/64*J1^2)*Cos[qx*1.000000+qy*0+qz*0]+(+3/64*J1*J2-3/64*J3^2)*Cos[qx*0+qy*1.000000+qz*(
24 # s3[1,2] : (+(+0+(+3/256*J1^3+1/128*J1*J3^2)*Cos[qx*1.000000+qy*0+qz*0]+(+1/256*J1^2*J2+1/256*J1*J2^2+1/6
25 # s4[1,2] : (+(+0+(+5/512*J1^4-1/256*J1^2*J2*J3+3/1024*J1^2*J3^2+1/512*J1*J3^3)*Cos[qx*1.000000+qy*0+qz*0]
26 # s5[1,2] : (+(+0+(+1/2560*J1^5-1/2560*J1^3*J2^2-1/512*J1^3*J2*J3-1/5120*J1^2*J2^2*J3-1/640*J1^3*J3^2-1/20
27 # s6[1,2] : (+(+0+(-119/81920*J1^6-17/61440*J1^4*J2^2-1/10240*J1^3*J2^3+173/245760*J1^4*J2*J3-1/15360*J1^3
28 # s7[1,2] : (+(+0+(-2629/6881280*J1^7+29/1146880*J1^5*J2^2-37/573440*J1^4*J2^3+2633/3440640*J1^5*J2*J3+13/1
29 # s8[1,2] : (+(+0+(+401/2752512*J1^8+593/6881280*J1^6*J2^2+31/3440640*J1^5*J2^3+71/1966080*J1^6*J2*J3+27/2
30 # s9[1,2] : (+(+0+(+5081/55050240*J1^9+18637/990904320*J1^7*J2^2+595/28311552*J1^6*J2^3-82121/495452160*J1

```

Abbildung C.2.: Auszug aus der durch das Skript *strucfacQ_order.sh* erzeugten Datei *toymodel_spin05_9* mit dem Inhalt des tensoriellen Strukturfaktors aus der HTE eines fiktiven Modells.

Eine mit *gnuplot* kompatible Form wird mit der jeweiligen Endung der Dateien signalisiert, wobei die Dateien einfach über das Kommando „*load toymodel_spin05_12_scalar_gnuplot*“, beziehungsweise „*load toymodel_spin05_12_powder_average_gnuplot*“, geladen werden können. Der skalare (sphärisch gemittelte) Strukturfaktor kann dann durch die Eingabe von $S_toymodel_spin05_9_2spin_1_powder_average(J1, J2, J3, J4, T, qx, qy, qz)$ ($S_toymodel_spin05_9_2spin_1_scalar(J1, J2, J3, J4, T, qx, qy, qz)$) aufgerufen werden. Hierbei leitet sich der mittlere Teil „*2spin_1*“ des automatisch generierten Funktionsnamens vom Spin $S = m/n$ (*nspin_m*) ab. Die Funktionen bieten die Möglichkeit, vier verschiedene Kopplungen „*J1, J2, J3, J4*“, wobei weitere Kopplungen durch einfache Manipulation der Argumentliste hinzugefügt werden können, die Temperatur „*T*“ und die Komponenten des Vektors $\mathbf{q} = (q_x, q_y, q_z)$ zu berücksichtigen. Aus dem skalaren Strukturfaktor leitet sich noch eine entsprechende Funktion für die Korrelationslänge „*correlQ(SpQ, SQ, SmQ, dQ)*“ ab, wobei die Argumente mit $\xi_{\mathbf{Q}}(Sp_{\mathbf{Q}}, S_{\mathbf{Q}}, Sm_{\mathbf{Q}}, \delta\mathbf{Q}) = \sqrt{-(Sp_{\mathbf{Q}} - 2S_{\mathbf{Q}} + Sm_{\mathbf{Q}})/(2S_{\mathbf{Q}}(\delta\mathbf{Q})^2)}$, $Sp_{\mathbf{Q}} \equiv S_{\mathbf{Q}+\delta\mathbf{Q}}$ und $Sm_{\mathbf{Q}} \equiv S_{\mathbf{Q}-\delta\mathbf{Q}}$ erklärt sind. Die wichtigsten Padé-Approximanten ($[N/2-1, N/2+1]$, $[N/2, N/2]$ und $[N/2+1, N/2-1]$ bei $N \bmod 2 = 0$, beziehungsweise $[(N+1)/2, (N-1)/2]$ und $[(N-1)/2, (N+1)/2]$ bei $N \bmod 2 = 1$) werden durch den Aufruf von beispielsweise „*load toymodel_spin05_12_powder_average_gnuplot_pade*“ geladen und können dann durch die Funktion „*Pade_m_n_toymodel_spin05_12_2spin_1_scalar(...)*“ verwendet werden (gleiches gilt für den sphärisch gemittelten Strukturfaktor). Vor allem bei mehrdimensionalen Darstellungen sollte darauf geachtet werden, dass die Anwendung der Approximanten ein Vielfaches der Rechenzeit beanspruchen kann.

EXAKTE LÖSUNG DER VERTEXPARAMETER IM GS DES FM AUF DEM PYROCHLOR-GITTER



Die angegebenen Lösungen für die Vertexparameter aus Kapitel 3.2.3 im Grundzustand des reinen FM lassen sich auf ganz natürliche Weise aus dem Gleichungssystem gewinnen. Für Kapitel 3.7.1 ist die Gültigkeit der Beziehungen von besonderer Bedeutung, weswegen diese im folgenden Abschnitt analytisch bewiesen werden soll. Für die konkrete Berechnung ist bei $T = 0$ offensichtlich $c_{ij \neq i} = \frac{2}{3}S^2 = C_0$ aus physikalischen Gründen zu folgern. Mit der Summenregel aus Gleichung (3.32) ergibt sich allgemein

$$\begin{aligned}
 \frac{2}{3}S(S+1) &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q} \neq 0} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T=0) + \frac{2}{3}S^2 \\
 \Leftrightarrow \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q} \neq 0} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T=0) &= \frac{2}{3}S \\
 \sum_{\mathbf{q} \neq 0} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T=0) &= \sum_{\gamma, \mathbf{q} \neq 0} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}} \langle \alpha | \gamma\mathbf{q} \rangle \langle \gamma\mathbf{q} | \alpha \rangle \\
 \sum_{\mathbf{q} \neq 0} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T=0) &= \frac{1}{N} \sum_{\alpha, \mathbf{q} \neq 0} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T=0) \\
 &= \frac{1}{N} \sum_{\gamma, \mathbf{q} \neq 0} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}} \langle \gamma\mathbf{q} | \underbrace{\sum_{\alpha} |\alpha\rangle \langle \alpha|}_{\mathbb{I}} | \gamma\mathbf{q} \rangle \\
 &= \frac{1}{N} \sum_{\gamma, \mathbf{q} \neq 0} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}}
 \end{aligned}$$

Im Spezialfall des Pyrochlor-Gitters ($N = 4$)

$$\sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T = 0) = \frac{1}{4} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} \left(\frac{m_{1\mathbf{q}}}{2\omega_{1\mathbf{q}}} + \frac{m_{2\mathbf{q}}}{2\omega_{2\mathbf{q}}} + \frac{m_{3\mathbf{q}}}{2\omega_{3\mathbf{q}}} + \frac{m_{4\mathbf{q}}}{2\omega_{4\mathbf{q}}} \right)$$

werden die konkreten Eigenwerte von Frequenz- und Momentenmatrix benötigt. Durch das Gleichsetzen der Vertexparameter ($\alpha_{ij} = \alpha$, $\lambda_{ij} = \lambda$) erhält man nun mit den Gleichungen (3.140) und (3.141)

$$\begin{aligned} \sum_{\gamma} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}} &= \frac{1}{4\sqrt{3}} \underbrace{\left(\frac{32S^2}{\sqrt{S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1)}} \right)}_{\frac{m_{1\mathbf{q}}}{2\omega_{1\mathbf{q}}} + \frac{m_{2\mathbf{q}}}{2\omega_{2\mathbf{q}}}} \\ &+ \frac{1}{4\sqrt{3}} \underbrace{\left(\frac{8(2 + D_{\mathbf{q}})S^2}{\sqrt{S(S(2\alpha(D_{\mathbf{q}}^2 - 1) + D_{\mathbf{q}}(6\alpha + \lambda + 1)) + 2S(3\alpha + \lambda + 1) + D_{\mathbf{q}} + 2)}} \right)}_{\frac{m_{3\mathbf{q}}}{2\omega_{3\mathbf{q}}}} \\ &+ \frac{1}{4\sqrt{3}} \underbrace{\left(\frac{8(2 - D_{\mathbf{q}})S^2}{\sqrt{S(2\alpha(D_{\mathbf{q}}^2 - 1)S - D_{\mathbf{q}}(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1) + 6\alpha S + 2\lambda S + 2S + 2)}} \right)}_{\frac{m_{4\mathbf{q}}}{2\omega_{4\mathbf{q}}}}, \end{aligned}$$

wobei $D_{\mathbf{q}}$ entsprechend der Gleichung (3.139) ist. Für den FM ist zu fordern, dass es keine Abhängigkeit der Korrelationsfunktionen $c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}\alpha\alpha}$ im \mathbf{q} -Raum gibt. Somit lässt sich mit geringem Aufwand

$$\begin{aligned} \curvearrowright \frac{1}{\mathcal{N}\mathcal{N}} \sum_{\alpha, \mathbf{q} \neq \mathbf{0}} c_{\mathbf{q}\alpha\alpha}(T = 0) &= \frac{2}{3}S \\ &= \frac{c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}\alpha\alpha}(T = 0)}{\mathcal{N}\mathcal{N}} \sum_{\alpha, \mathbf{q} \neq \mathbf{0}} 1, \\ \curvearrowright c_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}\alpha\alpha}(T = 0) &= \frac{2}{3}S, \end{aligned}$$

zeigen. Dies bedeutet aber in der Umkehrung, dass sich die Unabhängigkeit von \mathbf{q} auf $\frac{m_{3\mathbf{q}}}{2\omega_{3\mathbf{q}}}$ und $\frac{m_{4\mathbf{q}}}{2\omega_{4\mathbf{q}}}$ übertragen lässt ($\frac{m_{1\mathbf{q}}}{2\omega_{1\mathbf{q}}} + \frac{m_{2\mathbf{q}}}{2\omega_{2\mathbf{q}}}$ sind bereits bezüglich \mathbf{q} konstant). Die Forderung der Unabhängigkeit des Ausdrucks $\frac{m_{3\mathbf{q}}}{\omega_{3\mathbf{q}}}$ von \mathbf{q} lässt es zu, eine Abhängigkeit von $\omega_{3\mathbf{q}}$ in der Form

$$\begin{aligned} \omega_{3\mathbf{q}}^2 &= \underbrace{\text{const.}}_A (2 + D_{\mathbf{q}})^2 \\ &= S (S (2\alpha (D_{\mathbf{q}}^2 - 1) + D_{\mathbf{q}}(6\alpha + \lambda + 1)) + 2S(3\alpha + \lambda + 1) + D_{\mathbf{q}} + 2), \end{aligned}$$

zu unterstellen. Vergleicht man nun termweise in $D_{\mathbf{q}}^n$ ($n = 0, 1, 2$), so stellt man fest, dass sich die gewünschte Forderung durch das Erfüllen des Gleichungssystems

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{q}}^2 : \quad & A = 2S^2\alpha, \\ D_{\mathbf{q}} : \quad & 4A = S^2(6\alpha + \lambda + 1) + S, \\ \text{const.} : \quad & 4A = -2S^2\alpha + 2S^2(3\alpha + \lambda + 1) + 2S \\ & = S^2(2\alpha + \lambda + 1) + 2S, \end{aligned}$$

umsetzen lässt. Durch die beiden ersten Gleichungen erhält man

$$\begin{aligned} 8S^2\alpha &= S^2(6\alpha + \lambda + 1) + S, \\ \curvearrowright \lambda &= -\left(1 + \frac{1}{S}\right) + 2\alpha. \end{aligned} \tag{D.1}$$

Das gleiche Resultat erhält man jedoch auch, wenn man die erste Gleichung mit der letzten Gleichung kombiniert. Auf den ersten Blick nicht offensichtlich erscheinend, entspricht dies aber gerade der Kondensatbedingung Gleichung (3.144) bei $T = 0$:

$$\begin{aligned} \frac{\Delta}{J} &= 2S(S + 1) + 3\tilde{\lambda}_{100} - 15\tilde{\alpha}_{100} + 6\tilde{\alpha}_{110} + 3\tilde{\alpha}_{200}. \\ \curvearrowright \frac{\Delta}{J} &= 2S(S + 1) + 2S^2\lambda - 4S^2\alpha \\ &= 0, \\ \curvearrowright \lambda &= -\left(1 + \frac{1}{S}\right) + 2\alpha. \end{aligned}$$

Zu dem gleichen Ergebnis kommt man analog durch Fordern der Unabhängigkeit des Ausdrucks $\frac{m_{4\mathbf{q}}}{\omega_{4\mathbf{q}}}$ von \mathbf{q} :

$$\begin{aligned} \omega_{4\mathbf{q}}^2 &= \underbrace{\text{const.}}_B (2 - D_{\mathbf{q}})^2 \\ &= S \left(2\alpha (D_{\mathbf{q}}^2 - 1) S - D_{\mathbf{q}}(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1) + 6\alpha S + 2\lambda S + 2S + 2 \right), \end{aligned}$$

mit

$$\begin{aligned} D_{\mathbf{q}}^2 : \quad & B = 2S^2\alpha, \\ & \dots \end{aligned}$$

Ebenso wird durch diese Vorgehensweise $\Delta = 0$ gefunden. Zusammengefasst wird aus der Summenregel schließlich

$$\begin{aligned}
 \sum_{\gamma} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}} &= \frac{1}{4\sqrt{3}} \left(\frac{32S^2}{\sqrt{S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1)}} \right) + \frac{8S^2}{4\sqrt{3}(\sqrt{2S^2\alpha})} \\
 &\quad + \frac{8S^2}{4\sqrt{3}(\sqrt{2S^2\alpha})} \\
 &= \frac{1}{\sqrt{3}} \left(\frac{8S^2}{\sqrt{S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1)}} \right) + \frac{4S}{\sqrt{3}(\sqrt{2\alpha})}, \\
 \leadsto \frac{1}{4} \sum_{\gamma} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}} &= \frac{2}{3}S \\
 &= \frac{1}{\sqrt{3}} \left(\frac{2S^2}{\sqrt{S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1)}} \right) + \frac{S}{\sqrt{3}(\sqrt{2\alpha})}, \\
 \leadsto \left(\frac{8}{3}\alpha - 1 \right) S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1) &= 8S^2\alpha + 4S\sqrt{2\alpha}\sqrt{S(S(6\alpha + \lambda + 1) + 1)}.
 \end{aligned}$$

Diese Gleichung lässt sich lösen und man erhält

$$\lambda = \frac{S(96\sqrt{6}\alpha^{3/2} - 384\alpha^3 + 416\alpha^2 + 66\alpha - 9) - (3 - 8\alpha)^2}{S(3 - 8\alpha)^2}.$$

Kombiniert man nun die oben erhaltene Kondensatregel $\lambda = -(1 + \frac{1}{S}) + 2\alpha$ mit der Gleichung, so führt dies zu zwei möglichen gültigen Lösungen

$$\begin{aligned}
 \tilde{\alpha} &= 0, \\
 \tilde{\lambda} &= -\left(\frac{1}{S} + 1\right),
 \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}
 \alpha &= \frac{3}{2}, \\
 \lambda &= 2 - \frac{1}{S}.
 \end{aligned}$$

Es lässt sich schnell feststellen, dass die erste Lösung unphysikalisch ist und der Vertexparameter $\tilde{\lambda}(S = 1/2) \neq 0$ für einen Spin von $S = 1/2$ nicht verschwindet. Dies ist aber, wie in Kapitel 3.2 gezeigt, gerade eine notwendige Bedingung. Somit verbleibt erwartungsgemäß nur die gesuchte Lösung $\alpha = 3/2$ und $\lambda = 2 - 1/S$. Zusammenfassend kann gesagt werden, dass die Kondensatregel $\Delta = 0$ andererseits sicherstellt, dass der im Allgemeinen von \mathbf{q} abhängige Term $\sum_{\gamma} \frac{m_{\gamma\mathbf{q}}}{2\omega_{\gamma\mathbf{q}}}$ seine \mathbf{q} -Abhängigkeit verliert und im Grundzustand die Konstante $\frac{2}{3}SN$ annimmt.

LITERATURVERZEICHNIS

- [1] N. Bohr. *Studier over Metallernes Elektrontheori*. PhD thesis, 1911.
- [2] H.-J. Van Leeuwen. Problèmes de la théorie électronique du magnétisme. *J. Phys. Radium*, **2**(12):361–377, 1921.
- [3] P. A. M. Dirac. The Quantum Theory of the Electron. *Proc. Royal Soc. A: Math. Phys.*, **117**(778):610–624, 1928.
- [4] J. Hubbard. Electron Correlations in Narrow Energy Bands. *P. Roy. Soc. A-Math. Phys.*, **276**(1365):238–257, 1963.
- [5] W. Heisenberg. Zur Theorie des Ferromagnetismus. *Z. Phys.*, **49**(9-10):619–636, 1928.
- [6] W. Gasser, E. Heiner, and K. Elk. *Greensche Funktionen in Festkörper- und Vielteilchenphysik*. Wiley-Blackwell, 2001.
- [7] M. Imada, A. Fujimori, and Y. Tokura. Metal-insulator transitions. *Rev. Mod. Phys.*, **70**(4):1039, 1998.
- [8] H. L. Stormer. Nobel Lecture: The fractional quantum Hall effect. *Rev. Mod. Phys.*, **71**(4):875, 1999.
- [9] Y. Nagaoka. Ferromagnetism in a Narrow, Almost Half-Filled s Band. *Phys. Rev.*, **147**(1):392, 1966.
- [10] W. Nolting and A. Ramakanth. *Quantum Theory of Magnetism*. Springer Science + Business Media, 2009.
- [11] O. Derzhko and J. Richter. Dispersion-driven ferromagnetism in a flat-band Hubbard system. *Phys. Rev. B*, **90**(4):045152, 2014.
- [12] A. Mielke. Ferromagnetism in the Hubbard model on line graphs and further considerations. *J. Phys. A: Math. Gen.*, **24**(14):3311, 1991.

- [13] A. Mielke. Exact results for the $u = \infty$ Hubbard model. *J. Phys. A: Math. Gen.*, **25**(24):6507, 1992.
- [14] A. Mielke. Exact ground states for the Hubbard model on the Kagome lattice. *J. Phys. A: Math. Gen.*, **25**(16):4335, 1992.
- [15] A. Mielke and H. Tasaki. Ferromagnetism in the Hubbard model. *Commun. Math. Phys.*, **158**(2):341–371, 1993.
- [16] A. Mielke. Ferromagnetism in the Hubbard model and Hund's rule. *Phys. Lett. A*, **174**(5-6):443–448, 1993.
- [17] A. Mielke. Properties of Hubbard models with degenerate localised single-particle eigenstates. *Eur. Phys. J. B*, **85**(6):184, 2012.
- [18] J. Schulenburg. spinpack: <http://www-e.uni-magdeburg.de/jschulen/spin/> (12.01.2019).
- [19] J. Richter and J. Schulenburg. The spin-1/2 J_1 - J_2 Heisenberg antiferromagnet on the square lattice: Exact diagonalization for $N=40$ spins. *Eur. Phys. J. B*, **73**(1):117–124, 2009.
- [20] D. J. Klein. Degenerate perturbation theory. *J. Chem. Phys.*, **61**(3):786, 1974.
- [21] P. Müller, J. Richter, and O. Derzhko. Hubbard models with nearly flat bands: Ground-state ferromagnetism driven by kinetic energy. *Phys. Rev. B*, **93**(14):144418, 2016.
- [22] J. Richter, R. Darradi, J. Schulenburg, D. J. J. Farnell, and H. Rosner. Frustrated spin-1/2 J_1 - J_2 heisenberg ferromagnet on the square lattice studied via exact diagonalization and coupled-cluster method. *Phys. Rev. B*, **81**(17):174429, 2010.
- [23] J. Jaklič and P. Prelovšek. Lanczos method for the calculation of finite-temperature quantities in correlated systems. *Phys. Rev. B*, **49**(7):5065, 1994.
- [24] J. Schnack and O. Wendland. Properties of highly frustrated magnetic molecules studied by the finite-temperature Lanczos method. *Eur. Phys. J. B*, **78**(4):535–541, 2010.
- [25] J. Schnack, J. Schulenburg, and J. Richter. Magnetism of the $N=42$ kagome lattice antiferromagnet. *Phys. Rev. B*, **98**(9):094423, 2018.
- [26] L. Pollet. Recent developments in quantum Monte Carlo simulations with applications for cold gases. *Rep. Prog. Phys.*, **75**(9):094501, 2012.

- [27] S. R. White. Density matrix formulation for quantum renormalization groups. *Phys. Rev. Lett.*, **69**(19):2863, 1992.
- [28] J. Jordan, R. Orús, G. Vidal, F. Verstraete, and J. I. Cirac. Classical Simulation of Infinite-Size Quantum Lattice Systems in Two Spatial Dimensions. *Phys. Rev. Lett.*, **101**(25):250602, 2008.
- [29] S. Depenbrock, I. P. McCulloch, and U. Schollwöck. Nature of the Spin-Liquid Ground State of the $S = 1/2$ Heisenberg Model on the Kagome Lattice. *Phys. Rev. Lett.*, **109**(6):067201, 2012.
- [30] <https://europeanspallationsource.se/technology>.
- [31] L. Van Hove. Time-Dependent Correlations between Spins and Neutron Scattering in Ferromagnetic Crystals. *Phys. Rev.*, **95**(6):1374, 1954.
- [32] L. Van Hove. Correlations in Space and Time and Born Approximation Scattering in Systems of Interacting Particles. *Phys. Rev.*, **95**(1):249, 1954.
- [33] I. A. Zaliznyak and J. M. Tranquada. *Neutron Scattering and Its Application to Strongly Correlated Systems*. Springer Berlin Heidelberg, 2014.
- [34] S. Okumura, H. Kawamura, T. Okubo, and Y. Motome. Novel Spin-Liquid States in the Frustrated Heisenberg Antiferromagnet on the Honeycomb Lattice. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **79**(11):114705, 2010.
- [35] J.-S. Caux, F. H. L. Essler, and U. Löw. Dynamical structure factor of the anisotropic Heisenberg chain in a transverse field. *Phys. Rev. B*, **68**(13):134431, 2003.
- [36] P. Li, H. Su, and S.-Q. Shen. Kagome antiferromagnet: A Schwinger-boson mean-field theory study. *Phys. Rev. B*, **76**(17):174406, 2007.
- [37] F. Kolley, S. Depenbrock, I. P. McCulloch, U. Schollwöck, and V. Alba. Phase diagram of the J_1 - J_2 Heisenberg model on the kagome lattice. *Phys. Rev. B*, **91**(10):104418, 2015.
- [38] T. Shimokawa, K. Watanabe, and H. Kawamura. Static and dynamical spin correlations of the $s=1/2$ random-bond antiferromagnetic Heisenberg model on the triangular and kagome lattices. *Phys. Rev. B*, **92**(13):134407, 2015.
- [39] M. Lohöfer, T. Coletta, D. G. Joshi, F. F. Assaad, M. Vojta, S. Wessel, and F. Mila. Dynamical structure factors and excitation modes of the bilayer Heisenberg model. *Phys. Rev. B*, **92**(24):245137, 2015.
- [40] J.-K. Kim and M. Troyer. Low Temperature Behavior and Crossovers of the Square Lattice Quantum Heisenberg Antiferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, **80**(12):2705, 1998.

- [41] B. B. Beard, R. J. Birgeneau, M. Greven, and U.-J. Wiese. Square-Lattice Heisenberg Antiferromagnet at Very Large Correlation Lengths. *Phys. Rev. Lett.*, **80**(8):1742, 1998.
- [42] A. V. Chubukov and O. A. Starykh. On the behaviour of a two-dimensional Heisenberg antiferromagnet at very low temperatures. *J. Phys. Condens. Matter*, **11**(16):L169, 1999.
- [43] M. F. Collins. High-Temperature Wavelength-Dependent Properties of a Heisenberg Paramagnet. *Phys. Rev. B*, **2**(11):4552, 1970.
- [44] J. Kondo and K. Yamaji. Green's-Function Formalism of the One-Dimensional Heisenberg Spin System. *Prog. Theor. Phys.*, **47**(3):807–818, 1972.
- [45] E. Rhodes and S. Scales. Second-Order Green's-Function Theory of the Infinite-Chain Heisenberg Ferromagnet. *Phys. Rev. B*, **8**(5):1994, 1973.
- [46] H. Shimahara and S. Takada. Green's Function Theory of the Two-Dimensional Heisenberg Model—Spin Wave in Short Range Order—. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **60**(7):2394–2405, 1991.
- [47] S. Winterfeldt and D. Ihle. Theory of antiferromagnetic short-range order in the two-dimensional Heisenberg model. *Phys. Rev. B*, **56**(9):5535, 1997.
- [48] F. Suzuki, N. Shimata, and C. Ishii. Thermodynamics of Low-Dimensional Heisenberg Ferromagnets by the Green's Function Method. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **63**(4):1539–1547, 1994.
- [49] B. H. Bernhard, B. Canals, and C. Lacroix. Green's function approach to the magnetic properties of the kagomé antiferromagnet. *Phys. Rev. B*, **66**(10):104424, 2002.
- [50] D. Schmalfuß, J. Richter, and D. Ihle. Absence of long-range order in a spin-half Heisenberg antiferromagnet on the stacked kagomé lattice. *Phys. Rev. B*, **70**(18):184412, 2004.
- [51] I. J. Junger, D. Ihle, and J. Richter. Thermodynamics of $S \geq 1$ ferromagnetic Heisenberg chains with uniaxial single-ion anisotropy. *Phys. Rev. B*, **72**(6):064454, 2005.
- [52] D. Schmalfuß, J. Richter, and D. Ihle. Green's function theory of quasi-two-dimensional spin-half Heisenberg ferromagnets: Stacked square versus stacked kagomé lattices. *Phys. Rev. B*, **72**(22):224405, 2005.

- [53] D. Schmalfuß, R. Darradi, J. Richter, J. Schulenburg, and D. Ihle. Quantum J_1 - J_2 Antiferromagnet on a Stacked Square Lattice: Influence of the Interlayer Coupling on the Ground-State Magnetic Ordering. *Phys. Rev. Lett.*, **97**(15):157201, 2006.
- [54] I. Juhász Junger, D. Ihle, and J. Richter. Thermodynamics of layered Heisenberg magnets with arbitrary spin. *Phys. Rev. B*, **80**(6):064425, 2009.
- [55] M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, and S.-L. Drechsler. Thermodynamics of a two-dimensional frustrated spin-1/2 Heisenberg ferromagnet. *Phys. Rev. B*, **81**(17):174421, 2010.
- [56] M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, J. Schnack, and S.-L. Drechsler. Thermodynamics of the one-dimensional frustrated Heisenberg ferromagnet with arbitrary spin. *Phys. Rev. B*, **84**(10):104411, 2011.
- [57] M. Härtel, J. Richter, and D. Ihle. Thermodynamics of the frustrated one-dimensional spin-1/2 Heisenberg ferromagnet in a magnetic field. *Phys. Rev. B*, **83**(21):214412, 2011.
- [58] M. Härtel, J. Richter, O. Götze, D. Ihle, and S.-L. Drechsler. Thermodynamics of the two-dimensional frustrated J_1 - J_2 Heisenberg ferromagnet in the collinear stripe regime: Susceptibility and correlation length. *Phys. Rev. B*, **87**(5):054412, 2013.
- [59] P. Müller, J. Richter, A. Hauser, and D. Ihle. Thermodynamics of the frustrated J_1 - J_2 Heisenberg ferromagnet on the body-centered cubic lattice with arbitrary spin. *Eur. Phys. J. B*, **88**(6):159, 2015.
- [60] J. Richter, P. Müller, A. Lohmann, and H.-J. Schmidt. High-temperature Expansion for Frustrated Magnets: Application to the J_1 - J_2 Model on the BCC Lattice. *Phys. Procedia*, **75**:813–820, 2015.
- [61] D. Schmalfuß. *Analytische Verfahren zur Untersuchung von Quantenspinsystemen: rotationsinvariante Greenfunktionsmethode und lineare Spinwellentheorie*. PhD thesis, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2005.
- [62] I. J. Junger. *Green-function theory of anisotropic Heisenberg magnets with arbitrary spin*. PhD thesis, 2011.
- [63] M. Härtel. *Anwendung der Greenfunktionsmethode auf niedrigdimensionale frustrierte Quantenferromagnete*. PhD thesis, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2014.
- [64] K. M. C. *Methods in the Quantum Theory of Magnetism*. By S. V. Tyablikov. Translated from the Russian by A. Tybulewicz., volume **104**. Cambridge University Press (CUP), 1967.

- [65] T. Hutak, P. Müller, J. Richter, T. Krokhumalskii, and O. Derzhko. The spin-1/2 heisenberg ferromagnet on the pyrochlore lattice: A Green's function study. *Condens. Matter. Phys.*, **21**(3):33705, 2018.
- [66] N. D. Mermin and H. Wagner. Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models. *Phys. Rev. Lett.*, **17**(22):1133, 1966.
- [67] W. Opechowski. On the exchange interaction in magnetic crystals. *Physica*, **4**(2):181–199, 1937.
- [68] G. S. Rushbrooke and P. J. Wood. On the Curie points and high temperature susceptibilities of Heisenberg model ferromagnetics. *Mol. Phys.*, **1**(3):257–283, 1958.
- [69] H.-J. Schmidt, A. Lohmann, and J. Richter. Eighth-order high-temperature expansion for general Heisenberg Hamiltonians. *Phys. Rev. B*, **84**(10):104443, 2011.
- [70] H.-J. Schmidt, J. Schnack, and M. Luban. Heisenberg exchange parameters of molecular magnets from the high-temperature susceptibility expansion. *Phys. Rev. B*, **64**(22):224415, 2001.
- [71] A. Lohmann, H.-J. Schmidt, and J. Richter. Tenth-order high-temperature expansion for the susceptibility and the specific heat of spin-s Heisenberg models with arbitrary exchange patterns: Application to pyrochlore and kagome magnets. *Phys. Rev. B*, **89**(1):014415, 2014.
- [72] H.-J. Schmidt, A. Hauser, A. Lohmann, and J. Richter. Interpolation between low and high temperatures of the specific heat for spin systems. *Phys. Rev. E*, **95**(4):042110, 2017.
- [73] J. M. Yeomans. *Statistical Mechanics of Phase Transitions*. Oxford University Press, 1962.
- [74] A. J. Guttmann and G. S. Joyce. On a new method of series analysis in lattice statistics. *J. Phys. A: Gen. Phys.*, **5**(9):L81, 1972.
- [75] A. J. Guttmann. *Asymptotic Analysis of Power Series Expansions*. 1989.
- [76] C. Domb and J. L. Lebowitz. *Phase Transitions and Critical Phenomena*. Academic Press, 1989.
- [77] P. Müller. Methode der Greenschen Funktionen zur Analyse frustrierter Quantenspinsysteme. Master's thesis, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2014.
- [78] H. Bethe. Zur Theorie der Metalle. *Z. Phys.*, **71**(3-4):205–226, 1931.

- [79] R. Zinke, S.-L. Drechsler, and J. Richter. Influence of interchain coupling on spiral ground-state correlations in frustrated spin-1/2 J_1 - J_2 Heisenberg chains. *Phys. Rev. B*, **79**(9):094425, 2009.
- [80] H. P. Bader and R. Schilling. Conditions for a ferromagnetic ground state of Heisenberg Hamiltonians. *Phys. Rev. B*, **19**(7):3556, 1979.
- [81] T. Hamada, J. i. Kane, S. i. Nakagawa, and Y. Natsume. Exact Solution of Ground State for Uniformly Distributed RVB in One-Dimensional Spin-1/2 Heisenberg Systems with Frustration. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **57**(6):1891–1894, 1988.
- [82] Y. Natsume, T. Hamada, S. i. Nakagawa, and J. i. Kane. Addendum to the Paper on UDRVB in One-Dimensional Spin-1/2 Heisenberg Systems with Frustration. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **58**(10):3869–3869, 1989.
- [83] D. V. Dmitriev, V. Ya. Krivnov, and A. A. Ovchinnikov. Exact ground states for a class of one-dimensional frustrated quantum spin models. *Phys. Rev. B*, **56**(10):5985, 1997.
- [84] D. V. Dmitriev, V. Ya. Krivnov, and J. Richter. Zigzag spin-S chain near the ferromagnet-antiferromagnet transition point. *Phys. Rev. B*, **75**(1):014424, 2007.
- [85] H. F. Fong, B. Keimer, J. W. Lynn, A. Hayashi, and R. J. Cava. Spin structure of the dopable quasi-one-dimensional copper oxide $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$. *Phys. Rev. B*, **59**(10):6873, 1999.
- [86] M. Matsuda, K. Ohoyama, and M. Ohashi. Magnetic Ordering of the Edge-Sharing CuO_2 Chains in $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **68**(1):269–272, 1999.
- [87] A. A. Gippius, E. N. Morozova, A. S. Moskvina, A. V. Zalessky, A. A. Bush, M. Baenitz, H. Rosner, and S.-L. Drechsler. NMR and local-density-approximation evidence for spiral magnetic order in the chain cuprate LiCu_2O_2 . *Phys. Rev. B*, **70**(2):020406, 2004.
- [88] M. Enderle, C. Mukherjee, B. Fåk, R. K. Kremer, J.-M. Broto, H. Rosner, S.-L. Drechsler, J. Richter, J. Malek, A. Prokofiev, W. Assmus, S. Pujol, J.-L. Raggazzoni, H. Rakoto, M. Rheinstädter, and H. M. Rønnow. Quantum helimagnetism of the frustrated spin- $\frac{1}{2}$ chain LiCuVO_4 . *Europhys. Lett.*, **70**(2):237, 2005.
- [89] S.-L. Drechsler, J. Richter, A. A. Gippius, A. Vasiliev, A. A. Bush, A. S. Moskvina, J. Málek, Y. Prots, W. Schnelle, and H. Rosner. Helical ground state and weak ferromagnetism in the edge-shared chain cuprate NaCu_2O_2 . *Europhys. Lett.*, **73**(1):83–89, 2006.

- [90] S.-L. Drechsler, J. Richter, R. Kuzian, J. Málek, N. Tristan, B. Büchner, A. S. Moskvin, A. A. Gippius, A. Vasiliev, O. Volkova, A. Prokofiev, H. Rakoto, J.-M. Broto, W. Schnelle, M. Schmitt, A. Ormeci, C. Loison, and H. Rosner. Helimagnetism and weak ferromagnetism in edge-shared chain cuprates. *J. Magn. Magn. Mater.*, **316**(2):306–312, 2007.
- [91] S.-L. Drechsler, O. Volkova, A. N. Vasiliev, N. Tristan, J. Richter, M. Schmitt, H. Rosner, J. Málek, R. Klingeler, A. A. Zvyagin, and B. Büchner. Frustrated Cuprate Route from Antiferromagnetic to Ferromagnetic Spin-1/2 Heisenberg Chains: $\text{Li}_2\text{ZrCuO}_4$ as a Missing Link near the Quantum Critical Point. *Phys. Rev. Lett.*, **98**(7):077202, 2007.
- [92] S.-L. Drechsler, N. Tristan, R. Klingeler, B. Büchner, J. Richter, J. Málek, O. Volkova, A. Vasiliev, M. Schmitt, A. Ormeci, C. Loison, W. Schnelle, and H. Rosner. Helimagnetism and weak ferromagnetism in NaCu_2O_2 and related frustrated chain cuprates. *J. Phys. Condens. Matter*, **19**(14):145230, 2007.
- [93] N. Büttgen, H.-A. Krug von Nidda, L. E. Svistov, L. A. Prozorova, A. Prokofiev, and W. Aßmus. Spin-modulated quasi-one-dimensional antiferromagnet LiCuVO_4 . *Phys. Rev. B*, **76**(1):014440, 2007.
- [94] S. E. Dutton, M. Kumar, M. Mourigal, Z. G. Soos, J.-J. Wen, C. L. Broholm, N. H. Andersen, Q. Huang, M. Zbiri, R. Toft-Petersen, and R. J. Cava. Quantum Spin Liquid in Frustrated One-Dimensional LiCuSbO_4 . *Phys. Rev. Lett.*, **108**(18):187206, 2012.
- [95] M. Pregelj, A. Zorko, O. Zaharko, D. Arčon, M. Komelj, A. D. Hillier, and H. Berger. Persistent Spin Dynamics Intrinsic to Amplitude-Modulated Long-Range Magnetic Order. *Phys. Rev. Lett.*, **109**(22):227202, 2012.
- [96] R. O. Kuzian, S. Nishimoto, S.-L. Drechsler, J. Málek, S. Johnston, Jeroen van den Brink, M. Schmitt, H. Rosner, M. Matsuda, K. Oka, H. Yamaguchi, and T. Ito. $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$: The First Frustrated Quasi-1D Ferromagnet Close to Criticality. *Phys. Rev. Lett.*, **109**(11):117207, 2012.
- [97] A. Saúl and G. Radtke. Density functional approach for the magnetism of β - TeVO_4 . *Phys. Rev. B*, **89**(10):104414, 2014.
- [98] K. Nawa, Y. Okamoto, A. Matsuo, K. Kindo, Y. Kitahara, S. Yoshida, S. Ikeda, S. Hara, T. Sakurai, S. Okubo, H. Ohta, and Z. Hiroi. $\text{NaCuMoO}_4(\text{OH})$ as a Candidate Frustrated J_1 - J_2 Chain Quantum Magnet. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **83**(10):103702, 2014.

- [99] A. Fennell, V. Y. Pomjakushin, A. Uldry, B. Delley, B. Prévost, A. Désilets-Benoit, A. D. Bianchi, R. I. Bewley, B. R. Hansen, T. Klimczuk, R. J. Cava, and M. Kenzelmann. Evidence for SrHo_2O_4 and SrDy_2O_4 as model J_1 - J_2 zigzag chain materials. *Phys. Rev. B*, **89**(22):224511, 2014.
- [100] N. Büttgen, K. Nawa, T. Fujita, M. Hagiwara, P. Kuhns, A. Prokofiev, A. P. Reyes, L. E. Svistov, K. Yoshimura, and M. Takigawa. Search for a spin-nematic phase in the quasi-one-dimensional frustrated magnet LiCuVO_4 . *Phys. Rev. B*, **90**(13):134401, 2014.
- [101] L. A. Prozorova, S. S. Sosin, L. E. Svistov, N. Büttgen, J. B. Kemper, A. P. Reyes, S. Riggs, A. Prokofiev, and O. A. Petrenko. Magnetic field driven 2D-3D crossover in the $S=1/2$ frustrated chain magnet LiCuVO_4 . *Phys. Rev. B*, **91**(17):174410, 2015.
- [102] F. Weickert, N. Harrison, B. L. Scott, M. Jaime, A. Leitmäe, I. Heinmaa, R. Stern, O. Janson, H. Berger, H. Rosner, and A. A. Tsirlin. Magnetic anisotropy in the frustrated spin-chain compound $\beta\text{-TeVO}_4$. *Phys. Rev. B*, **94**(6):064403, 2016.
- [103] B. Willenberg, M. Schäpers, A. U. B. Wolter, S.-L. Drechsler, M. Reehuis, J.-U. Hoffmann, B. Büchner, A. J. Studer, K. C. Rule, B. Ouladdiaf, S. Süllow, and S. Nishimoto. Complex Field-Induced States in Linarite $\text{PbCuSO}_4(\text{OH})_2$ with a Variety of High-Order Exotic Spin-Density Wave States. *Phys. Rev. Lett.*, **116**(4):047202, 2016.
- [104] K. Caslin, R. K. Kremer, F. S. Razavi, M. Hanfland, K. Syassen, E. E. Gordon, and M.-H. Whangbo. Competing Jahn-Teller distortions and hydrostatic pressure effects in the quasi-one-dimensional quantum ferromagnet CuAs_2O_4 . *Phys. Rev. B*, **93**(2):022301, 2016.
- [105] P. Müller, J. Richter, and D. Ihle. Thermodynamics of frustrated ferromagnetic spin-1/2 heisenberg chains: Role of interchain coupling. *Phys. Rev. B*, **95**(13):134407, 2017.
- [106] J. Oitmaa and W. Zheng. Curie and Néel temperatures of quantum magnets. *J. Phys. Condens. Matter*, **16**(47):8653, 2004.
- [107] L. Balents. Spin liquids in frustrated magnets. *Nat.*, **464**(7286):199–208, 2010.
- [108] L. Postulka, S. M. Winter, A. G. Mihailov, A. Mailman, A. Assoud, C. M. Robertson, B. Wolf, M. Lang, and R. T. Oakley. Spin Frustration in an Organic Radical Ion Salt Based on a Kagome-Coupled Chain Structure. *J. Am. Chem. Soc.*, **138**(34):10738–10741, 2016.

- [109] A. M. Hallas, A. Z. Sharma, Y. Cai, T. J. Munsie, M. N. Wilson, M. Tachibana, C. R. Wiebe, and G. M. Luke. Relief of frustration in the Heisenberg pyrochlore antiferromagnet $\text{Gd}_2\text{Pt}_2\text{O}_7$. *Phys. Rev. B*, **94**(13):134417, 2016.
- [110] S. W. Lovesey. Temperature renormalisation of the spin-wave stiffness in a model ferromagnet. *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **10**(16):L455, 1977.
- [111] I. A. Fomin. Large-amplitude spin waves and magnetic relaxation in the superfluid phases of ^3He . *Sov. Phys. JETP*, **51**(6):1203, 1980.
- [112] Y. M. Bunkov. Spin supercurrent and novel properties of NMR in ^3He . *Progress in Low Temp. Phys.*, **14**:69–158, 1995.
- [113] J. An, C.-D. Gong, and H.-Q. Lin. Softened spin-wave dispersion and sublattice magnetization at finite temperature for a three-dimensional anisotropic Heisenberg antiferromagnet. *J. Phys. Condens. Matter*, **13**(1):115–122, 2000.
- [114] S.-J. Sun and H.-H. Lin. Softening of spin-wave stiffness near the ferromagnetic phase transition in diluted magnetic semiconductors. *Eur. Phys. J. B*, **49**(4):403–406, 2006.
- [115] A. N. Ignatenko, A. A. Katanin, and V. Yu. Irkhin. Strong fluctuations near the frustration point in cubic lattice ferromagnets with localized moments. *JETP Lett.*, **97**(4):209–213, 2013.
- [116] D. Wulferding, P. Lemmens, P. Scheib, J. Röder, P. Mendels, S. Chu, T. Han, and Y. S. Lee. Interplay of thermal and quantum spin fluctuations in the kagome lattice compound herbertsmithite. *Phys. Rev. B*, **82**(14):144412, 2010.
- [117] Z. Hiroi, H. Yoshida, Y. Okamoto, and M. Takigawa. Spin-1/2 kagome compounds: Volborthite vs Herbertsmithite. *J. Phys.: Conf. Ser.*, **145**(1):012002, 2009.
- [118] P. Mendels, F. Bert, M. A. de Vries, A. Olariu, A. Harrison, F. Duc, J. C. Trombe, J. S. Lord, A. Amato, and C. Baines. Quantum Magnetism in the Paratacamite Family: Towards an Ideal Kagomé Lattice. *Phys. Rev. Lett.*, **98**(7):077204, 2007.
- [119] J. S. Helton, K. Matan, M. P. Shores, E. A. Nytko, B. M. Bartlett, Y. Yoshida, Y. Takano, A. Suslov, Y. Qiu, J.-H. Chung, D. G. Nocera, and Y. S. Lee. Spin Dynamics of the Spin-1/2 Kagome Lattice Antiferromagnet $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$. *Phys. Rev. Lett.*, **98**(10):107204, 2007.
- [120] M. A. de Vries, J. R. Stewart, P. P. Deen, J. O. Piatek, G. J. Nilsen, H. M. Rønnow, and A. Harrison. Scale-Free Antiferromagnetic Fluctuations in the $s=1/2$ Kagome Antiferromagnet Herbertsmithite. *Phys. Rev. Lett.*, **103**(23):237201, 2009.

- [121] T.-H. Han, J. S. Helton, S. Chu, D. G. Nocera, J. A. Rodriguez-Rivera, C. Broholm, and Y. S. Lee. Fractionalized excitations in the spin-liquid state of a kagome-lattice antiferromagnet. *Nature*, **492**(7429):406–410, 2012.
- [122] B. Fåk, F. C. Coomer, A. Harrison, D. Visser, and M. E. Zhitomirsky. Spin-liquid behavior in a kagomé antiferromagnet: Deuterium jarosite. *Europhys. Lett.*, **81**(1):17006, 2007.
- [123] S. Okubo, R. Nakata, S. Ikeda, N. Takahashi, T. Sakurai, W.-M. Zhang, H. Ohta, T. Shimokawa, T. Sakai, K. Okuta, S. Hara, and H. Sato. Dzyaloshinsky-Moriya Interaction and the Ground State in $S = 3/2$ Perfect Kagome Lattice Antiferromagnet $\text{KCr}_3(\text{OH})_6(\text{SO}_4)_2$ (Cr-Jarosite) Studied by X-Band and High-Frequency ESR. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **86**(2):024703, 2017.
- [124] P. Müller, A. Zander, and J. Richter. Thermodynamics of the kagome-lattice Heisenberg antiferromagnet with arbitrary spin S . *Phys. Rev. B*, **98**(2):024414, 2018.
- [125] S. Sachdev. Kagome'- and triangular-lattice Heisenberg antiferromagnets: Ordering from quantum fluctuations and quantum-disordered ground states with unconfined bosonic spinons. *Phys. Rev. B*, **45**(21):12377, 1992.
- [126] N. Elstner and A. P. Young. Spin-1/2 Heisenberg antiferromagnet on the kagome' lattice: High-temperature expansion and exact-diagonalization studies. *Phys. Rev. B*, **50**(10):6871, 1994.
- [127] A. L. Chernyshev and M. E. Zhitomirsky. Quantum Selection of Order in an XXZ Antiferromagnet on a Kagome Lattice. *Phys. Rev. Lett.*, **113**(23):237202, 2014.
- [128] O. Götze, D. J. J. Farnell, R. F. Bishop, P. H. Y. Li, and J. Richter. Heisenberg antiferromagnet on the kagome lattice with arbitrary spin: A higher-order coupled cluster treatment. *Phys. Rev. B*, **84**(22):224428, 2011.
- [129] A. Chubukov. Order from disorder in a kagomé antiferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, **69**(5):832, 1992.
- [130] D. Grohol, K. Matan, J.-H. Cho, S.-H. Lee, J. W. Lynn, D. G. Nocera, and Y. S. Lee. Spin chirality on a two-dimensional frustrated lattice. *Nat. Mater.*, **4**:323–328, 2005.
- [131] G.-W. Chern, R. Moessner, and O. Tchernyshyov. Partial order from disorder in a classical pyrochlore antiferromagnet. *Phys. Rev. B*, **78**(14):144418, 2008.
- [132] M. E. Zhitomirsky. Octupolar ordering of classical kagome antiferromagnets in two and three dimensions. *Phys. Rev. B*, **78**(9):094423, 2008.

- [133] S. Yan, D. A. Huse, and S. R. White. Spin-Liquid Ground State of the $S = 1/2$ Kagome Heisenberg Antiferromagnet. *Science*, **332**(6034):1173–1176, 2011.
- [134] A. M. Läuchli, J. Sudan, and E. S. Sørensen. Ground-state energy and spin gap of spin-1/2 Kagomé-Heisenberg antiferromagnetic clusters: Large-scale exact diagonalization results. *Phys. Rev. B*, **83**(21):212401, 2011.
- [135] A. L. Chernyshev and M. E. Zhitomirsky. Order and excitations in large- S kagome-lattice antiferromagnets. *Phys. Rev. B*, **92**(14):144415, 2015.
- [136] I. Juhász Junger, D. Ihle, and J. Richter. Thermodynamics of layered Heisenberg magnets with arbitrary spin. *Phys. Rev. B*, **80**(6):064425, 2009.
- [137] A. B. Harris, C. Kallin, and A. J. Berlinsky. Possible Néel orderings of the Kagomé antiferromagnet. *Phys. Rev. B*, **45**(6):2899, 1992.
- [138] N. E. Sherman and R. R. P. Singh. Structure Factors of the Kagome-Lattice Heisenberg antiferromagnets at finite temperatures. *Phys. Rev. B*, **97**(1):014423, 2017.
- [139] O. Janson, J. Richter, and H. Rosner. Modified Kagome Physics in the Natural Spin-1/2 Kagome Lattice Systems: Kapellasite $\text{Cu}_3\text{Zn}(\text{OH})_6\text{Cl}_2$ and Haydeeite $\text{Cu}_3\text{Mg}(\text{OH})_6\text{Cl}_2$. *Phys. Rev. Lett.*, **101**(10):106403, 2008.
- [140] B. Fåk, E. Kermarrec, L. Messio, B. Bernu, C. Lhuillier, F. Bert, P. Mendels, B. Koteswararao, F. Bouquet, J. Ollivier, A. D. Hillier, A. Amato, R. H. Colman, and A. S. Wills. Kapellasite: A Kagome Quantum Spin Liquid with Competing Interactions. *Phys. Rev. Lett.*, **109**(3):037208, 2012.
- [141] B. Bernu, C. Lhuillier, E. Kermarrec, F. Bert, P. Mendels, R. H. Colman, and A. S. Wills. Exchange energies of kapellasite from high-temperature series analysis of the kagome lattice J_1 - J_2 - J_d -Heisenberg model. *Phys. Rev. B*, **87**(15):155107, 2013.
- [142] O. Götze and J. Richter. Ground-state phase diagram of the XXZ spin- s kagome antiferromagnet: A coupled-cluster study. *Phys. Rev. B*, **91**(10):104402, 2015.
- [143] Y. Iqbal, H. O. Jeschke, J. Reuther, R. Valentí, I. I. Mazin, M. Greiter, and R. Thomale. Paramagnetism in the kagome compounds $(\text{Zn},\text{Mg},\text{Cd})\text{Cu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$. *Phys. Rev. B*, **92**(22):220404, 2015.
- [144] H. O. Jeschke, F. Salvat-Pujol, and R. Valentí. First-principles determination of Heisenberg Hamiltonian parameters for the spin-1/2 kagome antiferromagnet $\text{ZnCu}_3(\text{OH})_6\text{Cl}_2$. *Phys. Rev. B*, **88**(7):075106, 2013.

- [145] A. A. Nersesyan, A. O. Gogolin, and F. H. L. Eßler. Incommensurate Spin Correlations in Spin-1/2 Frustrated Two-Leg Heisenberg Ladders. *Phys. Rev. Lett.*, **81**(4):910, 1998.
- [146] D. C. Cabra, A. Honecker, and P. Pujol. Magnetic properties of zig-zag ladders. *Eur. Phys. J. B*, **13**(1):55–73, 2000.
- [147] D. V. Dmitriev and V. Ya. Krivnov. Frustrated ferromagnetic spin-1/2 chain in a magnetic field. *Phys. Rev. B*, **73**(2):024402, 2006.
- [148] N. Shannon, T. Momoi, and P. Sindzingre. Nematic Order in Square Lattice Frustrated Ferromagnets. *Phys. Rev. Lett.*, **96**(2):027213, 2006.
- [149] R. Shindou, S. Yunoki, and T. Momoi. Projective studies of spin nematics in a quantum frustrated ferromagnet. *Phys. Rev. B*, **84**(13):134414, 2011.
- [150] D. J. J. Farnell, O. Götze, and J. Richter. Ground-state ordering of the J_1 - J_2 model on the simple cubic and body-centered cubic lattices. *Phys. Rev. B*, **93**(23):235123, 2016.
- [151] R. Schmidt, J. Schulenburg, J. Richter, and D. D. Betts. Spin-1/2 J_1 - J_2 model on the body-centered cubic lattice. *Phys. Rev. B*, **66**(22):224406, 2002.
- [152] K. Majumdar and T. Datta. Non-linear spin wave theory results for the frustrated $S=1/2$ Heisenberg antiferromagnet on a body-centered cubic lattice. *J. Phys. Condens. Matter*, **21**(40):406004, 2009.
- [153] H. T. Ueda and T. Momoi. Nematic phase and phase separation near saturation field in frustrated ferromagnets. *Phys. Rev. B*, **87**(14):144417, 2013.
- [154] M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, and S.-L. Drechsler. Thermodynamics of a one-dimensional frustrated spin-1/2 Heisenberg ferromagnet. *Phys. Rev. B*, **78**(17):174412, 2008.
- [155] J. Sirker, V. Y. Krivnov, D. V. Dmitriev, A. Herzog, O. Janson, S. Nishimoto, S.-L. Drechsler, and J. Richter. J_1 - J_2 Heisenberg model at and close to its $z=4$ quantum critical point. *Phys. Rev. B*, **84**(14):144403, 2011.
- [156] J. Oitmaa and W. Zheng. Phase diagram of the bcc $S=1/2$ Heisenberg antiferromagnet with first and second neighbor exchange. *Phys. Rev. B*, **69**(6):064416, 2004.
- [157] M. R. Pantić, D. V. Kapor, S. M. Radošević, and P. M. Mali. Phase diagram of quantum Heisenberg antiferromagnet on the body-centered-cubic lattice in random phase approximation. *Solid State Commun.*, **182**:55–58, 2014.

- [158] J. S. Gardner, M. J. P. Gingras, and J. E. Greedan. Magnetic pyrochlore oxides. *Rev. Mod. Phys.*, **82**(1):53, 2010.
- [159] M. J. P. Gingras and P. A. McClarty. Quantum spin ice: a search for gapless quantum spin liquids in pyrochlore magnets. *Rep. Prog. Phys.*, **77**(5):056501, may 2014.
- [160] A. B. Harris, A. J. Berlinsky, and C. Bruder. Ordering by quantum fluctuations in a strongly frustrated Heisenberg antiferromagnet. *J. Appl. Phys.*, **69**(8):5200, 1991.
- [161] B. Canals and C. Lacroix. Pyrochlore Antiferromagnet: A Three-Dimensional Quantum Spin Liquid. *Phys. Rev. Lett.*, **80**(13):2933, 1998.
- [162] B. Canals and C. Lacroix. Quantum spin liquid: The Heisenberg antiferromagnet on the three-dimensional pyrochlore lattice. *Phys. Rev. B*, **61**(2):1149, 2000.
- [163] M. Isoda and S. Mori. Valence-Bond Crystal and Anisotropic Excitation Spectrum on 3-Dimensionally Frustrated Pyrochlore. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **67**(12):4022–4025, 1998.
- [164] A. Koga and N. Kawakami. Frustrated Heisenberg antiferromagnet on the pyrochlore lattice. *Phys. Rev. B*, **63**(14):144432, 2001.
- [165] H. Tsunetsugu. Antiferromagnetic Quantum Spins on the Pyrochlore Lattice. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **70**(3):640–643, 2001.
- [166] H. Tsunetsugu. Spin-singlet order in a pyrochlore antiferromagnet. *Phys. Rev. B*, **65**(2):024415, 2001.
- [167] E. Berg, E. Altman, and A. Auerbach. Singlet Excitations in Pyrochlore: A Study of Quantum Frustration. *Phys. Rev. Lett.*, **90**(14):147204, 2003.
- [168] R. Moessner, S. L. Sondhi, and M. O. Goerbig. Quantum dimer models and effective Hamiltonians on the pyrochlore lattice. *Phys. Rev. B*, **73**(9):094430, 2006.
- [169] C. L. Henley. Order by Disorder and Gauge-like Degeneracy in a Quantum Pyrochlore Antiferromagnet. *Phys. Rev. Lett.*, **96**(4):047201, 2006.
- [170] B. Normand and Z. Nussinov. Hubbard Model on the Pyrochlore Lattice: A 3D Quantum Spin Liquid. *Phys. Rev. Lett.*, **112**(20):207202, 2014.
- [171] A. J. Princep, H. C. Walker, D. T. Adroja, D. Prabhakaran, and A. T. Boothroyd. Crystal field states of Tb^{3+} in the pyrochlore spin liquid $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$ from neutron spectroscopy. *Phys. Rev. B*, **91**(22):224430, 2015.

- [172] Y. Iqbal, T. Müller, K. Riedl, J. Reuther, S. Rachel, R. Valentí, M. J. P. Gingras, R. Thomale, and H. O. Jeschke. Signatures of a gearwheel quantum spin liquid in a spin-1/2 pyrochlore molybdate Heisenberg antiferromagnet. *Phys. Rev. Materials*, **1**(7):071201, 2017.
- [173] Y. Iqbal, T. Müller, P. Ghosh, M. J. P. Gingras, H. O. Jeschke, S. Rachel, J. Reuther, and R. Thomale. Quantum and classical phases of the pyrochlore Heisenberg model with competing interactions. *arXiv:1802.09546 [cond-mat.str-el]*, 2018.
- [174] H. D. Zhou, E. S. Choi, J. A. Souza, J. Lu, Y. Xin, L. L. Lumata, B. S. Conner, L. Balicas, J. S. Brooks, J. J. Neumeier, and C. R. Wiebe. Magnetic-polaron-driven magnetoresistance in the pyrochlore $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$. *Phys. Rev. B*, **77**(2):020411, 2008.
- [175] Y. Onose, T. Ideue, H. Katsura, Y. Shiomi, N. Nagaosa, and Y. Tokura. Observation of the Magnon Hall Effect. *Science*, **329**(5989):297–299, 2010.
- [176] M. Mena, R. S. Perry, T. G. Perring, M. D. Le, S. Guerrero, M. Storni, D. T. Adroja, Ch. Rüegg, and D. F. McMorrow. Spin-Wave Spectrum of the Quantum Ferromagnet on the Pyrochlore Lattice $\text{Lu}_2\text{V}_2\text{O}_7$. *Phys. Rev. Lett.*, **113**(4):047202, 2014.
- [177] I. Dzyaloshinsky. A thermodynamic theory of “weak” ferromagnetism of antiferromagnetics. *J. Phys. Chem. Solids*, **4**(4):241–255, 1958.
- [178] T. Moriya. Anisotropic Superexchange Interaction and Weak Ferromagnetism. *Phys. Rev.*, **120**(1):91, 1960.
- [179] Y. Yasui, M. Soda, S. Iikubo, M. Ito, M. Sato, N. Hamaguchi, T. Matsushita, N. Wada, T. Takeuchi, N. Aso, and K. Kakurai. Ferromagnetic Transition of Pyrochlore Compound $\text{Yb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. *J. Phys. Soc. Jpn.*, **72**(11):3014–3015, 2003.
- [180] P. Müller, A. Lohmann, J. Richter, O. Menchyshyn, and O. Derzhko. Thermodynamics of the pyrochlore Heisenberg ferromagnet with arbitrary spin S . *Phys. Rev. B*, **96**(17):174419, 2017.
- [181] <http://lampx.tugraz.at/~hadley/ss1/bzones/fcc.php> (12.01.2019).
- [182] S. Wessel. Critical entropy of quantum Heisenberg magnets on simple-cubic lattices. *Phys. Rev. B*, **81**(5):052405, 2010.
- [183] A. F. Albuquerque, F. Alet, P. Corboz, P. Dayal, A. Feiguin, S. Fuchs, L. Gamper, E. Gull, S. Gürtler, A. Honecker, R. Igarashi, M. Körner, A. Kozhevnikov, A. Läuchli, S. R. Manmana, M. Matsumoto, I. P. McCulloch, F. Michel, R.M. Noack, G. Pawłowski, L. Pollet, T. Pruschke, U. Schollwöck, S. Todo, S. Trebst, M. Troyer,

- P. Werner, and S. Wessel. The ALPS project release 1.3: Open-source software for strongly correlated systems. *J. Magn. Magn. Mater.*, **310**(2):1187–1193, 2007.
- [184] B. Bauer, L. D. Carr, H. G. Evertz, A. Feiguin, J. Freire, S. Fuchs, L. Gamper, J. Gukelberger, E. Gull, S. Guertler, A. Hehn, R. Igarashi, S. V. Isakov, D. Koop, P. N. Ma, P. Mates, H. Matsuo, O. Parcollet, G. Pawłowski, J. D. Picon, L. Pollet, E. Santos, V. W. Scarola, U. Schollwöck, C. Silva, B. Surer, S. Todo, S. Trebst, M. Troyer, M. L. Wall, P. Werner, and S. Wessel. The ALPS project release 2.0: open source software for strongly correlated systems. *J. Stat. Mech. Theory Exp.*, **2011**(05):P05001, 2011.
- [185] A. J. Garcia-Adeva. Real-space renormalization group method for quantum 1/2 spins on the pyrochlore lattice. *J. Phys. Condens. Matter*, **26**(13):136002, 2014.
- [186] K. Soldatov, K. Nefedev, Y. Komura, and Y. Okabe. Large-scale calculation of ferromagnetic spin systems on the pyrochlore lattice. *Phys. Lett. A*, **381**(7):707–712, 2017.
- [187] P. Peczak, A. M. Ferrenberg, and D. P. Landau. High-accuracy Monte Carlo study of the three-dimensional classical Heisenberg ferromagnet. *Phys. Rev. B*, **43**(7):6087, 1991.
- [188] B. Canals and D. A. Garanin. Spin-liquid phase in the pyrochlore anti-ferromagnet. *Can. J. Phys.*, **79**(11-12):1323–1331, 2001.
- [189] V. R. Chandra and J. Sahoo. Spin- 1/2 Heisenberg antiferromagnet on the pyrochlore lattice: An exact diagonalization study. *Phys. Rev. B*, **97**(14):144407, 2018.
- [190] M. Ruminy, L. Bovo, E. Pomjakushina, M. K. Haas, U. Stuhr, A. Cervellino, R. J. Cava, M. Kenzelmann, and T. Fennell. Sample independence of magnetoelastic excitations in the rare-earth pyrochlore $\text{Tb}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. *Phys. Rev. B*, **93**(14):144407, 2016.
- [191] B. D. Gaulin, J. S. Gardner, S. R. Dunsiger, Z. Tun, M. D. Lumsden, R. F. Kiefl, N. P. Raju, J. N. Reimers, and J. E. Greedan. Neutron scattering studies of geometrically frustrated pyrochlore antiferromagnets. *Physica B*, **241** – **243**:511–516, 1997.
- [192] R. Žitko. SNEG – Mathematica package for symbolic calculations with second-quantization-operator expressions. *Comput. Phys. Commun.*, **182**(10):2259–2264, 2011.
- [193] J. Richter and A. Voigt. The spin- 1/2 Heisenberg star with frustration: numerical versus exact results. *J. Phys. A: Math. Gen.*, **27**(4):1139, 1994.

- [194] J. Richter, A. Voigt, S. E. Krüger, and C. Gros. The spin- Heisenberg star with frustration: II. The influence of the embedding medium. *J. Phys. A: Math. Gen.*, **29**(4):825, 1996.
- [195] D. Bohm and D. Pines. A Collective Description of Electron Interactions. I. Magnetic Interactions. *Phys. Rev.*, **82**(5):625, 1951.
- [196] D. Pines and D. Bohm. A Collective Description of Electron Interactions: II. Collective vs Individual Particle Aspects of the Interactions. *Phys. Rev.*, **85**(2):338, 1952.
- [197] D. Bohm and D. Pines. A Collective Description of Electron Interactions: III. Coulomb Interactions in a Degenerate Electron Gas. *Phys. Rev.*, **92**(3):609, 1953.
- [198] S. V. Tyablikov. Retarded and advanced Green functions in the theory of ferromagnetism. *Ukr. Mat. Zh.*, **11**(3):287–294, 1959.
- [199] R. A. Tahir-Kheli and D. ter Haar. Use of Green Functions in the Theory of Ferromagnetism. I. General Discussion of the Spin- S Case. *Phys. Rev. B*, **127**(1):88, 1962.
- [200] A. C. Hewson and D. ter Haar. The Green function method in the theory of antiferromagnetism. *Physica*, **30**(4):890–898, 1964.

Ehrenerklärung

Ich versichere hiermit, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe; verwendete fremde und eigene Quellen sind als solche kenntlich gemacht.

Ich habe insbesondere nicht wissentlich:

- Ergebnisse erfunden oder widersprüchlich Ergebnisse verschwiegen,
- statistische Verfahren absichtlich missbraucht, um Daten in ungerechtfertigter Weise zu interpretieren,
- fremde Ergebnisse oder Veröffentlichungen plagiiert,
- fremde Forschungsergebnisse verzerrt wiedergegeben.

Mir ist bekannt, dass Verstöße gegen das Urheberrecht Unterlassungs- und Schadensersatzansprüche des Urhebers sowie eine strafrechtliche Ahndung durch die Strafverfolgungsbehörden begründen kann.

Ich erkläre mich damit einverstanden, dass die Arbeit ggf. mit Mitteln der elektronischen Datenverarbeitung auf Plagiate überprüft werden kann.

Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form als Dissertation eingereicht und ist als Ganzes auch noch nicht veröffentlicht.

Magdeburg, 06.05.2019