



OTTO VON GUERICKE  
UNIVERSITÄT  
MAGDEBURG

NAT

FAKULTÄT FÜR  
NATURWISSENSCHAFTEN

Anwendung der Greenfunktionsmethode auf  
niedrigdimensionale frustrierte Quantenferromagnete

## **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. Moritz Härtel  
geboren am 20. Juli 1982 in Ankum

Gutachter: Prof. Dr. Johannes Richter, OvGU Magdeburg  
Prof. Dr. Steffen Trimper, MLU Halle-Wittenberg

eingereicht am: 12. Mai 2014  
verteidigt am: 21. Oktober 2014



## Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Zunächst gilt mein Dank Prof. Dr. J. Richter. Seine ständige Diskussionsbereitschaft, sein Wohlwollen und seine Geduld haben wesentlich zur Entstehung dieser Arbeit beigetragen. Ohne die Möglichkeit der Mitarbeit in seiner Arbeitsgruppe wäre die vorliegende Dissertation nie begonnen worden.

Weiterhin danke ich Prof. Dr. D. Ihle und Dr. I. Juhász Junger für die Unterstützung, die Hinweise und Tipps, die mir insbesondere in der Anfangszeit bei dem Erlernen der mir unbekanntem Methode der Greenschen Funktionen sehr geholfen haben.

Mein Dank gilt außerdem den Mitarbeitern der Arbeitsgruppe “Kondensierte Materie II” der Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, deren umgängliche Art und Diskussionsfreude, nicht nur über physikalische Themen, ein angenehmes und produktives Arbeitsumfeld geschaffen haben.

Auch von nichtwissenschaftlicher Seite her bin ich vielen Menschen zu Dank verpflichtet. Von ganzem Herzen danke ich Yvonne, Stefan und allen weiteren FreundInnen und Bekannten, mit denen ich so manches Bier geleert, viele schöne Abende erlebt und einige erholsame Urlaube verbracht habe und dank denen ich immer wieder den Kopf freibekommen habe. Ina danke ich für die entspannten Kaffeepausen mit ihr und die zeitweilige Rückzugsmöglichkeit im Weinladen. Mein Dank gilt auch den Bands “Gatü”, “zellfisch” und “Zeit zum Aufstehn”, die mich lange Jahre haben mitspielen lassen und mir die Möglichkeit gegeben haben, meine musikalische Kreativität auszuleben. Danke für euer aller Freundschaft!

Schließlich danke ich meiner Familie, die mich in allen Lebenslagen unterstützt, bestärkt und mir die Möglichkeit gegeben hat, meinen Weg zu gehen.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Die Greenschen Funktionen in der Quantenmechanik</b>	<b>7</b>
2.1	Definitionen . . . . .	7
2.2	Bewegungsgleichung in Zeit- und Frequenzdarstellung . . . . .	9
2.3	Das Spektraltheorem . . . . .	10
2.4	Die magnetische Suszeptibilität . . . . .	14
<b>3</b>	<b>Die Greenschen Funktionen des Heisenberg-Modells</b>	<b>19</b>
3.1	Einleitung . . . . .	19
3.2	Greensche Funktionen für Systeme im äußeren Magnetfeld . . . . .	22
3.2.1	Longitudinale Korrelationsfunktionen . . . . .	23
3.2.2	Transversale Korrelationsfunktionen . . . . .	30
3.2.3	Berechnung der physikalischen Größen . . . . .	35
3.3	Grenzfall $h = 0$ , rotationsinvariante Greensche Funktionen für beliebige Quantenzahlen $S$ . . . . .	38
3.3.1	Korrelationsfunktionen . . . . .	39
3.3.2	Berechnung der physikalischen Größen . . . . .	40
3.4	Anmerkungen zur Korrelationslänge . . . . .	42
<b>4</b>	<b>Anwendung der Greenfunktionsmethode auf den eindimensionalen frustrierten Heisenberg-Ferromagneten</b>	<b>45</b>
4.1	Grundlagen, Stand der Forschung . . . . .	45
4.2	Gleichungen der Greenfunktionsmethode . . . . .	53
4.2.1	Die Gleichungen der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode für beliebige Spinquantenzahlen $S$ . . . . .	53
4.2.2	Die Gleichungen der Greenfunktionsmethode mit äußerem Magnetfeld und der Spinquantenzahl $S = 1/2$ . . . . .	57
4.3	Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand . . . . .	60
4.3.1	Korrelationsfunktionen . . . . .	62
4.3.2	Spezifische Wärmekapazität . . . . .	63
4.3.3	Suszeptibilität . . . . .	68
4.3.4	Korrelationslänge . . . . .	74

4.4	Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand im äußeren Feld . . . . .	82
4.4.1	Korrelationsfunktionen . . . . .	82
4.4.2	Spezifische Wärmekapazität . . . . .	84
4.4.3	Magnetisierung . . . . .	87
4.4.4	Suszeptibilität . . . . .	89
4.4.5	Korrelationslänge . . . . .	93
<b>5</b>	<b>Anwendung der Greenfunktionsmethode auf den zweidimensionalen frustrierten Heisenberg-Ferromagneten</b>	<b>97</b>
5.1	Grundlagen, Stand der Forschung . . . . .	97
5.2	Die Gleichungen der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode für die Spinquantenzahl $S = \frac{1}{2}$ . . . . .	104
5.2.1	System im Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes . . .	105
5.2.2	System im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes . . . . .	107
5.3	Resultate für den Grundzustand . . . . .	110
5.4	Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand . . . .	114
5.4.1	Korrelationsfunktionen . . . . .	114
5.4.2	Spezifische Wärmekapazität . . . . .	116
5.4.3	Suszeptibilität . . . . .	120
5.4.4	Korrelationslänge . . . . .	125
5.5	Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei kollinearem Grundzustand . . . . .	130
5.5.1	Korrelationsfunktionen . . . . .	131
5.5.2	Spezifische Wärme . . . . .	133
5.5.3	Suszeptibilität . . . . .	135
5.5.4	Korrelationslänge . . . . .	138
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>147</b>
<b>A</b>	<b>Kommutatoren</b>	<b>151</b>
<b>B</b>	<b>Entkopplungsmethoden der Bewegungsgleichung</b>	<b>161</b>

# Tabellenverzeichnis

4.1	Ergebnisse des Fits von $T(C_{V,\max})(S)$ an Gleichung (4.34) für ausgewählte Werte von $J_2$ . . . . .	68
4.2	Literaturergebnisse der Feldabhängigkeit von Position und Höhe des Tieftemperaturmaximums der spezifischen Wärme der unfrustrierten ferromagnetischen Kette nach Gleichung (4.47). . . . .	87
4.3	Literaturergebnisse der Feldabhängigkeit von Position und Höhe des Maximums der Suszeptibilität der unfrustrierten ferromagnetischen Kette nach Gleichung (4.48). . . . .	89
5.1	Kopplungsstärken und Néel-Temperaturen verschiedener Materialien . . . . .	101
5.2	Experimentell ermittelte Höhe und Position des Maximums der Suszeptibilität sowie der gyromagnetische Faktor verschiedener Materialien . . . . .	101
5.3	Experimentell gemessene Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme	101
5.4	Suszeptibilität $\chi_{\perp} = \frac{3}{2}\chi_0$ des Antiferromagneten auf dem Quadratgitter im Vergleich mit den Ergebnissen anderer Methoden. . . . .	113





# Abbildungsverzeichnis

4.1	Phasendiagramm der ferromagnetischen $J_1$ - $J_2$ -Kette mit $S = 1/2$ im Feld . . . . .	47
4.2	Schematische Orbitalstruktur von Kuprat . . . . .	50
4.3	Gitterstruktur und Austauschpfade von $LiCuVO_4$ . . . . .	51
4.4	$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \rangle$ und $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_4 \rangle$ für verschiedene $J_2$ mit $S = 1/2, 1$ und $3/2$ . . . . .	61
4.5	$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \rangle$ und $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_4 \rangle$ für verschiedene $S$ mit $J_2 = 0.0$ und $0.2$ . . . . .	62
4.6	Spezifische Wärme für verschiedene $J_2$ mit $S = 1/2, 1$ und $3/2$ und $2$ . . . . .	64
4.7	Spezifische Wärme aus der ED für verschiedene $N$ mit $S = 1/2$ und $1$ . . . . .	65
4.8	Spezifische Wärme für verschiedene $S$ mit $J_2 = 0.0$ und $0.22$ . . . . .	66
4.9	Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme für verschiedene $S$ . . . . .	67
4.10	Suszeptibilität für verschiedene $J_2$ mit $S = 1/2, 1, 3/2$ und $2$ . . . . .	69
4.11	Suszeptibilität für verschiedene $S$ mit $J_2 = 0.0$ und $0.2$ . . . . .	70
4.12	Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität für $J_2 = 0$ . . . . .	71
4.13	Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität für $J_2 = 0.1$ und $0.2$ . . . . .	72
4.14	$J_2$ -Abhängigkeit der zweiten Ordnung im Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität . . . . .	73
4.15	Korrelationslänge für verschiedene $J_2$ mit $S = 1/2, 1, 3/2$ und $2$ . . . . .	75
4.16	Korrelationslänge für verschiedene $S$ mit $J_2 = 0.0$ und $0.2$ . . . . .	76
4.17	$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_n \rangle > 10^{-6}$ für $S = 3/2$ über $n$ für verschiedene $T$ bei $J_2 = 0.0$ und $0.2$ . . . . .	77
4.18	Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge für $J_2 = 0$ . . . . .	78
4.19	Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge für $J_2 = 0.1$ und $0.2$ . . . . .	80
4.20	$J_2$ -Abhängigkeit der zweiten Ordnung im Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge . . . . .	81
4.21	$\langle S_0^x S_n^x \rangle$ und $\langle S_0^z S_n^z \rangle$ ( $n = 1, 4$ ) für $h = 0.03$ und $0.1$ mit $J_2 = 0$ und $J_2 = 0.15$ . . . . .	83
4.22	Spezifische Wärme für verschiedene Feldstärken mit $J_2 = 0.05$ und $0.15$ . . . . .	85
4.23	Feldabhängigkeit von Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme . . . . .	86
4.24	Magnetisierung für verschiedene Feldstärken mit $J_2 = 0, 0.1$ und $0.15$ . . . . .	88
4.25	Suszeptibilität für verschiedene Feldstärken mit $J_2 = 0.05$ und $0.15$ . . . . .	90
4.26	Feldabhängigkeit von Höhe und Position des Maximums der Suszeptibilität . . . . .	91
4.27	$J_2$ -Abhängigkeit der Koeffizienten in $T(\chi_{max}) = ah^\gamma$ sowie $\chi_{max} = bh^\beta$ . . . . .	92
4.28	Korrelationslänge für verschiedene Feldstärken mit $J_2 = 0, 0.1$ und $0.15$ . . . . .	94
5.1	Kristallstruktur der Vanadiumphosphate $AA'VO(PO_4)_2$ . . . . .	100
5.2	Korrelationsfunktionen und Magnetisierung im Grundzustand . . . . .	111
5.3	Energie und Suszeptibilität im Grundzustand . . . . .	112

5.4	$\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,0} \rangle$ und $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,1} \rangle$ für $J_2 = 0.1$ und $0.35$ . . . . .	115
5.5	Spezifische Wärme für $J_2 = 0.1$ und $0.35$ für verschiedene Systemgrößen . . . . .	117
5.6	Spezifische Wärme für verschiedene $J_2$ . . . . .	118
5.7	Spezifische Wärme aus der exakten Diagonalisierung für verschiedene $J_2$ . . . . .	119
5.8	Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme für verschiedene $J_2$ .	120
5.9	Suszeptibilität für $J_2 = 0.1$ und $0.35$ für verschiedene Systemgrößen . . . . .	121
5.10	Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität für verschiedene $J_2$ . . . . .	123
5.11	$J_2$ -Abhängigkeit der Koeffizienten im Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität	124
5.12	Korrelationslänge für $J_2 = 0.1$ und $0.35$ . . . . .	126
5.13	$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_R \rangle$ , dargestellt über $ \mathbf{R} $ , für $J_2 = 0.1$ und $0.35$ . . . . .	127
5.14	Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge . . . . .	129
5.15	$J_2$ -Abhängigkeit der Koeffizienten im Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge	129
5.16	$\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,0} \rangle$ und $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,1} \rangle$ für verschiedene $J_2$ . . . . .	132
5.17	Spezifische Wärme für verschiedene $J_2$ . . . . .	133
5.18	Höhe und die Position des Maximums der spezifischen Wärme . . . . .	134
5.19	Suszeptibilität für verschiedene $J_2$ . . . . .	135
5.20	Vergleich von Experiment und Theorie der Suszeptibilität von $SrZnVO(PO_4)_2$ .	136
5.21	Höhe und Position des Maximums der Suszeptibilität und Vergleich mit experimentellen Daten . . . . .	137
5.22	Korrelationslänge für verschiedene $J_2$ . . . . .	139
5.23	$ \langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{n,m} \rangle  \sqrt{R_{n,m}}$ über $R_{n,m}$ für $J_2 = 1$ bei verschiedenen Temperaturen . . . .	140
5.24	Spin-Stiffness im Grundzustand für verschiedene $J_2$ . . . . .	141
5.25	Vergleich einiger experimenteller und theoretischer Daten der Korrelationslänge .	145

# Abkürzungsverzeichnis

CCM:	Coupled-Cluster-Methode
ED:	Exakte Diagonalisierung
GFM:	Greenfunktionsmethode
HTE:	Hochtemperaturentwicklung
LRO:	long-range order, langreichweitige Ordnung
RGM:	rotationsinvariante Greenfunktionsmethode
RPA:	<i>random-phase-approximation</i> bzw. Tjablikow-Entkopplung
TMRG:	Transfermatrix-Renormalisierungsgruppentheorie



# Kapitel 1

## Einleitung

Magnetismus ist ein Phänomen, welches seit mehreren tausend Jahren praktisch genutzt wird. Bereits im Jahr 1110 v. Chr. zeigen Aufzeichnungen die Nutzung von Kompassen in China. Aus dem alten Griechenland finden sich Erwähnungen des Mechanismus 500 v. Chr. bei Thales von Milet, der die Kraftwirkung von Steinen auf Eisenteilchen beschrieb. Der Fundort dieser Steine bei Magnesia gilt als Namensgeber des Effekts. Es dauerte jedoch noch bis ins 13. Jahrhundert, ehe der Kompass auch im Abendland Anwendung fand. Noch im Mittelalter lieferte die fehlende Erklärung der wirkenden Kraft Raum für eine mystische Zuschreibung von Eigenschaften. So beschrieb der im 13. Jahrhundert lebende florentinische Enzyklopädist Brunetto Latini in seinem Werk "Livre du Trésor" Kompass als "unter dem Einfluss teuflischer Geister" hergestellt. Schließlich veröffentlichte James Clark Maxwell 1864 in seiner Arbeit "A Dynamical Theory of the Electromagnetic Field" eine vollständige Beschreibung der elektromagnetischen Felder [1]. Doch auch so konnte die Existenz magnetischer Materialien nicht erklärt werden, da nach dem Bohr-van-Leeuwen Theorem bei endlichen Temperaturen und in allen angelegten endlichen elektrischen und magnetischen Feldern das magnetische Gesamtmoment der Elektronen eines Systems identisch verschwindet [2]. Auch das 1907 von Weiss zur Lösung des Problems postulierte zusätzliche Molekularfeld [3, 4], welches die kollektive Ausrichtung der einzelnen magnetischen Momente der Elektronen bewirkt, konnte nicht gefunden werden. Somit sind quantenmechanische Modelle notwendig, um Magnetismus in Festkörpern zu beschreiben. Als erstes dieser Art, welches zur mikroskopischen Begründung des Ferromagnetismus vorgeschlagen wurde, gilt das Ising-Modell [5]

$$H = - \sum_{i,j} J_{i,j} \sigma_i \sigma_j - \mu \sum_i h_i \sigma_i.$$

Dieses Modell beschreibt Elementarmagnete, die entweder parallel oder antiparallel in eine Raumrichtung ausgerichtet sind ( $\sigma_{i,j} = \pm 1$ ) und die über eine Kopplungskonstante  $J_{i,j}$  wechselwirken.

Weitere Fortschritte in der mikroskopischen Beschreibung magnetischer Effekte in Festkörpern gelangen 1926, als Heisenberg und Dirac zeitgleich den Einfluss der Symmetrie der Wellenfunktion auf die Energie zweier wechselwirkender Elektronen erkannten. [6, 7]. So lässt sich die antisymmetrische Wellenfunktion solch eines Systems aus einer symmetrischen Orts- und

antisymmetrischen Spinfunktion und umgekehrt aufbauen. Die entsprechenden Singulett- und Triplett-Zustände besitzen eine unterschiedliche Energie [2, 8]. Unter Verwendung der Eigenschaften der Spinoperatoren lässt sich der Energieunterschied durch ein effektives Modell zweier lokalisierter Spins beschreiben, deren Zustand vom Vorzeichen der Wechselwirkungskonstante abhängt. Die Verallgemeinerung dieser Betrachtungen liefert das Heisenberg-Modell [2]

$$H = \sum_{i,j} J_{i,j} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j .$$

Die Annahme des Modells, dass alle anderen Freiheitsgrade außer dem Elektronenspin eingefroren sind, prädestiniert es für die Beschreibung der physikalischen Eigenschaften von Isolatoren. Das Heisenberg-Modell für starre Gitter bedingt demnach, je nach Vorzeichen der Wechselwirkung  $J_{i,j}$ , eine parallele oder antiparallele Ausrichtung der beteiligten lokalisierten Spins  $\mathbf{S}_i$  und  $\mathbf{S}_j$ .

In realen Systemen jedoch existiert ein nicht zu vernachlässigender Überlapp zwischen den Orbitalfunktionen der Elektronen an verschiedenen Gitterplätzen. Im Bild der zweiten Quantisierung können solche Prozesse als virtuelle Hüpfprozesse von Elektronen zwischen zwei Kernen aufgefasst werden. Unter der Berücksichtigung der Coulomb-Abstoßung von Elektronen am selben Gitterplatz  $U$  und bei Beschränkung von Hüpfprozessen auf benachbarte Gitterplätze ergibt sich für ein starres Gitter das Hubbard-Modell [9] in der Formulierung

$$H = -t \sum_{\langle i,j \rangle, \sigma} \left( c_{i,\sigma}^+ c_{j,\sigma} + c_{j,\sigma}^+ c_{i,\sigma} \right) + U \sum_i n_{i,\uparrow} n_{i,\downarrow} .$$

Der Erzeugungsoperator  $c_{i,\sigma}^+$  erzeugt an Gitterplatz  $i$  ein Elektron mit dem Spin  $\sigma$ ,  $c_{i,\sigma}$  vernichtet eins am benachbarten Platz  $i$  mit dem selben Spin. Die Hüpfamplitude  $t > 0$  ist ein Maß für die kinetische Energie, die das Elektron durch den mit dem ersten Term beschriebenen Hüpfprozess von Platz  $i$  zu Platz  $j$  und wieder zurück gewinnt. Die Fermi-Operatoren erfüllen das Pauli-Prinzip.

Neben Anwendungen im Bereich des Bandmagnetismus, der Mott-Isolator-Übergänge und der Hochtemperatursupraleitung lassen sich mit diesem Modell kollektive Spinordnungen und somit die magnetischen Eigenschaften stark lokalisierter Elektronen, wie sie in Isolatoren existieren, gut beschreiben. Die Störungsrechnung zweiter Ordnung liefert bei halber Bandfüllung ein effektives Heisenberg-Modell mit meist antiferromagnetischer Ordnung, dessen Kopplungskonstanten von der Größenordnung  $t^2/U$  sind. Ein Beispiel dieser Austauschprozesse, der Superaustausch als Ursache anti- bzw. ferromagnetischer Fernordnung, wird in der Einleitung zu Kapitel 4 an zwei bestimmten Klassen von Kupratverbindungen erläutert. Weitere Mechanismen wie der Doppelaustausch, der RKKY-Austausch, der anisotrope Austausch oder der kinetische Austausch sind möglich. Deren Beschreibung übersteigt jedoch den Rahmen dieser Arbeit.

Die Untersuchung magnetischer Materialien ist seit Jahrzehnten ein Gebiet intensiver Forschung im Bereich theoretischer und experimenteller Festkörperphysik, wie aus einer überwältigenden Anzahl an Publikationen ersichtlich wird. Einige Highlights dieser Forschung sind die Entdeckung der Hochtemperatursupraleitung (Bednorz und Müller, Nobelpreis 1987) und die des Riesenmagnetowiderstandes (Grünberg und Fert, Nobelpreis 2007).

Das Heisenberg-Modell ist geeignet, die magnetischen Eigenschaften von Isolatoren auf starren Gittern zu berechnen. In der Festkörperphysik werden in den allermeisten Fällen die Gitterstrukturen realer Materialien auf einfache geometrische Strukturen abstrahiert. So ist der erste von Badnorz und Müller gefundene Hochtemperatursupraleiter eine  $p$ -dotierte Variante des Kupferoxids  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  [10], dessen thermodynamische Eigenschaften sich durch ein antiferromagnetisches Spin-1/2-Heisenbergmodell auf dem Quadratgitter beschreiben lassen [11, 12]. Die Beschreibung realer, dreidimensionaler Proben durch niedrigdimensionale Spinmodelle ist möglich, da beispielweise in Kupratverbindungen die dominierende, indirekt über Sauerstoffatome vermittelte Austauschwechselwirkung zwischen den magnetischen Kupferatomen wirkt. Diese liegen je nach atomarem Aufbau der Materialien in ein- oder zweidimensionalen Strukturen vor.

Diese Erkenntnis motivierte die Forschungsgemeinschaft zu einer (erneuten) Untersuchung des Heisenberg-Modells auf dem Quadratgitter und des eindimensionalen Analogons, des Heisenbergmodells auf der linearen Kette, insbesondere unter Berücksichtigung einer zusätzlichen antiferromagnetischen übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung  $J_2$ . Dabei wurden im Zuge der Synthesisierung verschiedenster Kupratverbindungen auch Materialien gefunden, die sich mit dem niedrigdimensionalen ferromagnetischen  $J_1$ - $J_2$ -Heisenbergmodell beschreiben lassen. Insbesondere die theoretische Untersuchung der thermodynamischen Eigenschaften dieser Modelle lag bislang außerhalb des Fokus aktueller Forschung, was zu dieser Arbeit motiviert.

Die zusätzliche Berücksichtigung einer antiferromagnetischen Bindung zwischen übernächsten Nachbarn sorgt für eine Konkurrenz zwischen der ferromagnetischen Wechselwirkung  $J_1$  zwischen nächsten Nachbarn, die sich parallel ausrichten möchten und der antiferromagnetischen übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung  $J_2$ , die eine antiparallele Ausrichtung bewirkt. Dieser Effekt heißt Frustration<sup>1</sup>. Die Frustration bewirkt starke Quantenfluktuationen nahe kritischen Punkten. Die auftretenden Quanteneffekte sind vielfältig. So können die klassischen Übergangspunkte zwischen Grundzustandsphasen modifiziert werden, neue exotische Quantenphasen können im Grundzustand entstehen. Auch der Einfluss auf die thermodynamischen Eigenschaften kann beträchtlich sein. Eine Übersicht der Grundzustandseigenschaften des ferromagnetischen Heisenbergmodells auf der  $J_1$ - $J_2$ -Kette und dem ferromagnetischen  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitter sowie der Eigenschaften einiger Verbindungen, deren thermodynamische Eigenschaften sich durch diese Modelle beschreiben lassen, findet sich in den Einleitungen der entsprechenden Kapitel 4 und 5.

Das Heisenberg-Modell ist ein Quanten-Vielteilchenmodell und damit im Allgemeinen nicht exakt lösbar. Im Rahmen aktueller Forschung existieren einige Näherungsmethoden, die jeweils spezifische Vor- und Nachteile besitzen. Methoden mit sehr hoher Genauigkeit im Vergleich zu exakt lösbaren Modellen sind die Quanten-Monte-Carlo-Methoden [13], die jedoch bei der Behandlung frustrierter Systeme am berühmten “Vorzeichenproblem” leiden [14] sowie die Transfermatrix-Renormalisierungsgruppentheorie[15], welche jedoch auf die Behandlung eindimensionaler Systeme beschränkt ist. Weitere Möglichkeiten zur näherungsweise Berechnung

---

<sup>1</sup>Bei bestimmten Gittertypen kann der Effekt der geometrischen Frustration auftreten. Beispielsweise können sich bei drei lokalisierten Spins auf den Spitzen eines Dreiecks, die jeweils antiferromagnetisch wechselwirken, nicht alle Spins gleichzeitig antiparallel ausrichten.

von Grundzustands- und thermodynamischen Eigenschaften sind Spinwellentheorien wie die modifizierte Spinwellentheorie [16], die auf Bosonisierung der Spinoperatoren mittels Holstein-Primakoff- [17], Dyson-Maleev-Transformation [18, 19] oder der Schwinger-Bosonisierung [20] beruhen. Diese Methoden benötigen in der Regel einen geordneten Ausgangszustand, der Gültigkeitsbereich ist auf niedrige Temperaturbereiche beschränkt.

Für kleine Systeme ist es möglich, die Matrix des Heisenberg-Modells exakt oder mittels Lanczos-Verfahren näherungsweise zu diagonalisieren [21]. Insbesondere bei niedrigen Temperaturen führt dies aufgrund geringer Systemausdehnung zu den finite-size-Effekten, die einen Vergleich mit Resultaten im thermodynamischen Limes erschweren. Weiterhin lassen sich durch die Hochtemperaturentwicklung für den Temperaturbereich  $T/|J| \gtrsim 1$  sehr genaue Resultate erzielen, für niedrigere Temperaturen ist die Methode jedoch ungeeignet [22–24]. Eine sehr genaue Methode zur Bestimmung der Grundzustandseigenschaften von Heisenberg-Systemen ist die Coupled-Cluster-Methode [25–27]. Hier können jedoch bislang keine thermodynamischen Eigenschaften in akzeptabler Genauigkeit berechnet werden.

In dieser Arbeit wird die Greenfunktionsmethode unter Berücksichtigung der Bewegungsgleichung bis einschließlich zweiter Ordnung verwendet. Der Vorteil dieser Methode liegt darin, dass sich die physikalischen Größen sowohl in geordneten als auch in ungeordneten Systemen unabhängig von Dimension und Kopplungsverhältnissen im gesamten Temperaturbereich berechnen lassen. Dafür muss in Kauf genommen werden, dass die Genauigkeit der Ergebnisse für die Korrelationsfunktionen und die spezifische Wärme im Vergleich zu anderen Methoden schlechter ist. Wie in den Kapiteln 4 und 5 gezeigt wird, lassen sich aber sehr wohl korrekte qualitative Aussagen treffen. Zum Vergleich werden in den entsprechenden Bildern Ergebnisse der exakten Diagonalisierung kleiner Systeme, der Hochtemperaturentwicklung und der Transfermatrix-Renormalisierungsgruppentheorie mit den Daten der Greenfunktionsmethode präsentiert. Dargestellt sind die Daten der Hochtemperaturentwicklung in einer  $n - m$ -Padé-Approximation, um deren Konvergenzradius zu vergrößern [28], wobei  $n = m$  verwendet wird.

Die vorliegende Arbeit ist wie folgt aufgebaut: Zunächst werden in Kapitel 2 ausgehend von einer allgemeinen Definition der zweizeitigen Greenschen Funktionen wichtige Eigenschaften hergeleitet. Hierzu zählen die Bewegungsgleichung, deren Lösung die Berechnung der gesuchten Funktion ermöglicht, das Spektraltheorem, mit dessen Hilfe Korrelationsfunktionen aus den Greenschen Funktionen berechnet werden können, und die *linear-response* Theorie, welche einen Zusammenhang zwischen magnetischer Suszeptibilität und Greenscher Funktion liefert.

In Kapitel 3 werden die Bewegungsgleichungen der Greenschen Funktionen  $\langle\langle S_l^z; S_k^z \rangle\rangle$  und  $\langle\langle S_l^+; S_k^- \rangle\rangle$  für das  $S = 1/2$ -Heisenberg-Modell im äußeren Magnetfeld bis zur zweiten Ordnung berechnet. Durch die Anwendung eines speziellen Entkopplungsschemas auf die auftretenden Produkte aus jeweils drei Spinoperatoren ergibt sich ein selbstkonsistent zu lösendes Gleichungssystem für Korrelationsfunktionen und Magnetisierung, aus dessen Ergebnissen sich die relevanten physikalischen Größen spezifische Wärme, Korrelationslänge und Suszeptibilität bestimmen lassen. Weiterhin wird der feldfreie Fall, in dem der Hamiltonoperator volle Rotations- und Translationssymmetrie besitzt, unter Ausnutzung von Symmetrieeigenschaften aus dem bereits entwickelten Gleichungssystem hergeleitet, wobei das Entkopplungsschema für beliebige Spinquantenzahlen  $S$  erweitert wird.

Im Kapitel 4 wird die Methodik auf den eindimensionalen, frustrierten  $J_1$ - $J_2$ -Ferromagneten mit



beliebigem  $S$  angewendet. Neben dem Einfluss der frustrierenden Bindung  $J_2$  auf den Temperaturverlauf der physikalischen Größen im Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes soll insbesondere untersucht werden, wie sich das kritische Verhalten von Suszeptibilität und Korrelationslänge im Limes  $T \rightarrow 0$  durch  $J_2$  verändert. Weiterhin wird untersucht, welchen zusätzlichen Einfluss ein äußeres Magnetfeld auf die thermodynamischen Eigenschaften des Systems im extremen Quantenfall  $S = 1/2$  hat. Hierzu werden bereits publizierte Untersuchungen des unfrustrierten Ferromagneten im Magnetfeld [29, 30] auf einen Parameterbereich  $J_2/|J_1| \leq 0.2$  erweitert. Der Fokus liegt hierbei auf der Frage, wie sich die Maxima von Suszeptibilität und spezifischer Wärme bei einem sich ändernden Magnetfeld verhalten.

In Kapitel 5 wird die rotationsinvariante Greenfunktionsmethode verwendet, um den frustrierten  $J_1$ - $J_2$ -Ferromagneten auf dem Quadratgitter zu untersuchen. Neben dem Grundzustandsphasendiagramm werden die thermodynamischen Eigenschaften des Systems im Parameterbereich sowohl des ferromagnetischen als auch des kollinearen Grundzustandes betrachtet. Auch hier soll neben dem Einfluss von  $J_2$  auf den Temperaturverlauf der physikalischen Größen das kritische Verhalten bei  $T \rightarrow 0$  von Suszeptibilität und Korrelationslänge im ferromagnetischen Regime beziehungsweise von Korrelationslänge im kollinearen Regime analysiert werden. Weiterhin werden diese zwei Größen mit experimentell ermittelten Daten verglichen, was für die Korrelationslänge erstmalig in dieser Arbeit geschieht.

Am Ende jedes Abschnitts, in dem eine bestimmte physikalische Größe untersucht wird, wird ein kurzes Fazit über die wichtigsten Resultate in einem umrandeten Kasten gegeben.

Im Rahmen der Arbeit werden die Resultate der Greenfunktionsmethode mit Daten anderer Methoden verglichen. Die Daten aus der exakten Diagonalisierung endlicher Systeme stammen von Prof. Dr. J. Richter, die Resultate der Coupled-Cluster-Methode wurden von Dipl.-Phys. O. Götze zur Verfügung gestellt. Das Plancksche Wirkungsquantum  $\hbar$  und die Boltzmann-Konstante  $k_B$  werden im Rahmen der gesamten Arbeit zu Eins gesetzt.



## Kapitel 2

# Die Greenschen Funktionen in der Quantenmechanik

Der Inhalt dieses Kapitels ist eine Zusammenstellung von Rechnungen und Resultaten aus den Büchern [31–35].

### 2.1 Definitionen

Die Definition der zweizeitigen retardieren ( $r$ ), avancierten ( $a$ ) und kausalen ( $k$ ) Greenschen Funktionen lautet<sup>1</sup>

$$\begin{aligned}G^r(t, t') &= \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle^r = -i\theta(t - t') \langle[A(t), B(t')]_\eta\rangle, \\G^a(t, t') &= \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle^a = i\theta(t' - t) \langle[A(t), B(t')]_\eta\rangle, \\G^k(t, t') &= \langle\langle A(t); B(t') \rangle\rangle^k = -i\langle T_\eta A(t)B(t') \rangle.\end{aligned}\tag{2.1}$$

$A(t)$  und  $B(t')$  ist die Heisenberg-Darstellung der Operatoren  $A$  und  $B$ , der Ausdruck  $\langle O \rangle$  entspricht dem thermodynamischen Mittelwert der großkanonischen Gesamtheit,

$$\langle O \rangle = \frac{1}{Z_G} \text{Sp} \left\{ e^{-\beta \mathcal{H}} O \right\} \quad \text{mit } Z_G = \text{Sp} \left\{ e^{-\beta \mathcal{H}} \right\}, \quad \mathcal{H} = H - \mu N, \quad \beta = \frac{1}{T}.\tag{2.2}$$

Demnach sind die Greenschen Funktionen (2.1) sowohl zeit- als auch temperaturabhängig. Für den Ausdruck  $[A(t), B(t')]_\eta$  gilt

$$[A(t), B(t')]_\eta = A(t)B(t') - \eta B(t')A(t)$$

---

<sup>1</sup>Der konstante Vorfaktor auf der rechten Seite der hier definierten Greenschen Funktionen wird bei unterschiedlichen Autoren unterschiedlich bezeichnet. Tjablikow[31] benennt beispielsweise die retardierte Greensche Funktion zu  $G^r(t, t') = \theta(t - t') \langle[A(t), B(t')]_\eta\rangle$ . Dort werden auch weitere Definitionen verschiedener Autoren aufgeführt. Die hier verwendeten Darstellungen entstammen Gasser, Heiner, Elk[34], außerdem verwenden zum Beispiel Doniach, Sondheimer[32] und Majlis[33] analoge Definitionen.

mit  $\eta = \pm 1$ . Somit entspricht der Ausdruck für  $\eta = +1$  einem Kommutator, für  $\eta = -1$  einem Antikommutator.  $\eta$  kann unabhängig von der den Operatoren  $A$  und  $B$  zugrundeliegenden Statistik gewählt werden [34].  $\theta(x)$  ist die Heaviside- oder Stufenfunktion

$$\theta(x) = \begin{cases} 1 & \text{für } x > 0 \\ 0 & \text{für } x < 0 \end{cases} ,$$

mit  $T_\eta$  wird der Wicksche Zeitordnungsoperator

$$T_\eta = \theta(t - t') A(t)B(t') + \eta\theta(t' - t) B(t')A(t)$$

bezeichnet.

Da die Spur unter zyklischen Vertauschungen invariant ist,

$$\text{Sp}\{ABC\} = \text{Sp}\{BCA\} = \text{Sp}\{CAB\} ,$$

folgt für gleichzeitige Korrelationsfunktionen

$$\langle A(t)B(t) \rangle = \langle A(t_0)B(t_0) \rangle = \langle AB \rangle . \quad (2.3)$$

Eine wichtige Eigenschaft der Greenschen Funktionen ergibt sich für Systeme, in denen der Hamiltonoperator unabhängig von der Zeit  $t$  ist. Unter Verwendung der Zeitabhängigkeit im Schrödingerbild und unter Berücksichtigung der Invarianz der Spur unter zyklischen Vertauschungen folgt

$$\langle A(t)B(t') \rangle = \langle A(t - t')B \rangle = \langle AB(t' - t) \rangle .$$

Aus den Definitionen der Greenschen Funktionen folgt daher

$$G^j(t, t') = G^j(t - t') \quad \text{mit } j = r, a, k . \quad (2.4)$$

Historisch betrachtet sind Greensche Funktionen Hilfsmittel zur Lösung linearer gewöhnlicher oder partieller Differentialgleichungen

$$Ly(\mathbf{r}, t) = f(\mathbf{r}, t) ,$$

symbolisiert durch den Differentialoperator  $L$ . Die Greensche Funktion ist definiert als die Lösung von  $L$  mit

$$LG(\mathbf{r}, t) = \delta(\mathbf{r})\delta(t) .$$

Eine spezielle Lösung ergibt sich dann durch die Faltung

$$y(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{(2\pi)^{(n+1)/2}} (G * g) = \frac{1}{(2\pi)^{(n+1)/2}} \int_{R^{n+1}} d\mathbf{r}' dt' G(\mathbf{r} - \mathbf{r}', t - t') f(\mathbf{r}', t') ,$$

wobei  $n$  die Raumdimension angibt. Die Definitionen (2.1) heißen verallgemeinerte Greensche Funktionen, da die Kommutatorvariante die Bewegungsgleichung eines Operators unter Einfluss einer kleinen linearen Kraft in der dargestellten Form löst, vgl. hierzu die Darstellungen zur *linear-response*-Theorie in Abschnitt 2.4.

## 2.2 Bewegungsgleichung in Zeit- und Frequenzdarstellung

Zur Berechnung von Greenschen Funktionen sind deren Bewegungsgleichungen von großer Bedeutung. Zur Ableitung der Gleichungen wird zunächst ein abgeschlossenes System angenommen, also die Gültigkeit der Gleichung (2.4), sowie dass die Operatoren  $A$  und  $B$  nicht explizit zeitabhängig sind, also die Differentialgleichung

$$i \frac{d}{dt} A(t) = [A(t), \mathcal{H}]_- \quad (2.5)$$

gilt. Zur Berechnung der Bewegungsgleichung wird der Operator  $i \frac{d}{dt}$  auf die Greenschen Funktionen (2.1) angewendet. Es folgt

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} G^r(t, t') &= \frac{d}{dt} \left( \theta(t - t') \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle \right), \\ i \frac{d}{dt} G^a(t, t') &= -\frac{d}{dt} \left( \theta(t' - t) \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle \right), \\ i \frac{d}{dt} G^k(t, t') &= \frac{d}{dt} \left( \theta(t - t') A(t)B(t') + \eta \theta(t' - t) B(t')A(t) \right). \end{aligned} \quad (2.6)$$

Unter Verwendung von

$$\frac{d}{dt} \theta(t - t') = \delta(t - t') \quad \text{und} \quad \frac{d}{dt} \theta(t' - t) = -\delta(t - t')$$

folgt für die drei definierten Greenschen Funktionen

$$\begin{aligned} i \frac{d}{dt} G^r(t, t') &= \delta(t - t') \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle - \theta(t - t') \left\langle \left[ i \frac{d}{dt} A(t), B(t') \right]_{\eta} \right\rangle, \\ i \frac{d}{dt} G^a(t, t') &= \delta(t - t') \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle + \theta(t' - t) \left\langle \left[ i \frac{d}{dt} A(t), B(t') \right]_{\eta} \right\rangle, \\ i \frac{d}{dt} G^k(t, t') &= \delta(t - t') \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle - \langle T_{\eta} i \frac{d}{dt} A(t) B(t') \rangle. \end{aligned} \quad (2.7)$$

Somit erfüllen alle drei Greenschen Funktionen die selbe Bewegungsgleichung

$$i \frac{d}{dt} \langle \langle A(t); B(t') \rangle \rangle^j = \delta(t - t') \langle [A(t), B(t')]_{\eta} \rangle + \langle \langle [A(t), \mathcal{H}]_- ; B(t') \rangle \rangle^j. \quad (2.8)$$

Der auch höhere Greensche Funktion genannte Ausdruck

$$\tilde{G}^j(t, t') = \langle \langle [A(t), \mathcal{H}]_- ; B(t') \rangle \rangle^j \quad (2.9)$$

erfüllt wegen der Voraussetzung eines abgeschlossenen Systems und der Invarianz der Spur unter zyklischen Vertauschungen

$$\begin{aligned} \langle \langle [A(t), \mathcal{H}]_- ; B(t') \rangle \rangle^j &= \langle \langle [A, \mathcal{H}]_- (t); B(t') \rangle \rangle^j = \langle \langle [A, \mathcal{H}]_- (t - t'); B \rangle \rangle^j \\ &= \langle \langle [A, \mathcal{H}]_- ; B(t' - t) \rangle \rangle^j \end{aligned}$$

und damit

$$\tilde{G}^j(t, t') = \tilde{G}^j(t - t') .$$

Der Übergang zur Energiedarstellung erfolgt mit Hilfe der Fourier-Transformation

$$G^j(t - t') = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega G^j(\omega) e^{-i\omega(t-t')} . \quad (2.10)$$

Für die linke Seite der Bewegungsgleichung (2.8) ergibt sich durch Ausführung der Differentiation und Anwenden von  $\int e^{i\omega'(t-t')} d(t-t')$

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \omega' G^j(\omega') e^{-i(\omega-\omega')(t-t')} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \delta(\omega-\omega') \omega' G^j(\omega') = \omega G^j(\omega) .$$

Die rechte Seite liefert für den ersten Term

$$\int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \delta(t-t') \langle [A(t-t'), B]_{\eta} \rangle e^{i\omega'(t-t')} = \langle [A, B]_{\eta} \rangle$$

und für den zweiten

$$\frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \tilde{G}^j(\omega') e^{-i(\omega-\omega')(t-t')} = \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \tilde{G}^j(\omega') \delta(\omega-\omega') = \tilde{G}^j(\omega)$$

Daraus ergibt sich die Bewegungsgleichung in Energiedarstellung zu

$$\omega \langle \langle A; B \rangle \rangle_{\omega}^j = \langle [A, B]_{\eta} \rangle + \langle \langle [A, \mathcal{H}]_{-}; B \rangle \rangle_{\omega}^j . \quad (2.11)$$

Für die höhere Greensche Funktion lässt sich nun analog eine Bewegungsgleichung der Form

$$\omega \langle \langle [A, \mathcal{H}]_{-}; B \rangle \rangle_{\omega}^j = \langle [[A, \mathcal{H}]_{-}, B]_{\eta} \rangle + \langle \langle [[A, \mathcal{H}]_{-}, \mathcal{H}]_{-}; B \rangle \rangle_{\omega}^j$$

herleiten. Somit liegt im Allgemeinen eine unendliche algebraische Gleichungskette zur Bestimmung von  $\langle \langle A; B \rangle \rangle_{\omega}^j$  vor, ein Überblick über eine Auswahl geeigneter Näherungsverfahren, mit denen sich ein Abbrechen der Gleichungskette bewerkstelligen lässt, wird im Anhang B gegeben.

## 2.3 Das Spektraltheorem

Zunächst soll die Spektraldarstellung der Korrelationsfunktionen

$$\langle A(t)B(t') \rangle \quad \text{und} \quad \langle B(t')A(t) \rangle$$

entwickelt werden. Hierzu wird (2.2) in der Dirac-Notation dargestellt,

$$\langle B(t')A(t) \rangle = \frac{1}{Z_G} \sum_m \langle \phi_m | e^{-\beta \mathcal{H}} B(t') A(t) | \phi_m \rangle .$$

Die Vektoren  $|\phi_m\rangle$  stellen einen vollständigen Satz von Eigenvektoren des Operators  $\mathcal{H}$  mit den Eigenwerten  $E_m$  dar. Mit einem weiteren vollständigen Satz  $|\phi_l\rangle$  folgt

$$\begin{aligned}\langle B(t')A(t)\rangle &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B(t') | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A(t) | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} \\ &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | e^{i\mathcal{H}t'} B e^{-i\mathcal{H}t'} | \phi_l \rangle \langle \phi_l | e^{i\mathcal{H}t} A e^{-i\mathcal{H}t} | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} \\ &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-i(E_m - E_l)(t-t')} e^{-\beta E_m} .\end{aligned}$$

Analog gilt

$$\begin{aligned}\langle A(t)B(t')\rangle &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_l | A(t) | \phi_m \rangle \langle \phi_m | B(t') | \phi_l \rangle e^{-\beta E_l} \\ &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B(t') | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A(t) | \phi_m \rangle e^{-\beta E_l} \\ &= \frac{1}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-i(E_m - E_l)(t-t')} e^{-\beta E_l} .\end{aligned}$$

Mit Hilfe der Spektralfunktion

$$J_{BA}(\omega) = \frac{2\pi}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} \delta(E_m - E_l - \omega) \quad (2.12)$$

lassen sich die Korrelationsfunktionen schreiben als

$$\langle B(t')A(t)\rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J_{BA}(\omega) e^{-i\omega(t-t')} \quad (2.13)$$

und

$$\langle A(t)B(t')\rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J_{BA}(\omega) e^{\beta\omega} e^{-i\omega(t-t')} . \quad (2.14)$$

Hieraus folgt für den Erwartungswert des Antikommutators der beiden Operatoren

$$\langle [A(t)B(t')]_+ \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J_{BA}(\omega) (e^{\beta\omega} + 1) e^{-i\omega(t-t')} . \quad (2.15)$$

Bei der Berechnung des Kommutators ist nun zu beachten, dass aufgrund des Faktors  $e^{\beta\omega} - 1$  nur diejenigen Anteile der Spektralfunktion einen Beitrag leisten, bei denen  $\omega \neq 0$ , also nach Gleichung (2.12)  $E_m \neq E_l$  gilt. Daher folgt für den Erwartungswert des Kommutators

$$\langle [A(t)B(t')]_- \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega J'_{BA}(\omega) (e^{\beta\omega} - 1) e^{-i\omega(t-t')} \quad (2.16)$$

mit

$$J'_{BA}(\omega) = \frac{2\pi}{Z_G} \sum_{m,l(E_m \neq E_l)} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} \delta(E_m - E_l - \omega). \quad (2.17)$$

Durch die Definition

$$J_{BA}^\eta(\omega) = \begin{cases} J'_{BA}(\omega) & \text{für } \eta = +1 \\ J_{BA}(\omega) & \text{für } \eta = -1 \end{cases} \quad (2.18)$$

lässt sich mit der Spektraldarstellung des (Anti-)Kommutators nun die Spektraldarstellung der Greenschen Funktionen  $G^{r,a}(\omega)$  finden<sup>2</sup>. Es gilt

$$\begin{aligned} G^r(\omega) &= -i \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \theta(t-t') \langle [A(t), B(t')]_\eta \rangle e^{i\omega(t-t')} \\ &= -\frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' J_{BA}^\eta(\omega') (e^{\beta\omega'} - \eta) \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \theta(t-t') e^{-i(\omega'-\omega)(t-t')} \end{aligned}$$

Zur Auswertung des Integrals über  $t-t'$  gelingt mit Hilfe der Fourier-Darstellung der Heaviside-Funktion<sup>3</sup>,

$$\theta(t-t') = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{e^{-ix(t-t')}}{x+i\delta},$$

mit

$$\begin{aligned} \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \theta(t-t') e^{-i(\omega'-\omega)(t-t')} &= \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \int_{-\infty}^{\infty} d(t-t') \frac{e^{-i(\omega'+x-\omega)(t-t')}}{x+i\delta} \\ &= i \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{\delta(\omega-x-\omega')}{x+i\delta} = \frac{i}{\omega-\omega'+i\delta}. \end{aligned}$$

Die Spektraldarstellung der retardierten Greenschen Funktion lautet somit

$$G^r(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' J_{BA}^\eta(\omega') \frac{(e^{\beta\omega'} - \eta)}{\omega - \omega' + i\delta}.$$

Für die avancierte Greensche Funktion ergibt sich analog

$$G^a(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' J_{BA}^\eta(\omega') \frac{(e^{\beta\omega'} - \eta)}{\omega - \omega' - i\delta}.$$

Wird nun  $\omega$  nicht mehr als reelle, sondern als komplexe Variable  $\omega \rightarrow \omega + i\delta$  aufgefasst, lassen sich die retardierte und avancierte Greensche Funktion als Zweige einer einheitlichen Funktion  $G(\omega)$  in der komplexen  $\omega$ -Ebene auffassen,

$$G(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' J_{BA}^\eta(\omega') \frac{(e^{\beta\omega'} - \eta)}{\omega - \omega'} = \begin{cases} G^r(\omega) & \text{für } \text{Im } \omega > 0 \\ G^a(\omega) & \text{für } \text{Im } \omega < 0 \end{cases}.$$

<sup>2</sup>Die Spektraldarstellung der kausalen Greenschen Funktion ist schwieriger, da sie nicht in der komplexen Ebene fortgesetzt werden kann (vgl. zum Beispiel [34] oder [31]).

<sup>3</sup>Zum Beweis dieser Darstellung siehe [34] oder [36]



Jetzt soll die Spektralfunktion aus der Greenschen Funktion  $G(\omega)$  berechnet werden. Hierzu wird die Dirac-Formel

$$\lim_{\delta \rightarrow 0^+} \int dx \frac{f(x)}{x \pm i\delta} = \text{P} \int dx \frac{f(x)}{x} \mp i\pi f(0) \quad (2.19)$$

benötigt. P bezeichnet hier den Cauchyschen Hauptwert des Integrals.

Mit der Abkürzung

$$f(\omega') = \frac{1}{2\pi} J_{BA}^\eta(\omega') (e^{\beta\omega'} - \eta)$$

folgt

$$G^r(\omega) = - \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{f(\omega')}{\omega' - \omega - i\delta} = -\text{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{f(\omega')}{\omega' - \omega} - i\pi f(\omega)$$

sowie

$$G^a(\omega) = - \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{f(\omega')}{\omega' - \omega + i\delta} = -\text{P} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{f(\omega')}{\omega' - \omega} + i\pi f(\omega)$$

und damit gilt

$$G^r(\omega) - G^a(\omega) = -2i\pi f(\omega) = -iJ_{BA}^\eta(\omega) (e^{\beta\omega} - \eta) \quad (2.20)$$

bzw. unter Verwendung der Greenschen Funktion  $G(\omega)$  mit einem komplexen  $\omega$

$$\lim_{\delta \rightarrow 0^+} (G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta)) = -iJ_{BA}^\eta(\omega) (e^{\beta\omega} - \eta). \quad (2.21)$$

Die Spektralfunktion lässt sich hiermit durch die Greensche Funktion  $G(\omega)$  in Form von

$$J_{BA}^\eta(\omega) = \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{i(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} \quad (2.22)$$

ausdrücken. Um nun die Korrelationsfunktionen Gleichung (2.13) und Gleichung (2.14) ebenfalls durch die Greenschen Funktion zu berechnen, wird statt  $J_{BA}^\eta(\omega)$  die volle Spektralfunktion  $J_{BA}(\omega)$  benötigt. Hierzu wird Gleichung (2.18) umgeschrieben zu

$$\begin{aligned} J_{BA}(\omega) &= J_{BA}^\eta(\omega) + \frac{1}{2}(\eta + 1)(J_{BA}(\omega) - J'_{BA}(\omega)) \\ &= \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{i(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} + \frac{1}{2}(\eta + 1)C_{AB}\delta(\omega) \end{aligned}$$

mit

$$C_{AB} = \frac{2\pi}{Z_G} \sum_{m,l(E_m=E_l)} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m}.$$

Eingesetzt in die Korrelationsfunktionen ergibt sich das *Spektraltheorem*

$$\begin{aligned} \langle B(t')A(t) \rangle &= \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} e^{-i\omega(t-t')} \\ &+ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{2}(\eta + 1)C_{AB}\delta(\omega) e^{-i\omega(t-t')} \\ &= \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} e^{-i\omega(t-t')} + \frac{1}{4\pi}(\eta + 1)C_{AB} \quad (2.23) \end{aligned}$$

beziehungsweise

$$\begin{aligned}
\langle A(t)B(t') \rangle &= \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} e^{\beta\omega} e^{-i\omega(t-t')} \\
&+ \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \frac{1}{2} (\eta + 1) C_{AB} \delta(\omega) e^{\beta\omega} e^{-i\omega(t-t')} \\
&= \frac{i}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \frac{(G(\omega + i\delta) - G(\omega - i\delta))}{e^{\beta\omega} - \eta} e^{\beta\omega} e^{-i\omega(t-t')} + \frac{1}{4\pi} (\eta + 1) C_{AB}.
\end{aligned}$$

Um die Konstante  $C_{AB}$  ebenfalls durch Greensche Funktionen auszudrücken, wird die Greensche Antikommutatorfunktion im Grenzfall  $\omega \rightarrow 0$  betrachtet:

$$\begin{aligned}
\lim_{\omega \rightarrow 0} \omega G(\omega) &= \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega' \frac{2\pi}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} \frac{\omega (e^{\beta\omega'} + 1)}{\omega - \omega'} \delta(E_m - E_l - \omega') \\
&= \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{1}{2\pi} \frac{2\pi}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle (e^{-\beta E_l} + e^{-\beta E_m}) \frac{\omega}{\omega - E_m - E_l}.
\end{aligned}$$

Wegen

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} = \frac{\omega}{\omega - E_m - E_l} = \begin{cases} 1 & \text{für } E_l = E_m \\ 0 & \text{für } E_l \neq E_m \end{cases}$$

folgt

$$\lim_{\omega \rightarrow 0} \omega G(\omega) = \frac{2}{Z_G} \sum_{m,l} \langle \phi_m | B | \phi_l \rangle \langle \phi_l | A | \phi_m \rangle e^{-\beta E_m} = \frac{1}{\pi} C_{AB}. \quad (2.24)$$

Das Spektraltheorem ist von enormer Wichtigkeit, da es ermöglicht, die Korrelationsfunktionen direkt aus den Greenschen Funktionen zu berechnen. Insbesondere können die in den Bewegungsgleichungen (2.11) auftretenden Korrelationsfunktionen zusammen mit den Greenschen Funktionen selbstkonsistent berechnet werden.

## 2.4 Die magnetische Suszeptibilität

In diesem Kapitel soll erläutert werden, wie sich ein System verhält, das sich durch eine kleine Störung aus dem thermodynamischen Gleichgewicht entfernt. Ausgangspunkt ist ein System im statistischen großkanonischen Gleichgewicht, welches durch den zeitunabhängigen Hamilton-Operator  $\mathcal{H}_0 = H_0 - \mu N$  sowie einen Störterm  $H_1$  mit

$$H_1(t) = - \sum_j A_j F_j(t) \quad (2.25)$$

beschrieben wird.  $F_j(t)$  sind externe, klassische Felder und  $A_j$  die nicht explizit zeitabhängigen Observablen des Systems. Dieser Zusammenhang ist unabhängig von der konkreten Form der Störung durch Linearisierung für kleine Kräfte immer gegeben. Wie in Gleichung (2.2) dargestellt, wird zur Berechnung von Mittelwerten der statistische Operator

$$\langle O \rangle = \text{Sp} \{ \rho O \} \quad \text{mit} \quad \rho = \frac{1}{Z_G} \exp(-\beta \mathcal{H})$$

benötigt, dessen Dynamik durch die *von-Neumann*-Gleichung

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}, \rho]_- = -\frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0 + H_1(t), \rho]_- \quad (2.26)$$

beschrieben wird. Das System soll sich für  $t \rightarrow -\infty$  im Gleichgewicht befinden, also  $F(t = -\infty) = 0$ . Damit folgt als Anfangsbedingung für den statistischen Operator  $\rho(-\infty) = \rho_{eq}$ , wobei  $\rho_{eq}$  den statistischen Operator des ungestörten Systems

$$\rho(-\infty) = \rho_{eq} = \frac{1}{Z_G} \exp(-\beta \mathcal{H}_0)$$

mit  $[\rho_{eq}, \mathcal{H}_0]_- = 0$  bezeichnet. Zur Lösung von Gleichung (2.26) wird die sich durch die Problemstellung anbietende Dirac-Darstellung

$$\rho^D(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) \rho(t) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right)$$

gewählt. Die Zeitableitung liefert

$$\frac{\partial \rho^D(t)}{\partial t} = \frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0, \rho^D(t)]_- + \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) \frac{\partial \rho(t)}{\partial t} \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right)$$

und mit der von-Neumann-Gleichung (2.26)

$$\begin{aligned} \frac{\partial \rho^D(t)}{\partial t} &= \frac{i}{\hbar} [\mathcal{H}_0, \rho^D(t)]_- - \frac{i}{\hbar} \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) [\mathcal{H}_0 + H_1(t), \rho]_- \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) \\ &= -\frac{i}{\hbar} \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) [H_1(t), \rho]_- \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) \\ &= -\frac{i}{\hbar} [H_1^D(t), \rho^D(t)]_- \end{aligned} \quad (2.27)$$

mit

$$H_1^D(t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right) H_1(t) \exp\left(-\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t\right).$$

Eine Integration liefert unter Berücksichtigung der Anfangsbedingung

$$\rho^D(t) - \rho_{eq} = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [H_1^D(t'), \rho^D(t')]_- . \quad (2.28)$$

Da die Störung klein sein soll und somit die Abweichung der Dichtematrix vom Gleichgewichtswert ebenfalls gering ist, bietet sich eine iterative Lösung von Gleichung (2.28) an. Die nullte Ordnung ist

$$\rho^{D,(0)}(t) = \rho_{eq}.$$

Damit wird die Lösung in erster Ordnung zu

$$\rho^{D,(1)}(t) = \rho_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [H_1^D(t'), \rho_{eq}]_-$$

und in zweiter Ordnung zu

$$\begin{aligned} \rho^{D,(2)}(t) &= \rho_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' \left[ H_1^D(t'), \rho_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^{t'} dt'' [H_1^D(t''), \rho_{eq}]_- \right]_- \\ &= \rho_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' [H_1^D(t'), \rho_{eq}]_- + \left( -\frac{i}{\hbar} \right)^2 \int_{-\infty}^t dt' \int_{-\infty}^{t'} dt'' [H_1^D(t'), [H_1^D(t''), \rho_{eq}]_-]_- . \end{aligned}$$

Durch fortlaufendes Einsetzen folgt

$$\begin{aligned} \rho^D(t) &= \rho_{eq} + \sum_{n=1}^{\infty} \left( -\frac{i}{\hbar} \right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\ &\quad \times \left[ H_1^D(t_1), [H_1^D(t_2), \dots [H_1^D(t_n), \rho_{eq}]_-]_- \right]_- \end{aligned}$$

beziehungsweise in der ursprünglichen Heisenberg-Darstellung

$$\begin{aligned} \rho(t) &= \rho_{eq} + \sum_{n=1}^{\infty} \left( -\frac{i}{\hbar} \right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\ &\quad \times \exp \left( -\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) \left[ H_1^D(t_1), [H_1^D(t_2), \dots [H_1^D(t_n), \rho_{eq}]_-]_- \right]_- \exp \left( \frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) . \quad (2.29) \end{aligned}$$

Aufgrund der Linearität und der zyklischen Invarianz der Spurbildung ergibt sich für den dynamische Mittelwert einer beliebigen Observable  $B(t)$

$$\begin{aligned}
\langle B(t) \rangle &= \text{Sp}(\rho(t)B(t)) = \text{Sp}(\rho_{eq}B(t)) + \sum_{n=1}^{\infty} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\
&\times \text{Sp} \left( \exp \left( -\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) \left[ H_1^D(t_1), \left[ H_1^D(t_2), \dots \left[ H_1^D(t_n), \rho_{eq} \right]_- \right]_- \right]_- \exp \left( \frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) B(t) \right) \\
&= \langle B(t) \rangle_{eq} + \sum_{n=1}^{\infty} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\
&\times \text{Sp} \left( \left[ H_1^D(t_1), \left[ H_1^D(t_2), \dots \left[ H_1^D(t_n), \rho_{eq} \right]_- \right]_- \right]_- B^D(t) \right) \\
&= \langle B(t) \rangle_{eq} + \sum_{n=1}^{\infty} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\
&\times \text{Sp} \left( \left[ \dots \left[ [B^D(t), H_1^D(t_1)]_- , H_1^D(t_2) \right]_- , \dots , H_1^D(t_n) \right]_- \rho_{eq} \right)
\end{aligned}$$

und damit

$$\begin{aligned}
\langle B(t) \rangle &= \langle B(t) \rangle_{eq} + \sum_{n=1}^{\infty} \left(-\frac{i}{\hbar}\right)^n \int_{-\infty}^t dt_1 \int_{-\infty}^{t_1} dt_2 \dots \int_{-\infty}^{t_{n-1}} dt_n \\
&\times \left\langle \left[ \dots \left[ [B^D(t), H_1^D(t_1)]_- , H_1^D(t_2) \right]_- , \dots , H_1^D(t_n) \right]_- \right\rangle_{eq}. \quad (2.30)
\end{aligned}$$

Das Symbol  $\langle \dots \rangle_{eq}$  bezeichnet die Mittelung mit der Dichtematrix des Gleichgewichts  $\rho_{eq}$ . Im Rahmen der 1957 von Kubo vorgestellten *linear response theory* wird sich nun in den Gleichungen (2.29) und (2.30) auf den linearen Term beschränkt, also

$$\rho(t) = \rho_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 \exp \left( -\frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) [H_1^D(t_1), \rho_{eq}]_- \exp \left( \frac{i}{\hbar} \mathcal{H}_0 t \right) \quad (2.31)$$

und

$$\langle B(t) \rangle = \langle B(t) \rangle_{eq} - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt_1 \langle [B^D(t), H_1^D(t_1)]_- \rangle_{eq}. \quad (2.32)$$

Ein Vergleich mit der Definition Gleichung (2.1) liefert durch

$$\langle B(t) \rangle = \langle B(t) \rangle_{eq} - \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \langle \langle B^D(t); H_1^D(t_1) \rangle \rangle^r \quad (2.33)$$

einen direkten Zusammenhang zwischen der retardierten Greenschen Funktion und der Reaktion des Systems auf eine äußere Störung.

Mit den in Gleichung (2.25) definierten Störtermen folgt

$$\langle B(t) \rangle = \langle B(t) \rangle_{eq} - \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \langle \langle B^D(t); A_j^D(t_1) \rangle \rangle^r F_j(t_1). \quad (2.34)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Reaktion eines Spinsystems auf ein konstantes äußeres Magnetfeld untersucht. Entsprechend wird als Störterm der Zeeman-Term

$$H_1(t) = -\mathbf{m}\mathbf{H} = -g\mu_B \sum_{\beta} H^{\beta} S^{\beta} \quad \text{mit } \beta = x, y, z \quad (2.35)$$

verwendet.  $S^{\beta}$  sind die Raumkomponenten des Gesamtspinoperators  $\mathbf{S} = \sum_{i,\beta} S_i^{\beta}$ ,  $H^{\beta}$  die Raumkomponenten des konstanten äußeren Magnetfeldes. Nach Gleichung (2.32) ergibt sich somit im Rahmen der *linear response theory* für den Einfluß eines äußeren Magnetfeldes auf die Magnetisierung eines Systems zu

$$\langle S^{\alpha} \rangle = \langle S^{\alpha} \rangle_{eq} - \sum_{\beta} \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \langle \langle S^{\alpha,D}; S^{\beta,D} \rangle \rangle H^{\beta}.$$

mit  $S^{\alpha} = \sum_i S_i^{\alpha}$ .  $\langle S^{\alpha} \rangle_{eq}$  bezeichnet hierbei die Magnetisierung des Systems im thermodynamischen Gleichgewicht. Der Tensor der Kubo-Suszeptibilität lautet demnach

$$\chi^{\alpha,\beta} = - \int_{-\infty}^{\infty} dt_1 \langle \langle m^{\alpha,D}; m^{\beta,D} \rangle \rangle = - \lim_{\omega \rightarrow 0} \langle \langle S^{\alpha}; S^{\beta} \rangle \rangle_{\omega}. \quad (2.36)$$

Die Methode lässt sich auch für räumlich und zeitlich veränderliche Felder anwenden.

## Kapitel 3

# Die Greenschen Funktionen des Heisenberg-Modells

### 3.1 Einleitung

Der Hamilton-Operator des Heisenberg-Modells mit isotroper Kopplung in einem konstanten äußeren Magnetfeld lautet

$$H = \frac{1}{2} \sum_{k,l}^{N_E} \sum_{\alpha,\beta}^{N_A} J_{k\alpha,l\beta} \mathbf{S}_{k\alpha} \mathbf{S}_{l\beta} - \mathbf{m} \mathbf{B}. \quad (3.1)$$

$\alpha$  und  $\beta$  nummerieren die Spins in der Elementarzelle, die Indizes  $k$  und  $l$  bezeichnen die Elementarzellen. Diese stehen symbolisch für den die Elementarzelle beschreibenden Ortsvektor  $k \equiv \mathbf{R}_k = k_1 \mathbf{e}_1 + k_2 \mathbf{e}_2 + \dots$ , wobei die Vektoren  $\mathbf{e}_i$  die Basisvektoren des Gitters darstellen.  $\mathbf{m}$  bezeichnet das magnetische Moment  $\mathbf{m} = g\mu_B \sum_{k\alpha} \mathbf{S}_{k\alpha}$  des Gesamtsystems, wobei  $g$  das gyromagnetische Verhältnis und  $\mu_B$  das Bohrsche Magneton darstellt.  $N_E$  bezeichnet die Anzahl der Elementarzellen des zugrundeliegenden Gitters,  $N_A$  die Anzahl der Atome innerhalb einer Elementarzelle. Die konventionelle Quantisierungsachse des Spins ist die  $z$ -Richtung, daher erfolgt die Wahl der Richtung des Magnetfeldes ebenfalls in  $z$ -Richtung, also  $\mathbf{B} = B_0 \mathbf{e}_z$ . Der Hamilton-Operator wird somit zu

$$H = \frac{1}{2} \sum_{k,l}^{N_E} \sum_{\alpha,\beta}^{N_A} J_{k\alpha,l\beta} \left( \frac{1}{2} \left( S_{k\alpha}^+ S_{l\beta}^- + S_{k\alpha}^- S_{l\beta}^+ \right) + S_{k\alpha}^z S_{l\beta}^z \right) - h S^z \quad (3.2)$$

mit  $h = g\mu_B B_0$  und  $S^z = \sum_{k\alpha} S_{k\alpha}^z$ , dem Gesamt-Spinoperator der  $z$ -Komponente. Die wesentliche energetische Größe ist der Erwartungswert des Hamilton-Operators. Aus

$$[S^z, H]_- = 0,$$

also der Symmetrie des Hamilton-Operators bezüglich Rotationen um die  $z$ -Achse im Spinraum, folgt mit Gleichung (2.5) und, da  $S^z$  nicht explizit zeitabhängig ist, dass der Gesamt-Spinoperator der  $z$ -Komponente eine Erhaltungsgröße repräsentiert.

Betrachtet werden sollen ausschließlich Gitter, durch deren Symmetrie die Relation

$$\langle S_{k\alpha}^+ S_{l\beta}^- \rangle = \langle S_{k\alpha}^- S_{l\beta}^+ \rangle$$

erfüllt wird.

Somit sind die Erwartungswerte der Korrelationsfunktionen  $\langle S_{k\alpha}^- S_{l\beta}^+ \rangle$ ,  $\langle S_{k\alpha}^z S_{l\beta}^z \rangle$  sowie des Gesamtspinoperators der  $z$ -Komponente  $\langle S^z \rangle$  zu berechnen. Hierzu sollen im Folgenden Greensche Funktionen verwendet werden. Dazu ist nur die Berechnung der zwei Greenschen Funktionen

$$\langle\langle S_{k\alpha}^+; S_{l\beta}^- \rangle\rangle \quad \text{und} \quad \langle\langle S_{k\alpha}^z; S_{l\beta}^z \rangle\rangle$$

notwendig, der Erwartungswert  $\langle S^z \rangle$  ergibt sich aus den so aufgestellten Gleichungen, s.a. Kapitel 3.2.

Eine exakte Bestimmung der Greenschen Funktionen ist im Allgemeinen nicht möglich. Ausnahmen sind zum Beispiel die Vernachlässigung von Wechselwirkungen zwischen Magnonen wie bei der linearen Spinwellentheorie oder die Beschränkung von Anregungen im Rahmen der *hard-core boson* Näherung [37]. Wie in Kapitel 2.2 beschrieben, ergibt sich eine unendlich lange Hierarchie von Bewegungsgleichungen für die gesuchten Greenschen Funktionen.

Die hier verwendete Vorgehensweise zur konkreten Berechnung, insbesondere das in den folgenden Kapiteln verwendete Schema zur Entkopplung von Produkten aus drei Spinoperatoren, wurde erstmals 1972 von Kondo und Yamaji unter Anwendung auf die ferro- und antiferromagnetische lineare Kette vorgestellt [38].

Ab 1991 erfolgte dann eine stetige Weiterentwicklung dieser Methodik zunächst durch Shimahara und Takada [39] sowie 1994 durch Barabanov und Beresovsky [40] und 1997 durch Winterfeldt und Ihle [41] durch die Anwendung auf das Quadratgitter mit einer Erhöhung der Zahl der Vertexparameter<sup>1</sup>. Diese zusätzlichen Vertexparameter werden dazu verwendet, bestimmte physikalische Größen wie Magnetisierung oder Suszeptibilität an durch verschiedene alternative Quantenvielteilchenmethoden bestätigte Resultate anzupassen, um die Qualität der Ergebnisse zu verbessern.

Rhodes und Scales entwickelten 1973 erstmals eine Entkopplungsmethode zur Erweiterung des ursprünglichen Formalismus für beliebige Spinquantenzahlen  $S$  [42], angewendet auf die ferromagnetische Kette. Suzuki, Shibata und Ishii entwickelten diese Idee weiter und wendeten sie auf die ferromagnetische Kette und das ferromagnetische Quadratgitter an [43].

Eine erste überzeugende Anwendung der Methode zur ausschließlichen Betrachtung von Grundzustandseigenschaften geschah 1999 durch Ihle, Schindelin, Weiße und Fehske für das räumlich anisotrope antiferromagnetische Quadratgitter [44]. Weitere Modifikationen erfolgten in zwei Arbeiten von 2001. Siurakshina, Ihle und Hayn nutzten die Methode erstmalig, um am Beispiel des antiferromagnetischen  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitters den Einfluss von Frustration auf physikalische Größen zu untersuchen [45]. Ihle, Schindelin und Fehske erweiterten die Methodik anhand von

---

<sup>1</sup>Definition und Nutzen der Vertexparameter werden im Rahmen des Entkopplungsschemas in den folgenden Kapiteln erläutert.



Betrachtungen zum quasi-zweidimensionalen  $XXZ$ -Heisenberg-Modell, in dem die Rotationsinvarianz des Hamiltonoperators gebrochen ist, also zwischen den Korrelationsfunktionen  $\langle S_k^- S_l^+ \rangle$  und  $\langle S_k^z S_l^z \rangle$  unterschieden werden muss [46]. In letzterer Arbeit konnte auch gezeigt werden, dass die Greenfunktionsmethode die Magnetisierung bei endlichen Temperaturen, die in den Betrachtungen der bisher genannten Arbeiten aufgrund des Mermin-Wagner-Theorems nicht auftrat, qualitativ gut beschreibt.

Barabanov *et. al.* gelang es, die Dämpfung von Magnonen zu berücksichtigen, indem die Selbstenergie in einem semiphänomenologischen Ansatz durch eine komplexe Zahl ersetzt wird. Der Imaginärteil entspricht dann der Dämpfung. Angewendet wurde diese Methode beispielsweise auf das antiferromagnetische  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitter [47] und den  $J_1$ - $J_2$ - $J_3$ -Antiferromagneten auf dem Quadratgitter [48].

Eine Arbeit, die an Stelle von anisotropen Kopplungen den *easy-axis single ion* Anisotropie-Term  $-D \sum_i (S_i^z)^2$  berücksichtigt, wurde von Juhász Junger, Ihle und Richter 2005 veröffentlicht [49]. Auch wurde hier die Anwendung der Methode auf endlich große Systeme dargelegt.

In den Jahren 2004 bis 2006 veröffentlichten Schmalfuß *et. al.* drei Arbeiten, die sich mit gestapelten Quadrat- und Kagomé-Gittern befassen [50–52]. Die konzeptionelle Neuerung bestand hier daran, dass erstmals mehr als ein Atom pro Elementarzelle berücksichtigt wurde. Nähere Informationen hierzu sind in [53] zu finden.

Ein neuer Aspekt im Rahmen der Methodik wurde 2004 von Junger, Ihle, Richter und Klümper veröffentlicht, in dem der Einfluss eines externen Magnetfeldes auf den ein- und zweidimensionalen Quantenferromagneten untersucht wurde [29]. Dieser Ansatz wurde 2008 von Antsygina *et. al.* aufgegriffen, die einen alternativen Weg zur Bestimmung der Vertexparameter vorschlugen [54]. Ebenfalls im Jahr 2008 veröffentlichten Juhász Junger, Ihle, Bogacz und Janke eine umfangreiche Arbeit, die die Konzepte für die Beschreibung von Systemen mit beliebiger Spinquantenzahl  $S$  und mit einem äußeren Magnetfeld vereinigt [30].

Im Rahmen der Berechnungen der Greenschen Funktionen werden diskrete mehrdimensionale Fourier-Transformationen der Operatoren der Spinkomponenten zwischen Orts- und Wellenvektorraum durchgeführt. Die Transformationsvorschrift lautet [55]

$$f(S_k^\kappa, S_l^\kappa, \dots) = \sqrt{\frac{1}{N^\gamma}} \sum_{\mathbf{q}} g(S_{\mathbf{q}}^\kappa) \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_k + \mathbf{R}_l + \dots)) , \quad (3.3)$$

beziehungsweise in der Umkehrung

$$g(S_{\mathbf{q}}^\kappa) = \sqrt{\frac{1}{N^\gamma}} \sum_{k,l,\dots} f(S_k^\kappa, S_l^\kappa, \dots) \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_k + \mathbf{R}_l + \dots)) , \quad (3.4)$$

wobei  $\kappa = +, -, z$  und  $\gamma$  die Anzahl der in  $f$  enthaltenen Spinoperatoren bezeichnet. Die Transformationsvorschrift dieser Art impliziert

$$S_i^\kappa = \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_{\mathbf{q}} S_{\mathbf{q}}^\kappa \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_i) , \quad S_{\mathbf{q}}^\kappa = \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_i S_i^\kappa \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_i) . \quad (3.5)$$

In Folge dessen bewirkt eine Adjunktion der Operatoren zusätzlich eine Punktspiegelung im  $\mathbf{q}$ -Raum, also

$$(S_{\mathbf{q}}^+)^{\dagger} = S_{-\mathbf{q}}^- \quad \text{und} \quad (S_{\mathbf{q}}^z)^{\dagger} = S_{-\mathbf{q}}^z,$$

da  $(S_i^+)^{\dagger} = S_i^-$  und  $(S_i^z)^{\dagger} = S_i^z$ . In einigen Arbeiten wie [34, 53] wird eine Fouriertransformation gewählt, in der  $(S_{\mathbf{q}}^+)^{\dagger} = S_{\mathbf{q}}^-$ , erzeugt durch

$$S_i^{\pm} = \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_{\mathbf{q}} S_{\mathbf{q}}^{\pm} \exp(\pm i\mathbf{q}\mathbf{R}_i),$$

gilt.

Dieses Kapitel ist wie folgt gegliedert: In Abschnitt 3.2 wird der Formalismus der Greenschen Funktionen für das Heisenberg-Modell entwickelt. Das Vorgehen entspricht im Wesentlichen dem in [30], wobei die Beschränkung auf die Spinquantenzahlen  $S = 1/2$  vorgenommen wird. Außerdem wird sich auf ein Atom pro Elementarzelle beschränkt. In Abschnitt 3.3 wird der Fall eines rotationsinvarianten Hamilton-Operators, also der Grenzfall  $\hbar = 0$  der Gleichungen aus dem vorherigen Kapitel, betrachtet und die Erweiterung dieses Formalismus der rotationsinvarianten Greenschen Funktionen für eine beliebige Spinquantenzahl  $S$  dargestellt. Im Rahmen der Herleitung der Gleichungen sind zahlreiche Kommutatoren zu berechnen. Hier werden nur die Ergebnisse angegeben, die Berechnungen sind in Anhang A gezeigt.

Im Folgenden wird ein Einheitensystem gewählt, in dem das Plancksche Wirkungsquantum und die Boltzmann-Konstante zu Eins gesetzt werden,  $\hbar = k_B = 1$ .

## 3.2 Greensche Funktionen für Systeme im äußeren Magnetfeld

Der dem Quantenspinsystem mit einem Atom pro Elementarzelle,  $N_A = 1$ , und mit einem konstanten äußeren Magnetfeld zu Grunde liegende Hamilton-Operator des Heisenberg-Modells mit isotroper Kopplung ist

$$H = \frac{1}{2} \sum_{k,l}^N J_{k,l} (S_k^- S_l^+ + S_k^z S_l^z) - hS^z, \quad (3.6)$$

wobei  $N = N_A N_E$  der Anzahl der Atome im System entspricht. Im Folgenden sollen zunächst die Greenschen Funktionen bis zur zweiten Ordnung der Hierarchie der Bewegungsgleichungen unter Verwendung eines speziellen Entkopplungsschemas und daraus die Korrelationsfunktionen longitudinal und transversal zum Magnetfeld bestimmt werden. Anschließend wird unter Verwendung grundlegender Relationen das zu lösende Gleichungssystem entwickelt und die Gleichungen für

die zu berechnenden physikalischen Größen werden hergeleitet.

Bei den Berechnungen der Bewegungsgleichungen treten in den zweiten Zeitableitungen Produkte aus zwei Spinoperatoren mit identischem Gitterplatzindex auf. In [56] wurde gezeigt, dass sich beliebige Produkte aus  $2S + 1$  und mehr Spinoperatoren exakt zu Produkten aus maximal  $2S$  Operatoren transformieren lassen. Für  $S = 1/2$  ergeben sich die Transformationen

$$\begin{aligned} S^- S^z &= \frac{1}{2} S^-, & S^z S^- &= -\frac{1}{2} S^-, & S^+ S^z &= -\frac{1}{2} S^+, & S^z S^+ &= \frac{1}{2} S^+, & (S^z)^2 &= \frac{1}{4}, \\ S^+ S^+ &= S^- S^- = 0. \end{aligned} \quad (3.7)$$

Aus der allgemeinen Spinidentität für Spins am selben Gitterplatz

$$S^- S^+ = S(S+1) - S^z - (S^z)^2, \quad S^+ S^- = S(S+1) + S^z - (S^z)^2 \quad (3.8)$$

folgt damit

$$S^- S^+ = \left( \frac{1}{2} - S^z \right), \quad S^+ S^- = \frac{1}{2} + S^z. \quad (3.9)$$

Die hier dargestellte Methode wurde in [49] entwickelt, dort jedoch nur mit der Summenregel (3.9), der Suszeptibilitätsgleichung (3.59) und einer Formulierung der inneren Energie durch die Greensche Funktion der transversalen Korrelationsfunktionen. In [54] wurde jedoch argumentiert, dass diese Gleichung nur mit der exakten Greenschen Funktion erfüllt ist, in der vorliegenden genäherten Variante jedoch nur näherungsweise. Anstatt dieser Gleichung wird dort die Regularitätsbedingung<sup>2</sup> (3.50) verwendet. Die im Folgenden genutzten weiteren Gleichungen wurden schließlich in [30] erstmals vorgestellt, beschrieben werden sie in Abschnitt 3.2.3.

### 3.2.1 Longitudinale Korrelationsfunktionen

Die Bewegungsgleichung der zur Berechnung der longitudinalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_k^z S_l^z \rangle$  notwendigen Greenschen Funktion lautet

$$\omega \langle \langle S_l^z; S_k^z \rangle \rangle = \langle [S_l^z, S_k^z]_- \rangle + \langle \langle i\dot{S}_l^z; S_k^z \rangle \rangle = \langle \langle i\dot{S}_l^z; S_k^z \rangle \rangle. \quad (3.10)$$

Im verwendeten Formalismus soll nun auch die Bewegungsgleichung der nächst höheren Ordnung berücksichtigt werden. Diese lautet

$$\omega \langle \langle i\dot{S}_l^z; S_k^z \rangle \rangle = \langle [i\dot{S}_l^z, S_k^z]_- \rangle + \langle \langle -\ddot{S}_l^z; S_k^z \rangle \rangle. \quad (3.11)$$

Die Kombination der Gleichungen (3.10) und (3.11) unter Berücksichtigung der Tatsache, dass  $S_l^z$  nicht explizit zeitabhängig ist, also Gleichung (2.5),

$$i \frac{d}{dt} S_l^z = [S_l^z, H]_-$$

---

<sup>2</sup>Die Regularitätsbedingung stellt sicher, dass die Greensche Funktion der transversalen Korrelatoren keine Polstelle besitzt, also kein Phasenübergang in einem Heisenberg-System mit endlichem Magnetfeld auftritt.

gilt, liefert

$$\omega^2 \langle \langle S_l^z; S_k^z \rangle \rangle = \langle [S_l^z, H]_-, S_k^z \rangle + \langle \langle [S_l^z, H]_-, H \rangle_-; S_k^z \rangle. \quad (3.12)$$

Die benötigten Kommutatoren ergeben sich unter Verwendung der fundamentalen Vertauschungsrelationen zwischen den Komponenten des quantenmechanischen Drehimpulses zu

$$[S_l^z, H]_- = i\dot{S}_l^z = \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} (S_m^- S_l^+ - S_l^- S_m^+) \quad (3.13)$$

und damit

$$[[S_l^z, H]_-, S_k^z]_- = \frac{1}{2} J_{k,l} (S_k^- S_l^+ + S_l^- S_k^+) - \delta_{k,l} \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} (S_m^- S_l^+ + S_l^- S_m^+). \quad (3.14)$$

Aus der oben beschriebenen Gittersymmetrie folgt für den Erwartungswert von Gleichung (3.14)

$$\langle [[S_l^z, H]_-, S_k^z]_- \rangle = J_{k,l} \langle S_k^- S_l^+ \rangle - \delta_{k,l} \sum_m^N J_{l,m} \langle S_m^- S_l^+ \rangle. \quad (3.15)$$

Der noch verbleibende Operator  $-\ddot{S}_l^z$  ergibt sich zu

$$\begin{aligned} [[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_m^- S_l^z S_r^+ + S_r^- S_l^z S_m^+ - S_m^- S_l^+ S_r^z - S_r^- S_l^+ S_m^z) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_l^- S_m^+ S_r^z + S_r^z S_m^- S_l^+ - S_r^- S_m^z S_l^+ - S_l^- S_m^z S_r^+). \end{aligned} \quad (3.16)$$

Zur weiteren Auswertung dieses Ausdrucks werden die Terme mit doppelt auftretenden Indizes, also in der ersten Summe die Terme mit  $m = r$  und in der zweiten die Terme mit  $l = r$ , abgespalten. Dies liefert

$$\begin{aligned} [[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (2S_m^- S_m^+ S_l^z - S_m^- S_m^z S_l^+ - S_m^z S_m^+ S_l^-) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (S_l^- S_l^z S_m^+ + S_l^z S_l^+ S_m^- - 2S_l^- S_l^+ S_m^z) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_m^- S_l^z S_r^+ + S_r^- S_l^z S_m^+ - S_m^- S_l^+ S_r^z - S_r^- S_l^+ S_m^z) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_l^- S_m^+ S_r^z + S_r^z S_m^- S_l^+ - S_r^- S_m^z S_l^+ - S_l^- S_m^z S_r^+). \end{aligned}$$

Die Operatoren mit identischem Gitterplatzindex können nun unter Verwendung der Gleichungen (3.7) und (3.9) reduziert werden. Damit folgt

$$\begin{aligned}
[[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (S_l^z - S_m^z) \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_m^- S_l^z S_r^+ + S_r^- S_l^z S_m^+ - S_m^- S_l^+ S_r^z - S_r^- S_l^- S_m^+) \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_l^- S_m^+ S_r^z + S_r^z S_m^- S_l^+ - S_r^- S_m^z S_l^+ - S_l^- S_m^z S_r^+) . \quad (3.17)
\end{aligned}$$

In der bisher exakten Rechnung wird nun eine Näherung verwendet, um die unendlich lange Hierarchie an Bewegungsgleichungen abzurechnen und ein geschlossenes und damit lösbares Gleichungssystem zu erhalten. Hierzu werden die in Gleichung (3.17) auftretenden Operatorprodukte im Sinne einer *mean-field*-Näherung in folgender Form entkoppelt:

$$S_i^- S_j^+ S_k^z = \alpha_{i,j}^{zz} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^z + \alpha_{i,k}^{-z} \langle S_i^- S_k^z \rangle S_j^+ + \alpha_{i,k}^{+z} \langle S_j^+ S_k^z \rangle S_i^- .$$

Aufgrund der in der Einleitung zu diesem Kapitel dargelegten  $S^z$ -Erhaltung gilt

$$\langle S_i^- S_k^z \rangle = \langle S_j^+ S_k^z \rangle = 0 ,$$

damit folgt für das zu verwendende Entkopplungsschema

$$S_i^- S_j^+ S_k^z = \alpha_{i,j}^{zz} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^z . \quad (3.18)$$

Die Vertexparameter  $\alpha_{i,j}^{-+}$  sollen den bei der Entkopplung auftretenden Fehler kompensieren. Diese werden innerhalb des aufzustellenden selbstkonsistenten Gleichungssystems als zusätzliche Parameter betrachtet.

Erstmals verwendet wurde eine Form dieses Entkopplungsschemas 1972 von Kondo und Yamaji [38] und wurde in den folgenden Jahrzehnten in zahlreichen Arbeiten benutzt und erweitert. Die aus diesem Formalismus resultierenden Ergebnisse zeigen eine zum Teil exzellente Übereinstimmung mit experimentellen Messungen und theoretischen Vorhersagen aus anderen Methoden [29, 30, 39, 43–46, 49–52, 54]. Eine detaillierte Diskussion der Stärken und Schwächen dieser Greenfunktionsmethode im Rahmen der betrachteten Systeme erfolgt in den Kapiteln 4 und 5. Diese konkrete Form des Schemas, welches zur Behandlung für Systeme mit gebrochener Rotationssymmetrie gültig ist, wurde erstmals 2004 verwendet [29].

Die Anwendung des dargestellten Entkopplungsschemas liefert für Gleichung (3.17)

$$\begin{aligned}
[[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (S_l^z - S_m^z) \\
&+ \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} (\alpha_{m,r}^{zz} \langle S_m^- S_r^+ \rangle S_l^z - \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle S_r^z) \\
&+ \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} (\alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle S_r^z - \alpha_{l,r}^{zz} \langle S_l^- S_r^+ \rangle S_m^z) . \quad (3.19)
\end{aligned}$$

Hierbei wurde genutzt, dass sich die Gittersymmetrie auch auf die Vertexparameter überträgt, da diese Symmetrie auch für die nicht entkoppelten Operatorprodukte gelten muss.

Anregungen in magnetischen Systemen, die Magnonen, breiten sich im Allgemeinen in Wellenform über das Gitter aus<sup>3</sup> und die relevanten Quantenzahlen werden die  $\mathbf{q}$ -Vektoren. Dies ist neben einer übersichtlicheren Form der Gleichungen der Grund, die Greenschen Funktionen im Wellenvektorraum zu betrachten. Die in den  $\mathbf{q}$ -Raum transformierte Greensche Funktion der longitudinalen Zwei-Spin-Korrelationsfunktionen lautet unter Verwendung der Gleichungen (3.4) und (3.5) und Berücksichtigung der allgemeinen Form Gleichung (2.1)

$$\omega^2 \langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle = \frac{\omega^2}{N} \sum_{l,k} \langle\langle S_l^z; S_k^z \rangle\rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) . \quad (3.20)$$

Einsetzen der Bewegungsgleichung bis zur zweiten Ordnung, Gleichung (3.12), liefert

$$\begin{aligned} \omega^2 \langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle &= \frac{1}{N} \sum_{l,k} \langle\langle [S_l^z, H]_-, S_k^z \rangle\rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) \\ &+ \frac{1}{N} \sum_{l,k} \langle\langle -\ddot{S}_l^z; S_k^z \rangle\rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) . \end{aligned} \quad (3.21)$$

Mit Gleichung (3.15) liefert die Fourier-Transformation für den ersten Summanden

$$M_{\mathbf{q}}^{zz} = -\frac{1}{N} \sum_{l,k} J_{k,l} \langle S_k^- S_l^+ \rangle [1 - \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k))] . \quad (3.22)$$

Die exakte Größe  $M_{\mathbf{q}}^{zz}$  ist das erste spektrale Moment der Greenschen Funktion und im Allgemeinen eine Matrix.<sup>4</sup>

Für den zweiten Summanden folgt aus der allgemeinen Definition der Greenschen Funktionen Gleichung (2.1) und weil in  $-\ddot{S}_l^z$  der Index  $k$  nicht auftaucht

$$\begin{aligned} \frac{1}{N} \sum_{l,k} \langle\langle -\ddot{S}_l^z; S_k^z \rangle\rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) &= \langle\langle \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l -\ddot{S}_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l); \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_k S_k^z \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_k) \rangle\rangle \\ &= \langle\langle -\ddot{S}_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle . \end{aligned}$$

<sup>3</sup>In einigen Gittern treten bei bestimmten Parameterverhältnissen dispersionslose Moden auf, die räumlich lokalisierte Magnonen beschreiben. Siehe hierzu [57].

<sup>4</sup> $M_{\mathbf{q}}^{zz}$  ist eine  $N_A \times N_A$ -Matrix, wobei  $N_A$  die Anzahl der Spins innerhalb einer Elementarzelle ist.

Für die Fourier-Transformation der zweiten Zeitableitung von  $S_l^z$  ergibt sich unter Verwendung der Gleichungen (3.19) und (3.5) somit

$$\begin{aligned}
-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^z &= \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l -\ddot{S}_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) \\
&= \sum_l \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 \sqrt{\frac{1}{N}} S_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) \\
&\quad - \sum_l \frac{1}{2} \sum_m^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m}^2 \frac{1}{N} S_{\mathbf{q}'}^z \exp(-i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{R}_l + i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_m-\mathbf{R}_l)) \\
&\quad + \sum_l \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{m,r}^{zz} \langle S_m^- S_r^+ \rangle \sqrt{\frac{1}{N}} S_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) \\
&\quad - \sum_l \sum_{m,r \neq m}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \frac{1}{N} S_{\mathbf{q}'}^z \exp(-i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{R}_l + i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_r-\mathbf{R}_l)) \\
&\quad + \sum_l \sum_{m,r \neq l}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \frac{1}{N} S_{\mathbf{q}'}^z \exp(-i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{R}_l + i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_r-\mathbf{R}_l)) \\
&\quad - \sum_l \sum_{m,r \neq l}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,r}^{zz} \langle S_l^- S_r^+ \rangle \frac{1}{N} S_{\mathbf{q}'}^z \exp(-i(\mathbf{q}-\mathbf{q}')\mathbf{R}_l + i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_m-\mathbf{R}_l)) .
\end{aligned}$$

In translationssymmetrischen Spinsystemen bildet die Kopplungsmatrix  $J_{i,j}$  eine symmetrische, zyklische Matrix.<sup>5</sup> Eine Eigenschaft dieser Matrizen ist, dass die Spalten- bzw. Zeilensummen immer gleich sind. Die Translationssymmetrie überträgt sich auch auf die Korrelationsfunktionen ebenso wie auf die Exponentialterme der Form  $\exp(i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j))$ . Damit lässt sich bei den Summationen über zwei Indizes ein Summenzeichen an den translationssymmetrischen Größen

---

<sup>5</sup>Die Hauptdiagonalelemente sind bis auf die Forderung der Spurfreiheit unbestimmt [58]. Im Folgenden wird die *Nulleichung*  $J_{i,i} = 0$  verwendet, damit die zirkulante Eigenschaft gilt.

vorbeiziehen und es ergibt sich

$$\begin{aligned}
-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^z &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l S_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) \\
&\quad - \frac{1}{2} \sum_m^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m}^2 \exp(i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)) S_{\mathbf{q}'}^z \frac{1}{N} \sum_l \exp(-i(\mathbf{q} - \mathbf{q}')\mathbf{R}_l) \\
&\quad + \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{m,r}^{zz} \langle S_m^- S_r^+ \rangle \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l S_l^z \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) \\
&\quad - \sum_{m,r \neq m}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle S_{\mathbf{q}'}^z \exp(i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) \frac{1}{N} \sum_l \exp(-i(\mathbf{q} - \mathbf{q}')\mathbf{R}_l) \\
&\quad + \sum_{m,r \neq l}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle S_{\mathbf{q}'}^z \exp(i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) \frac{1}{N} \sum_l \exp(-i(\mathbf{q} - \mathbf{q}')\mathbf{R}_l) \\
&\quad - \sum_{m,r \neq l}^N \sum_{\mathbf{q}'} J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,r}^{zz} \langle S_l^- S_r^+ \rangle S_{\mathbf{q}'}^z \exp(i\mathbf{q}'(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)) \frac{1}{N} \sum_l \exp(-i(\mathbf{q} - \mathbf{q}')\mathbf{R}_l) .
\end{aligned}$$

Mit Gleichung (3.5) und der Darstellungsvariante des Kronecker-Symbols [55]

$$\frac{1}{N} \sum_l \exp(-i(\mathbf{q} - \mathbf{q}')\mathbf{R}_l) = \delta_{\mathbf{q},\mathbf{q}'}$$

folgt schließlich

$$-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^z = (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 S_{\mathbf{q}}^z \quad (3.23)$$

mit

$$\begin{aligned}
(\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 [1 - \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l))] \\
&\quad + \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} [\alpha_{m,r}^{zz} \langle S_m^- S_r^+ \rangle - \alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l))] \\
&\quad + \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} [\alpha_{l,m}^{zz} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) - \alpha_{l,r}^{zz} \langle S_l^- S_r^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l))] .
\end{aligned} \quad (3.24)$$

Somit ist die Hierarchie der Bewegungsgleichungen für die gesuchte Greensche Funktion entkoppelt und es ergibt sich aus der Bewegungsgleichung im Wellenvektorraum (3.21)

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{\omega^2 - (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2} . \quad (3.25)$$



Es wird auch die Bezeichnung des Vorfaktors in Gleichung (3.23) evident, da die Pole  $\pm\omega_{\mathbf{q}}^{zz}$  von Greenschen Funktionen der Dispersionsrelation entsprechen [34].

Das Spektraltheorem Gleichung (2.23) liefert unter Verwendung der Partialbruchzerlegung

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega - \omega_{\mathbf{q}}^{zz})} - \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}(\omega + \omega_{\mathbf{q}}^{zz})}$$

für die Korrelationsfunktionen

$$\begin{aligned} \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle &= \frac{i}{2\pi} \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left( \frac{1}{(\omega + i\delta - \omega_{\mathbf{q}}^{zz}) e^{\beta\omega} - 1} - \frac{1}{(\omega + i\delta + \omega_{\mathbf{q}}^{zz}) e^{\beta\omega} - 1} \right) \\ &\quad - \frac{i}{2\pi} \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \lim_{\delta \rightarrow 0^+} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega \left( \frac{1}{(\omega - i\delta - \omega_{\mathbf{q}}^{zz}) e^{\beta\omega} - 1} - \frac{1}{(\omega - i\delta + \omega_{\mathbf{q}}^{zz}) e^{\beta\omega} - 1} \right) \\ &\quad + \frac{1}{2\pi} C_l. \end{aligned}$$

Die Integrale werden mit der Dirac-Formel Gleichung (2.19) ausgewertet. Die Hauptwertintegrale heben sich gegenseitig auf und es folgt

$$\langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} - \frac{1}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right) + \frac{1}{2\pi} C_l \quad (3.26)$$

beziehungsweise

$$\begin{aligned} \langle S_{\mathbf{q}}^z S_{-\mathbf{q}}^z \rangle &= \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} - \frac{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right) + \frac{1}{2\pi} C_l \\ &= \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} - \frac{1}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right) + \frac{1}{2\pi} C_l = \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle. \end{aligned} \quad (3.27)$$

Zur Berechnung der Konstante  $C_l$  muss die Antikommutatorvariante der Greenschen Funktion betrachtet werden. Hier lautet die Bewegungsgleichung bei zur zweiten Ordnung

$$\begin{aligned} \omega^2 \langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle^{(+)} &= \omega \langle [S_{\mathbf{q}}^z, S_{-\mathbf{q}}^z]_+ \rangle + \langle [i\dot{S}_{\mathbf{q}}^z, S_{-\mathbf{q}}^z]_+ \rangle + (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 \langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle^{(+)} \\ &= \omega \langle S_{\mathbf{q}}^z S_{-\mathbf{q}}^z \rangle + \omega \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + M_{\mathbf{q}}^{zz,+} + (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 \langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle^{(+)} \end{aligned}$$

und damit

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle\rangle^{(+)} = \frac{2\omega \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{\omega^2 - (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2} = \frac{\langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}}{\omega - \omega_{\mathbf{q}}^{zz}} + \frac{\langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle - \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}}{\omega + \omega_{\mathbf{q}}^{zz}}.$$

Die Anwendung des Spektraltheorems Gleichung (2.23) liefert

$$\begin{aligned} \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle &= \left( \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \right) \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} + 1} + \left( \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle - \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \right) \frac{1}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} + 1} \\ &= \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{2}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} + 1} - 1 \right) \end{aligned}$$

und

$$\begin{aligned}\langle S_{\mathbf{q}}^z S_{-\mathbf{q}}^z \rangle &= \left( \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle + \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \right) \frac{1}{1 + e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}} + \left( \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle - \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \right) \frac{1}{1 + e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}}} \\ &= \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle - \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz,+}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{2}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} + 1} - 1 \right).\end{aligned}$$

Somit kann, wie in [29] bereits argumentiert wurde, aus dem Vergleich der Korrelationsfunktionen geschlossen werden, dass  $M_{\mathbf{q}}^{zz,+} = 0$  ist. Damit folgt nach Gleichung (2.24)

$$C_l = \pi \lim_{\omega \rightarrow 0} \omega G^{(+)}(\omega) = \pi \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{2\omega^2 \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle}{\omega^2 - (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2}. \quad (3.28)$$

Bei der Berechnung der Konstante  $C_l$  ist zu beachten, dass die  $\omega_{\mathbf{q}}^{zz}$  bei bestimmten Wellenvektoren  $\mathbf{Q}_i$  zu Null werden kann. Somit folgt für die Konstante<sup>6</sup>

$$C_l = \pi \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{Q}_i} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{2\omega^2 \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle}{\omega^2 - (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2} = 0. \quad (3.29)$$

Zusammenfassend ergibt sich für die Korrelationsfunktionen im Wellenvektorraum

$$\langle S_{\mathbf{q}}^z S_{-\mathbf{q}}^z \rangle = \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} - \frac{1}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right) = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( 1 + \frac{2}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right). \quad (3.30)$$

### 3.2.2 Transversale Korrelationsfunktionen

Die Bewegungsgleichung für die Greensche Funktion  $\langle\langle S_l^+; S_k^- \rangle\rangle$ , die zur Berechnung der transversalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_k^- S_l^+ \rangle$  benötigt wird, lautet

$$\omega \langle\langle S_l^+; S_k^- \rangle\rangle = \langle [S_l^+, S_k^-]_- \rangle + \langle\langle i\dot{S}_l^+; S_k^- \rangle\rangle = 2\langle S_l^z \rangle \delta_{k,l} + \langle\langle i\dot{S}_l^+; S_k^- \rangle\rangle. \quad (3.31)$$

Wie bei den Betrachtungen zu den longitudinalen Korrelationsfunktionen soll auch hier die Bewegungsgleichung der nächsthöheren Ordnung berücksichtigt werden:

$$\omega \langle\langle i\dot{S}_l^+; S_k^- \rangle\rangle = \langle [i\dot{S}_l^+, S_k^-]_- \rangle + \langle\langle -\ddot{S}_l^+; S_k^- \rangle\rangle. \quad (3.32)$$

<sup>6</sup>Die Reihenfolge der Limesbildung ist hier wichtig. Wird sie vertauscht, folgt analog zu [29, 49]

$$C_l = 2\pi \sum_i \langle S_{-\mathbf{q}}^z S_{\mathbf{q}}^z \rangle \delta_{\mathbf{q}, \mathbf{Q}_i}.$$

Die gewählte Reihenfolge lässt sich beispielsweise durch das analoge Vorgehen bei freien Phononen als auch durch die Analogiebetrachtung bei der Berechnung der uniformen statischen Suszeptibilität der RGM begründen [59], wo gilt

$$\chi_{\mathbf{q}}^{+-} = \frac{M_{\mathbf{q}}}{\omega_{\mathbf{q}}^2 - \omega^2}, \quad \lim_{\mathbf{q} \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \chi_{\mathbf{q}}^{+-} = \chi_0^{+-}, \quad \lim_{\omega \rightarrow 0} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow 0} \chi_{\mathbf{q}}^{+-} = 0.$$

Eine sinnvolle Definition dieser Größe bedingt also die gewählte Reihenfolge.

Mit

$$i\dot{S}_l^+ = [S_l^+, H]_- = \sum_m^N J_{l,m} (S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+) + hS_l^+ \quad (3.33)$$

folgt

$$\left[ i\dot{S}_l^+, S_k^- \right]_- = J_{l,k} (S_k^- S_l^+ + 2S_l^z S_k^z) - \delta_{l,k} \left[ \sum_m^N J_{l,m} (S_l^- S_m^+ + 2S_m^z S_l^z) - 2hS_l^z \right] \quad (3.34)$$

und damit für den gesuchten Erwartungswert

$$\langle \left[ i\dot{S}_l^+, S_k^- \right]_- \rangle = J_{l,k} (\langle S_k^- S_l^+ \rangle + 2\langle S_l^z S_k^z \rangle) - \delta_{l,k} \left[ \sum_m^N J_{l,m} (\langle S_l^- S_m^+ \rangle + 2\langle S_m^z S_l^z \rangle) - 2h\langle S_l^z \rangle \right]. \quad (3.35)$$

Für die zweite Zeitableitung

$$\begin{aligned} -\ddot{S}_l^+ &= \left[ i\dot{S}_l^+, H \right]_- = 2ih\dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_r^- S_l^+ S_m^+ + 2S_m^z S_r^z S_l^+ - S_l^- S_r^+ S_m^+ - 2S_m^z S_l^z S_r^+) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_m^- S_r^+ S_l^+ + 2S_l^z S_m^z S_r^+ - S_r^- S_m^+ S_l^+ - 2S_l^z S_r^z S_m^+) \end{aligned} \quad (3.36)$$

ergibt sich durch Abspalten der Terme mit zwei identischen Indizes im dritten und vierten Summanden und Anwendung der Gleichungen (3.7) und (3.9) für den Spezialfall  $S = 1/2$

$$\begin{aligned} -\ddot{S}_l^+ &= \left[ i\dot{S}_l^+, H \right]_- = 2ih\dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ + \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (S_l^+ - S_m^+) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_r^- S_l^+ S_m^+ + 2S_m^z S_r^z S_l^+ - S_l^- S_r^+ S_m^+ - 2S_m^z S_l^z S_r^+) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_m^- S_r^+ S_l^+ + 2S_l^z S_m^z S_r^+ - S_r^- S_m^+ S_l^+ - 2S_l^z S_r^z S_m^+) . \end{aligned} \quad (3.37)$$

Das im Sinne von [38] entwickelte Entkopplungsschema aus [29] lautet für die hier auftretenden Operatorprodukte

$$\begin{aligned} S_i^- S_j^+ S_k^+ &= \alpha_{i,j}^{-+} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^+ + \alpha_{i,k}^{-+} \langle S_i^- S_k^+ \rangle S_j^+ + \alpha_{j,k}^{++} \langle S_j^+ S_k^+ \rangle, \\ S_i^z S_j^z S_k^+ &= \beta_{i,j}^{zz} \langle S_i^z S_j^z \rangle S_k^+ + \beta_{i,k}^{z+} \langle S_i^z S_k^+ \rangle S_j^+ + \beta_{j,k}^{z+} \langle S_j^z S_k^+ \rangle S_i^z. \end{aligned}$$

Die  $S^z$ -Erhaltung verdeutlicht

$$\langle S_j^+ S_k^+ \rangle = \langle S_i^z S_k^+ \rangle = 0,$$

außerdem gilt im Rahmen dieser Näherung  $\beta_{i,j}^{zz} = \alpha_{i,j}^{-+}$  [29]. Damit ergibt sich das zu verwendende Entkopplungsschema zu

$$\begin{aligned} S_i^- S_j^+ S_k^+ &= \alpha_{i,j}^{-+} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^+ + \alpha_{i,k}^{-+} \langle S_i^- S_k^+ \rangle S_j^+, \\ S_i^z S_j^z S_k^+ &= \alpha_{i,j}^{-+} \langle S_i^z S_j^z \rangle S_k^+. \end{aligned}$$

Die Anwendung dieses Schemas auf Gleichung (3.37) und Ausnutzung der Symmetrieeigenschaften liefert

$$\begin{aligned} -\ddot{S}_l^+ &= [i\dot{S}_l^+, H]_- = 2ih\dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ + \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 (S_l^+ - S_m^+) \\ &+ \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \left( \alpha_{m,r}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_m^- S_r^+ \rangle + \langle S_m^z S_r^z \rangle \right) S_l^+ - \alpha_{l,m}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_m^z S_l^z \rangle \right) S_r^+ \right) \\ &+ \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} \left( \alpha_{l,m}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_l^z S_m^z \rangle \right) S_r^+ - \alpha_{l,r}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_r^+ \rangle + \langle S_l^z S_r^z \rangle \right) S_m^+ \right). \end{aligned} \quad (3.38)$$

Derselben Argumentation wie für die longitudinalen Korrelationsfunktionen in Abschnitt 3.2.1 folgend wird auch hier die gesuchte Greensche Funktion per Fourier-Transformation im Frequenzraum betrachtet. Die Transformation der Bewegungsgleichung erster Ordnung, Gleichung (3.31), lautet

$$\begin{aligned} \omega \langle \langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle \rangle &= \omega \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle \langle S_l^+; S_k^- \rangle \rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) \\ &= \frac{1}{N} \sum_l 2 \langle S_l^z \rangle + \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle \langle i\dot{S}_l^+; S_k^- \rangle \rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)). \end{aligned}$$

Demnach gilt für die Bewegungsgleichung der zweiten Ordnung, Gleichung (3.32),

$$\begin{aligned} \omega \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle \langle i\dot{S}_l^+; S_k^- \rangle \rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) &= \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle \langle [i\dot{S}_l^+, S_k^-]_- \rangle \rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) \\ &+ \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle \langle -\ddot{S}_l^+; S_k^- \rangle \rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)). \end{aligned}$$

Für den ersten Summanden ergibt sich unter Verwendung von Gleichung (3.35)

$$M_{\mathbf{q}}^{+-} = -\frac{1}{N} \sum_{k,l} J_{l,k} (\langle S_k^- S_l^+ \rangle + 2 \langle S_l^z S_k^z \rangle) (1 - \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k))) + \frac{1}{N} \sum_l 2h \langle S_l^z \rangle. \quad (3.39)$$

Analog zu den Greenschen Funktionen der longitudinalen Korrelationsfunktionen lässt sich der zweite Summand umschreiben zu

$$\begin{aligned}\langle\langle -\ddot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle &= \langle\langle \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l -\ddot{S}_l^+ \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l); \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_k S_k^- \exp(i\mathbf{q}\mathbf{R}_k) \rangle\rangle \\ &= \frac{1}{N} \sum_{k,l} \langle\langle -\ddot{S}_l^+; S_k^- \rangle\rangle \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)) .\end{aligned}$$

Auch hier ist die Transformation der zweiten Zeitableitung zu betrachten. Hier folgt mit Gleichung (3.38) unter Ausnutzung der Translationssymmetrie

$$-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^+ = \sqrt{\frac{1}{N}} \sum_l -\ddot{S}_l^+ \exp(-i\mathbf{q}\mathbf{R}_l) = \left( (\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 - h^2 \right) S_{\mathbf{q}}^+ + 2hi\dot{S}_{\mathbf{q}}^+$$

mit

$$\begin{aligned}(\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m}^2 [1 - \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l))] \\ &+ \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{m,r}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_m^- S_r^+ \rangle + \langle S_m^z S_r^z \rangle \right) \\ &- \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \alpha_{l,m}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_m^z S_l^z \rangle \right) \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) \\ &+ \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,m}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_l^z S_m^z \rangle \right) \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) \\ &- \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} \alpha_{l,r}^{-+} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_r^+ \rangle + \langle S_l^z S_r^z \rangle \right) \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)) .\end{aligned} \quad (3.40)$$

Somit folgt für die Bewegungsgleichungen erster und zweiter Ordnung

$$\begin{aligned}\omega \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle &= \frac{1}{N} \sum_l 2\langle S_l^z \rangle + \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle , \\ \omega \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle &= M_{\mathbf{q}}^{+-} + \left( (\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 - h^2 \right) \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle + 2h \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle\end{aligned}$$

mit den Lösungen

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}^{+-} + 2\langle S^z \rangle (\omega - 2h)}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} , \quad (3.41)$$

$$\langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle = \frac{\omega M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle (h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} . \quad (3.42)$$

Mit der Partialbruchzerlegung

$$\begin{aligned} \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle &= \frac{\langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} \\ &+ \frac{\langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{(\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} \end{aligned}$$

sowie

$$\begin{aligned} \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle &= \frac{(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) \left[ \langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right]}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} \\ &+ \frac{(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) \left[ \langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right]}{(\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} \end{aligned}$$

folgt aus dem Spektraltheorem Gleichung (2.23) für die Korrelationsfunktionen

$$\langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle = \frac{\langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{e^{\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{\langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{e^{\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{1}{2\pi} C_{t_0}, \quad (3.43)$$

$$\begin{aligned} \langle S_{-\mathbf{q}}^- i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+ \rangle &= \frac{(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{e^{\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \left[ \langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right] \\ &+ \frac{(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{e^{\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \left[ \langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right] + \frac{1}{2\pi} C_{t_1} \end{aligned} \quad (3.44)$$

beziehungsweise

$$\begin{aligned} \langle S_{\mathbf{q}}^+ S_{-\mathbf{q}}^- \rangle &= \frac{\langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{1 - e^{-\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})}} + \frac{\langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{1 - e^{-\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})}} + \frac{1}{2\pi} C_{t_0}, \\ \langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+ S_{-\mathbf{q}}^- \rangle &= \frac{(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{1 - e^{-\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})}} \left[ \langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right] \\ &+ \frac{(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{1 - e^{-\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})}} \left[ \langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right] + \frac{1}{2\pi} C_{t_1}. \end{aligned}$$

Zur Berechnung der Konstanten  $C_{t_0}$  und  $C_{t_1}$  müssen die Antikommutatorvarianten der entsprechenden Greenschen Funktionen betrachtet werden. Die Bewegungsgleichungen lauten hier

$$\begin{aligned} \omega \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} &= \langle [S_{\mathbf{q}}^+, S_{-\mathbf{q}}^-]_+ \rangle + \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} \\ &= 2\langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle + \frac{2}{N} \sum_l \langle S_l^z \rangle + \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)}, \\ \omega \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} &= \langle [i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+, S_{-\mathbf{q}}^-]_+ \rangle + \left( (\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 - h^2 \right) \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} + 2h \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} \\ &= M_{\mathbf{q}}^{+-,+} + \left( (\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 - h^2 \right) \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} + 2h \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} \end{aligned}$$

und die Greenschen Funktionen damit

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} = \frac{M_{\mathbf{q}}^{+-,+} + 2(\langle S^z \rangle + \langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle) (\omega - 2h)}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}, \quad (3.45)$$

$$\langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} = \frac{\omega M_{\mathbf{q}}^{+-,+} - 2(\langle S^z \rangle + \langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle) (h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{(\omega - h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) (\omega - h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}. \quad (3.46)$$

An den Stellen  $\omega_{\mathbf{q}}^{+-} = h$  kann die Greensche Funktion formal eine Polstelle besitzen. Da eine divergierende Greensche Funktion und damit Suszeptibilität einen Phasenübergang indiziert, dieser bei endlichem Magnetfeld jedoch nicht auftreten kann, wird der Pol durch die später in Gleichung (3.50) diskutierte Regularitätsbedingung aufgehoben. Daher kann bei der Betrachtung der Konstanten  $C_{t_0}$  und  $C_{t_1}$  dieser Punkt ausgeschlossen werden. Somit folgt für die Konstanten aus dem Spektraltheorem (2.24)

$$C_{t_0} = \pi \lim_{\omega \rightarrow 0} \omega \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} = 0$$

sowie

$$C_{t_1} = \pi \lim_{\omega \rightarrow 0} \omega \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle\rangle^{(+)} = 0.$$

Zusammenfassend ergibt sich demnach

$$\langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle = \frac{\langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{e^{\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{\langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h)}{e^{\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \quad (3.47)$$

sowie

$$\begin{aligned} \langle S_{-\mathbf{q}}^- i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+ \rangle &= \frac{(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{e^{\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \left[ \langle S^z \rangle + \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right] \\ &+ \frac{(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})}{e^{\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \left[ \langle S^z \rangle - \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h) \right]. \end{aligned} \quad (3.48)$$

### 3.2.3 Berechnung der physikalischen Größen

Die transversalen Korrelationsfunktionen im Ortsraum ergeben sich aus der Fouriertransformation von Gleichung (3.47) zu

$$\langle S_k^- S_l^+ \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{A_1}{e^{\beta(h+\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{A_2}{e^{\beta(h-\omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \right) e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)} \quad (3.49)$$

mit

$$A_{1,2} = \langle S^z \rangle \pm \frac{1}{2\omega_{\mathbf{q}}^{+-}} (M_{\mathbf{q}}^{+-} - 2\langle S^z \rangle h).$$

Wie schon in Abschnitt 3.2.2 erwähnt, kann bei Feldstärken, bei denen bei bestimmten  $\mathbf{q}_c$ , wo  $h = \omega_{\mathbf{q}_c}^{+-}$  gilt, eine Divergenz in der Greenschen Funktion auftreten, welche einen Phasenübergang anzeigt. Diese Divergenz zeigt sich nun auch in den transversalen Korrelationsfunktionen. Da bei endlichen Feldstärken kein Phasenübergang auftritt, müssen diese Größen für beliebige  $\mathbf{q}$  endlich sein. Dies erfordert  $A_2 = 0$  bei  $\mathbf{q} = \mathbf{q}_c$  und damit die Gültigkeit der Regularitätsbedingung

$$4h\langle S^z \rangle = M_{\mathbf{q}_c}^{+-}. \quad (3.50)$$

Die longitudinalen Korrelationsfunktionen lassen sich aus der Fouriertransformation von Gleichung (3.30) berechnen,

$$\langle S_l^z S_k^z \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{0}} C_{\mathbf{q}}^{zz} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)} + C^{zz} \quad (3.51)$$

mit

$$C_{\mathbf{q}}^{zz} = \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{2\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} \left( 1 + \frac{2}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}^{zz}} - 1} \right).$$

Analog zur Abspaltung der Grundzustandsterme bei der Behandlung der Bose-Einstein-Kondensation wird der Kondensatterm

$$C^{zz} = \frac{1}{N} C_{\mathbf{q}=\mathbf{0}}^{zz} = \frac{1}{N} \sum_i \langle S_0^z S_i^z \rangle \quad (3.52)$$

abgespalten. In diesem Fall kann  $C_{\mathbf{q}=\mathbf{0}}^{zz}$  mit

$$\frac{1}{N} C_{\mathbf{q}=\mathbf{0}}^{zz} \approx \frac{1}{N} \left( T \frac{M_{\mathbf{0}}^{zz}}{(\omega_{\mathbf{0}}^{zz})^2} + \frac{1}{12} \frac{M_{\mathbf{0}}^{zz}}{T} \right) = \frac{T}{N} \chi_{\mathbf{0}}^{zz} = C^{zz} \quad (3.53)$$

nach kleinen  $\omega_{\mathbf{0}}^{zz}$  entwickelt werden, was einen Ausdruck für den Kondensatterm für endliche Systeme liefert.  $\chi_{\mathbf{0}}^{zz}$  ist die Kubo-Suszeptibilität, siehe unten.

Die Korrelationsfunktionen müssen die Summenregel Gleichung (3.9) erfüllen. Somit gilt

$$\langle S_i^- S_i^+ \rangle = \frac{1}{2} - \langle S^z \rangle. \quad (3.54)$$

Außerdem muss die Relation

$$\langle S_0^z S_0^z \rangle = S^2 = \frac{1}{4} \quad (3.55)$$

erfüllt sein. Eine weitere Summenregel ergibt sich, indem  $S_l^-$  von links an Gleichung (3.33) multipliziert wird und die Gleichungen (3.7) und (3.9) verwendet werden,

$$S_l^- i\dot{S}_l^+ = \sum_m J_{l,m} \left( \frac{1}{2} S_l^- S_m^+ - S_m^z \left( \frac{1}{2} - S_l^z \right) \right) + h S_l^- S_l^+.$$



Der sich ergebende Erwartungswert kann mit der Fouriertransformation von Gleichung (3.48) verglichen werden, woraus sich die zweite Summenregel

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) A_1}{e^{\beta(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-}) A_2}{e^{\beta(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \right) = \sum_m J_{l,m} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_m^z S_l^z \rangle - \frac{1}{2} \langle S^z \rangle \right) + \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{h A_1}{e^{\beta(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} + \frac{h A_2}{e^{\beta(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \right)$$

beziehungsweise

$$\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \left( \frac{(\omega_{\mathbf{q}}^{+-}) A_1}{e^{\beta(h + \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} - \frac{(\omega_{\mathbf{q}}^{+-}) A_2}{e^{\beta(h - \omega_{\mathbf{q}}^{+-})} - 1} \right) = \sum_m J_{l,m} \left( \frac{1}{2} \langle S_l^- S_m^+ \rangle + \langle S_m^z S_l^z \rangle - \frac{1}{2} \langle S^z \rangle \right) \quad (3.56)$$

ergibt.

Eine wichtige physikalische, sehr gut durch experimentelle Messungen zugängliche Größe ist die isotherme Suszeptibilität. Mit den Definitionen aus Abschnitt 3.1 gilt

$$\chi_T^{zz} = \left( \frac{\partial \langle m^z \rangle}{\partial B^z} \right)_T = \left( \frac{\partial \langle S^z \rangle}{\partial h} \right)_T = \left( \frac{\partial}{\partial h} \frac{1}{Z_G} \text{Sp} \left\{ \sum_i S_i^z e^{-\beta(H_0 - h \sum_j S_j^z)} \right\} \right)_T,$$

und damit

$$\chi_T^{zz} = \frac{1}{T} \left( \sum_{i,j} \langle S_i^z S_j^z \rangle - \sum_{i,j} \langle S_i^z \rangle \langle S_j^z \rangle \right).$$

In translationssymmetrischen Systemen ergibt sich

$$\chi_{T,N}^{zz} = \frac{1}{N} \chi_T^{zz} = \frac{1}{T} \left( \sum_j \langle S_0^z S_j^z \rangle - N \langle S^z \rangle^2 \right) = \frac{1}{T} \sum_j \tilde{C}_j = \frac{1}{T} \tilde{C}_{\mathbf{q}=\mathbf{0}}$$

mit  $\tilde{C}_j = \langle S_0^z S_j^z \rangle - \langle S^z \rangle^2$ , dessen fourier-transformierter Ausdruck  $\tilde{C}_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} = C_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} - N \langle S^z \rangle^2 \delta_{\mathbf{q},\mathbf{0}}$  und der isotherme Suszeptibilität pro Spin  $\chi_{T,N}^{zz}$ . Hieraus lässt sich im thermodynamischen Limes mit Gleichung (3.52) durch

$$\frac{1}{N} \sum_j \langle S_i^z S_j^z \rangle = C^{zz} = \langle S^z \rangle^2 \quad (3.57)$$

ein Ausdruck für den Kondensatterm ablesen.

Schließlich lässt sich durch [30, 59]

$$\tilde{C}_{\mathbf{q}=\mathbf{0}} = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \tilde{C}_{\mathbf{q}} = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} C_{\mathbf{q}}$$

ein Zusammenhang zwischen isothermer und Kubo-Suszeptibilität im Wellenvektorraum finden, welche nach den Gleichungen (2.36) und (3.25)

$$\chi_{\mathbf{q}}^{zz} = - \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \lim_{\omega \rightarrow 0} \langle \langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle \rangle = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \frac{M_{\mathbf{q}}^{zz}}{(\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2} \quad (3.58)$$

lautet. Es folgt mit der Entwicklung (3.53)

$$\chi_{T,N}^{zz} = \frac{1}{T} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} C_{\mathbf{q}} = \frac{1}{T} T \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \frac{M_{\mathbf{0}}^{zz}}{(\omega_{\mathbf{0}}^{zz})^2} = \chi_{\mathbf{0}}^{zz}, \quad (3.59)$$

womit im Rahmen dieser Theorie beide Suszeptibilitäten übereinstimmen.

Die Gleichungen für die Korrelationsfunktionen (3.49) und (3.51) sowie die zwei Summenregeln (3.54) und (3.56), die Regularitätsbedingung (3.50) und die Suszeptibilitätsgleichung (3.59) ergeben ein Gleichungssystem, welches sich geschlossen lösen lässt. Im Allgemeinen reicht die Zahl der Gleichungen nicht aus, um sämtliche bei der Entkopplung eingeführten Vertexparameter zu bestimmen. Wie mit diesem Problem umgegangen wird, wird bei der Anwendung auf das eindimensionale System im Kapitel 4.2 erläutert.

### 3.3 Grenzfall $h = 0$ , rotationsinvariante Greensche Funktionen für beliebige Quantenzahlen $S$

Da im Fall  $h = 0$  im Hamilton-Operator des Heisenberg-Modells mit isotroper Kopplung,

$$H = \frac{1}{2} \sum_{k,l}^N J_{k,l} (S_k^- S_l^+ + S_k^z S_l^z), \quad (3.60)$$

der symmetriebrechende Term verschwindet, gilt volle Rotationssymmetrie im Spinraum. Also ist keine Richtung ausgezeichnet und es folgt insbesondere, dass aufgrund der Symmetrie  $S_i^z \rightarrow -S_i^z$  der Erwartungswert der  $z$ -Komponente an jedem Gitterplatz verschwindet,

$$\langle S_i^z \rangle = 0.$$

Es ist anzumerken, dass trotz Rotationsinvarianz durch eine spontane Symmetriebrechung im System Fernordnung auftreten kann [60]. Im Rahmen der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode äußert sich diese in einer endlichen Korrelation von Spins auf unendlich weit entfernten Gitterplätzen und damit in einer nichtverschwindenden Konstante im Spektraltheorem Gleichung (2.23), wie in Abschnitt 3.3.2 dargestellt wird. Die Methode ist somit auch auf un- oder kurzreichweitig geordnete Systeme wie Spinflüssigkeiten anwendbar.

Ebenfalls folgt aus der Rotationsinvarianz, dass auch die Korrelationsfunktionen unabhängig von den Richtungskomponenten sein müssen, insbesondere

$$\langle S_i^x S_j^x \rangle = \langle S_i^y S_j^y \rangle = \langle S_i^z S_j^z \rangle$$

beziehungsweise

$$\frac{1}{4} \left( \langle S_i^+ S_j^- \rangle + \langle S_i^- S_j^+ \rangle \right) = \frac{1}{2} \langle S_i^- S_j^+ \rangle = \langle S_i^z S_j^z \rangle.$$

Im Unterschied zu den bisherigen Betrachtungen im äußeren Magnetfeld wird die rotationsinvariante Greenfunktionsmethode für beliebige Quantenzahlen  $S$  verallgemeinert. Dies geschieht durch ein erweitertes Entkopplungsschema, welches in Kapitel 3.3.1 vorgestellt wird.

### 3.3.1 Korrelationsfunktionen

Die Symmetrie der Korrelationsfunktionen sollte sich aufgrund des Spektraltheorems auch in den Greenschen Funktionen (3.25) und (3.41) wiederfinden. Ausnutzen der Symmetrieeigenschaften liefert für die Momentenmatrizen (3.22) und (3.39)

$$M_{\mathbf{q}}^{+-} = 2M_{\mathbf{q}}^{zz} = -\frac{2}{N} \sum_{l,k} J_{k,l} \langle S_k^- S_l^+ \rangle [1 - \exp(-i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k))] \equiv M_{\mathbf{q}}. \quad (3.61)$$

Bei den zweiten Zeitableitungen  $-\ddot{S}_l^z$ , Gleichung (3.16), und  $-\ddot{S}_l^+$ , Gleichung (3.36), werden wieder die Summanden mit identischen Indizes abgespalten und das Entkopplungsschema

$$\begin{aligned} S_i^- S_j^+ S_k^z &= \alpha_{i,j}^{zz} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^z, \\ S_i^- S_j^+ S_k^+ &= \alpha_{i,j}^{-+} \langle S_i^- S_j^+ \rangle S_k^+ + \alpha_{i,k}^{-+} \langle S_i^- S_k^+ \rangle S_j^+, \\ S_i^z S_j^z S_k^+ &= \alpha_{i,j}^{-+} \langle S_i^z S_j^z \rangle S_k^+ \end{aligned}$$

wird angewendet. Im Gegensatz zu den Betrachtungen für  $S = 1/2$  lassen sich die Ausdrücke mit den identischen Gitterplatz-Indizes für beliebige  $S$  nicht weiter vereinfachen. Im Folgenden wird auch für diese Terme ein Entkopplungsschema verwendet, welches 1973 von Rhodes und Scales vorgeschlagen [42] und in weiteren Arbeiten erfolgreich angewendet<sup>7</sup> wurde [30, 49, 62],

$$\begin{aligned} S_m^- S_m^+ S_l^+ &= \langle S_m^- S_m^+ \rangle S_l^+ + \lambda_{l,m}^{+-} \langle S_m^- S_l^+ \rangle S_m^+, \\ S_m^z S_m^z S_l^+ &= \langle S_m^z S_m^z \rangle S_l^+ = \frac{1}{2} \langle S_m^- S_m^+ \rangle S_l^+, & S_m^z S_l^z S_m^+ &= \lambda_{l,m}^{+-} \langle S_m^z S_l^z \rangle S_m^+, \\ S_m^- S_m^+ S_l^z &= \langle S_m^- S_m^+ \rangle S_l^z, & S_m^- S_m^z S_l^+ &= \lambda_{l,m}^{zz} \langle S_m^- S_l^+ \rangle S_m^z. \end{aligned}$$

Zusammen mit der aus Gleichung (3.8) folgenden und aufgrund der Translationssymmetrie für alle Gitterplätze geltenden Eigenschaft

$$\langle S_i^- S_i^+ \rangle + \langle S_i^z S_i^z \rangle = \frac{3}{2} \langle S_i^- S_i^+ \rangle = S(S+1) \quad (3.62)$$

folgt analog zu der in Kapitel (3.2.1) detailliert ausgeführten Fourier-Transformation der zweiten Zeitableitung

$$-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^+ = (\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 S_{\mathbf{q}}^+ \quad (3.63)$$

---

<sup>7</sup>In anderen Arbeiten wie [43, 61] wird eine leicht modifizierte Form der Entkopplung verwendet, in der die Korrelationsfunktionen am selben Gitterplatz ebenfalls mit einem Parameter  $\lambda$  multipliziert werden.

mit

$$\begin{aligned}
(\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 &= \sum_m^N J_{l,m}^2 \left( \frac{2}{3} S(S+1) + \lambda_{l,m}^{-+} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \right) [1 - \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l))] \\
&+ \sum_{m,r \neq m}^N J_{l,m} J_{l,r} \left[ \alpha_{m,r}^{-+} \langle S_m^- S_r^+ \rangle - \alpha_{l,m}^{-+} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) \right] \\
&+ \sum_{m,r \neq l}^N J_{l,m} J_{m,r} \left[ \alpha_{l,m}^{-+} \langle S_l^- S_m^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_r - \mathbf{R}_l)) - \alpha_{l,r}^{-+} \langle S_l^- S_r^+ \rangle \exp(i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)) \right].
\end{aligned} \tag{3.64}$$

Analog ergibt sich

$$-\ddot{S}_{\mathbf{q}}^z = (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 S_{\mathbf{q}}^z,$$

wobei die aus der Rotationssymmetrie des Hamiltonoperators folgende Bedingung

$$(\omega_{\mathbf{q}}^{+-})^2 = (\omega_{\mathbf{q}}^{zz})^2 \equiv (\omega_{\mathbf{q}})^2$$

dann erfüllt ist, wenn die Vertexparameter  $\alpha_{l,m}$  und  $\lambda_{l,m}$  ihre Richtungsabhängigkeit verlieren, also

$$\alpha_{l,m}^{+-} = \alpha_{l,m}^{zz} \equiv \alpha_{l,m} \quad \lambda_{l,m}^{+-} = \lambda_{l,m}^{zz} \equiv \lambda_{l,m}$$

gilt. Damit folgt für die gesuchten Greenschen Funktionen

$$\langle \langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle \rangle = \frac{1}{2} \langle \langle S_{\mathbf{q}}^z; S_{-\mathbf{q}}^z \rangle \rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}}{\omega^2 - (\omega_{\mathbf{q}})^2}. \tag{3.65}$$

Aufgrund der Rotationssymmetrie spielt es keine Rolle, ob die Greenschen Funktionen in Termen von  $\langle S_{\mathbf{q}}^z S_{-\mathbf{q}}^z \rangle$  oder  $\langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle$  ausgedrückt werden. Hier wird die letztere Variante gewählt, da in vielen in der Einleitung 3.1 aufgeführten Arbeiten die Greensche Funktion  $\langle \langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^- \rangle \rangle$  zur Berechnung der Korrelationsfunktionen herangezogen wird. Ausnahmen sind beispielsweise [42, 43, 61].

Die Anwendung des Spektraltheorems (2.23) liefert, wie in Kapitel 3.2.1 explizit gezeigt,

$$\langle S_{-\mathbf{q}}^- S_{\mathbf{q}}^+ \rangle = \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \left( \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}} - 1} - \frac{1}{e^{-\beta\omega_{\mathbf{q}}} - 1} \right) = \langle S_{\mathbf{q}}^+ S_{-\mathbf{q}}^- \rangle. \tag{3.66}$$

### 3.3.2 Berechnung der physikalischen Größen

Die Fouriertransformation der Korrelationsfunktionen in den Ortsraum lauten

$$\langle S_k^- S_l^+ \rangle = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q} \neq \mathbf{Q}_i} C_{\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)} + \frac{1}{N} \sum_i C e^{i\mathbf{Q}_i(\mathbf{R}_l - \mathbf{R}_k)} \tag{3.67}$$

mit

$$C_{\mathbf{q}} = \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \left( 1 + \frac{2}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}} - 1} \right).$$

Auch hier werden in Analogie zum Vorgehen bei der Bose-Einstein-Kondensation diejenigen Terme abgespalten, bei denen  $\omega_{\mathbf{Q}} = 0$  gilt. Anders als im System mit äußerem Feld können die  $\mathbf{Q} \neq 0$  nicht ausgeschlossen werden. Die spontane Symmetriebrechung ist bei  $T < T_c$  verbunden mit einer Divergenz in der Suszeptibilität bei  $\mathbf{q} = \mathbf{Q}$ ,

$$\chi_{\mathbf{Q}}^{-1} = \frac{2\omega_{\mathbf{Q}}^2}{M_{\mathbf{Q}}} = 0. \quad (3.68)$$

Dies geschieht bei den Wellenvektoren, bei denen die Kondensation auftritt. Hierbei ist zu beachten, dass immer  $\omega_{\mathbf{0}} = 0$  gilt, der Quotient  $\omega_{\mathbf{0}}^2/M_{\mathbf{0}}$  aber nur bei ferromagnetischer Ordnung des Systems zu Null wird. Demnach wird dieser Beitrag zum Kondensatterm im thermodynamischen Limes verschwinden.

Da  $\langle S^z \rangle = 0$  gesetzt wurde, muss das mögliche Auftreten von Fernordnung auf eine andere Art untersucht werden. Eine endliche Magnetisierung ergibt sich, wenn der Systemzustand die Rotationssymmetrie des Hamiltonoperators bricht, also eine spontane Symmetriebrechung auftritt. Der Ordnungsparameter wird im Rahmen dieser Theorie bestimmt durch [41, 51, 52, 62, 63]

$$m^2 = \frac{1}{N} \sum_l \langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_l \rangle e^{-i\mathbf{Q}_i \mathbf{R}_l} = \frac{3}{2} C_{\mathbf{Q}_i}. \quad (3.69)$$

Die Korrelationsfunktionen müssen die Eigenschaft (3.8) erfüllen. Daraus ergibt sich die Summenregel

$$\langle S_l^- S_l^+ \rangle = \frac{2}{3} S(S+1). \quad (3.70)$$

Mögliche weitere Gleichungen ergeben sich aus der Forderung, dass die Suszeptibilität im Limes  $\mathbf{q} \rightarrow 0$  isotrop sein muss, also beispielsweise in zweidimensionalen Systemen

$$\lim_{q_x \rightarrow 0} \chi_{\mathbf{q}} \Big|_{q_y=0} = \lim_{q_y \rightarrow 0} \chi_{\mathbf{q}} \Big|_{q_x=0}. \quad (3.71)$$

Auch hier sind mit den Korrelationsfunktionen Gleichung (3.67), der Summenregel (3.70), möglichen Isotropiebedingungen (3.71) und bei Fernordnung der Forderung nach Divergenz der Suszeptibilität (3.68) zu wenig Gleichungen vorhanden, um das Gleichungssystem unter Berücksichtigung aller möglichen offenen Variablen selbstkonsistent zu lösen. Die Reduktion offener Parameter erfolgt dann beispielsweise durch Gleichsetzen verschiedener Vertexparameter oder die Festlegung einiger der offenen Größen auf Werte, die mit anderen Methoden berechnet wurden. Wie genau dieses vorgenommen wird, wird in den Kapiteln 4.2 und 5.2 diskutiert.

### 3.4 Anmerkungen zur Korrelationslänge

Eine wichtige physikalische Größe ist die Korrelationslänge. Sie ist ein Maß für die Reichweite von Korrelationen. Für die Korrelationsfunktionen im thermodynamischen Limes gilt für ein- und zweidimensionale Systeme bei endlichen Temperaturen

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle = \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{BZ} d^d q \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} (1 + 2n(\omega_{\mathbf{q}})) e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}},$$

wobei  $d = 1, 2$  die Dimension des Systems ist. Der wesentliche Beitrag zu diesem Integral liefert der Bereich  $\omega_{\mathbf{q}} \approx 0$ , also  $\mathbf{q} \approx \mathbf{Q}$ . Damit lassen sich die Korrelationsfunktionen näherungsweise schreiben als

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle \approx \frac{T}{(2\pi)^d} \int_{BZ} d^d q \frac{M_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}}}{\omega_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}}^2} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}} = \frac{2T}{(2\pi)^d} \int_{BZ} d^d q \chi_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}.$$

Im Rahmen der Greenschen Funktionen ist die Korrelationslänge üblicherweise durch

$$\chi_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} \approx \frac{\chi_{\mathbf{Q}}}{1 + \xi^2 \mathbf{q}^2} \quad (3.72)$$

definiert, beispielsweise in [39, 45, 46, 49]. Dies führt zu

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle \approx \frac{2T\chi_{\mathbf{Q}}}{(2\pi)^d} \int_{BZ} d^d q \frac{e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}}{1 + \xi^2 q^2}$$

mit  $q^2 = |\mathbf{q}|^2$ . Der wesentliche Beitrag zu diesem Integral stammt aus dem Bereich  $\mathbf{q} \approx \mathbf{0}$ , daher kann der Integrationsbereich ins Unendliche ausgedehnt werden. Dies liefert

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle \approx \frac{2T\chi_{\mathbf{Q}}}{(2\pi)^d \xi^2} \int_{-\infty}^{\infty} d^d q \frac{e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}}{\frac{1}{\xi^2} + q^2}.$$

Dieses Integral kann mit Hilfe der Schwinger-Darstellung

$$\frac{1}{(q^2 + q_c^2)^a} = \int_0^{\infty} d\alpha \alpha^{a-1} e^{-\alpha(q^2 + q_c^2)}$$

gelöst werden, es folgt

$$\begin{aligned} \frac{1}{(2\pi)^d} \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{q} \frac{e^{i\mathbf{q}\mathbf{R}}}{\frac{1}{\xi^2} + \mathbf{q}^2} &= \frac{1}{(2\pi)^d} \int_0^{\infty} d\alpha e^{-\alpha/\xi^2} \int_{-\infty}^{\infty} d\mathbf{q} e^{-\alpha q^2 + i\mathbf{q}\mathbf{R}} \\ &= \frac{1}{2^d \pi^{d/2}} \int_0^{\infty} d\alpha e^{-\alpha/\xi^2} \alpha^{-d/2} e^{-r^2/4\alpha} \end{aligned}$$

mit  $r = |\mathbf{R}|$ . Mit der Variablensubstitution  $\alpha = \frac{r\xi}{2}u$  folgt

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2^d \pi^{d/2}} \left( \frac{2}{r\xi} \right)^{d/2-1} \int_0^\infty du e^{-\frac{r}{2\xi}(u+\frac{1}{u})} u^{-d/2} \\ &= \frac{1}{2^d \pi^{d/2}} \left( \frac{2}{r\xi} \right)^{d/2-1} \left( \int_0^1 du e^{-\frac{r}{2\xi}(u+\frac{1}{u})} u^{-d/2} + \int_1^\infty du e^{-\frac{r}{2\xi}(u+\frac{1}{u})} u^{-d/2} \right). \end{aligned}$$

Eine weitere Substitution  $u = e^{-t}$  im ersten und  $u = e^t$  im zweiten Integral liefert

$$\frac{1}{2^d \pi^{d/2}} \left( \frac{2}{r\xi} \right)^{d/2-1} \left( - \int_0^\infty (-e^{-t}) dt e^{-\frac{r}{2\xi}(e^{-t}+e^t)} e^{td/2} + \int_0^\infty (e^t) dt e^{-\frac{r}{2\xi}(e^t+e^{-t})} e^{-td/2} \right)$$

und damit

$$\frac{1}{(2\pi)^{d/2}} \left( \frac{1}{r\xi} \right)^{d/2-1} \int_0^\infty dt e^{-\frac{r}{\xi} \cosh(t)} \cosh \left( \left( \frac{d}{2} - 1 \right) t \right).$$

Das Integral ist die modifizierte Besselfunktion  $K_{d/2-1}(r/\xi)$ , deren asymptotisches Verhalten für große Argumente bekanntermaßen durch

$$K_{d/2-1}(r/\xi) \approx \sqrt{\frac{\pi\xi}{2r}} e^{-r/\xi} \left( 1 + \mathcal{O}\left(\frac{\xi}{r}\right) \right) \quad \text{für } r \gg \xi \left( \frac{d}{2} - 1 \right).$$

beschrieben wird. Somit wird klar, dass die Definition der Korrelationslänge Gleichung (3.72) über

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle \approx \frac{T\chi_{\mathbf{Q}}}{\xi} \left( \frac{1}{2\pi |\mathbf{R}| \xi} \right)^{(d-1)/2} e^{-|\mathbf{R}|/\xi}$$

direkt mit dem exponentiellen Abfall der Korrelationsfunktionen bei großen Distanzen verknüpft ist. Eine erstmalige Ableitung dieses exponentiellen Abfalls aus einer Suszeptibilität der Form (3.72) erfolgte von Ornstein und Zernike bei der Betrachtung von klassischen Flüssigkeiten. Daher wird dieses Verhalten im Folgenden Ornstein-Zernike-Verhalten genannt.

In den Kapiteln 4 und 5 wird jedoch festgestellt, dass in bestimmten Parameterbereichen die Korrelationsfunktionen nicht mehr das bedingte Verhalten erfüllen. So werden in der ferromagnetischen Phase bei ein- und zweidimensionalen  $S = 1/2$ -Systemen, wenn der Frustrationsparameter  $J_2/|J_1|$  in der Nähe des Quantenphasenübergangspunktes liegt, einige Korrelationsfunktionen ab einer kritischen Temperatur negativ [64, 65] und erfüllen so das Ornstein-Zernike-Verhalten nicht. In diesen Fällen liefert auch die Definition Gleichung (3.72) imaginäre und damit keine sinnvollen Korrelationslängen.

Eine alternative Definition findet sich in [50–52]. Hier wird sie durch

$$\chi_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} \approx \chi_{\mathbf{Q}} (1 - \xi^2 \mathbf{q}^2) \tag{3.73}$$

bestimmt. Weiterhin werden die Korrelationsfunktionen  $\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle$  bei festen Temperaturen auch direkt ausgewertet und die Korrelationslänge über eine Anpassung der Datenpunkte bei großen Abständen  $|\mathbf{R}|$  an eine exponentielle Funktion der Form

$$\langle S_{\mathbf{R}}^- S_{\mathbf{0}}^+ \rangle \approx A \left( \frac{1}{|\mathbf{R}|} \right)^{(d-1)/2} e^{-|\mathbf{R}|/\xi}$$

bestimmt. Im Fall der reinen ferromagnetischen Kette konnte gezeigt werden, dass dieses Vorgehen eine Korrelationslänge liefert, die bei  $\xi > 1$  mit der nach (3.72) berechneten übereinstimmt [30]. Ob dies bei einer endlichen übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung auch der Fall ist, wird in dieser Arbeit untersucht.



## Kapitel 4

# Anwendung der Greenfunktionsmethode auf den eindimensionalen frustrierten Heisenberg-Ferromagneten

### 4.1 Grundlagen, Stand der Forschung

Da dieses Kapitel einen Schwerpunkt der Arbeit darstellt, soll zunächst ein eingehender Überblick über die Grundlagen und den aktuellen Stand der Forschung des hier betrachteten Modells gegeben werden. Die theoretische und experimentelle Betrachtung eindimensionaler, frustrierter Spinsysteme, insbesondere des Heisenberg-Modells mit nächster und übernächster-Nachbar-Wechselwirkung, sind seit Jahrzehnten Gegenstand intensiver Untersuchungen [66]. Das Modell ist ein wechselwirkendes Quantenvielteilchenproblem und damit im Allgemeinen nicht exakt lösbar. Veröffentlichungen zu den theoretischen Berechnungen der Eigenschaften dieses Modells haben demnach einen Näherungscharakter, was auch zu sich zum Teil widersprechenden Resultaten bei der Anwendung verschiedener Näherungsmethoden führt. Im Folgenden soll ein kurzer Überblick über die Eigenschaften des Grundzustandes und der Charakterisierung der sich durch die Frustration und ein angelegtes äußeres Magnetfeld ergebenden verschiedenen Phasen des eindimensionalen Ferromagneten auf der linearen Kette gegeben werden.

Die rein ferromagnetische und die rein antiferromagnetische Kette sind durch den Bethe-Ansatz [67] im gesamten Temperaturbereich exakt lösbar. Der Grundzustand der ferromagnetischen Kette ist der vollständig polarisierte Zustand, unabhängig von der konkreten Spinquantenzahl  $S$ , mit der Eigenschaft

$$\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle = S^2 + S\delta_{i,j}.$$

Somit ist sie im Grundzustand für beliebige  $S$  ferneordnet.

Wird eine zusätzliche frustrierende übernächste-Nachbar-Wechselwirkung hinzugefügt, bleibt bei einem ferromagnetischen  $J_1$  der klassische Grundzustand für  $J_2/|J_1| < 0.25$  der vollständig polarisierte. Dieser kritische Punkt ist auch für den Quantenfall gültig und unabhängig von der konkreten Spinquantenzahl  $S$  [68]. Klassisch, also im Grenzfall  $S \rightarrow \infty$ , tritt ein Phasenübergang zweiter Ordnung hin zu einer Spiralphase mit dem Winkel

$$\varphi_{kl} = \arccos(|J_1|/4J_2)$$

zwischen benachbarten Spins auf.

Der Grundzustand für  $S = 1/2$  ist am Übergangspunkt  $J_2/|J_1| = 0.25$  exakt bestimmbar. Er ist eine  $N + 2$ -fach entartete Überlagerung von  $N + 1$  Zuständen mit  $S_{tot} = N/2$ , dem ferromagnetischen Grundzustand, und einem  $\mathbf{S}_{tot} = 0$ -Zustand [69–71], wobei  $S_{tot}$  den Gesamtspin  $\langle \sum_i \mathbf{S}_i^2 \rangle = S_{tot}(S_{tot} + 1)$  bezeichnet. Der  $S_{tot} = 0$ -Zustand  $|\Phi\rangle$  wird durch eine Linearkombination verschiedener Singulett-Produktzustände  $[i, j] = (\alpha(i)\beta(j) - \beta(i)\alpha(j))/\sqrt{2}$  beschrieben,

$$|\Phi\rangle = \sum [i, j] [k, l] [m, n] \dots,$$

wobei über alle Gitterplätze  $i, j, \dots$  unter der Bedingung  $i < j, k < l, m < n, \dots$  summiert wird [69, 70]. Dieser Zustand heißt *uniformly distributed resonating valence bond* (UDRVB) Zustand [69, 70]. An diesem Punkt beträgt die Energie  $E/N = -3|J_1|/16$ , die Korrelationsfunktionen verhalten sich mit wachsendem Abstand  $n$  gemäß [69, 70, 72]

$$\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+n} \rangle = \frac{1}{4} \cos\left(\frac{2\pi n}{N}\right).$$

Für  $J_2/|J_1| \geq 0.25$  liegt bei  $S = 1/2$  ein diskontinuierlicher Phasenübergang zu einem quantenmechanischen Analogon zum klassischen Fall, ein Singulett-Zustand mit spiralförmigen Korrelationsfunktionen mit inkommensurablen Winkel zwischen benachbarten Spins, vor [73]. Die Coupled-Cluster-Methode findet hier einen Winkel [74]

$$\varphi_{qu} = \arccos\left(|J_1|/[4J_2]^{1.972}\right),$$

der im Vergleich zum klassischen Fall durch Quantenfluktuationen modifiziert ist. Weiterhin zeigt sich, dass dieser auch von der Temperatur abhängig ist [75].

Weitere Untersuchungen beziehen sich auf das Verhalten physikalischer Größen in der Nähe des Übergangspunktes  $J_2 \gtrsim 0.25$ . Wird im ferromagnetischen Modell die Energie zu Null gewählt, verhält sich die Grundzustandsenergie in diesem Bereich gemäß

$$E_0 \propto \left(J_2 - \frac{1}{4}\right)^\beta$$

mit  $\beta = 5/3$  für  $S = 1/2$  aus Skalenbetrachtungen [76] und  $\beta = 2$  für  $S \geq 1$  mit einem von  $S$  abhängenden Vorfaktor aus einer Störungsrechnung unter Berücksichtigung von Skalenargumenten [77]. Diese Unterscheidung findet sich auch bei Betrachtungen zum Quantenphasenwinkel,

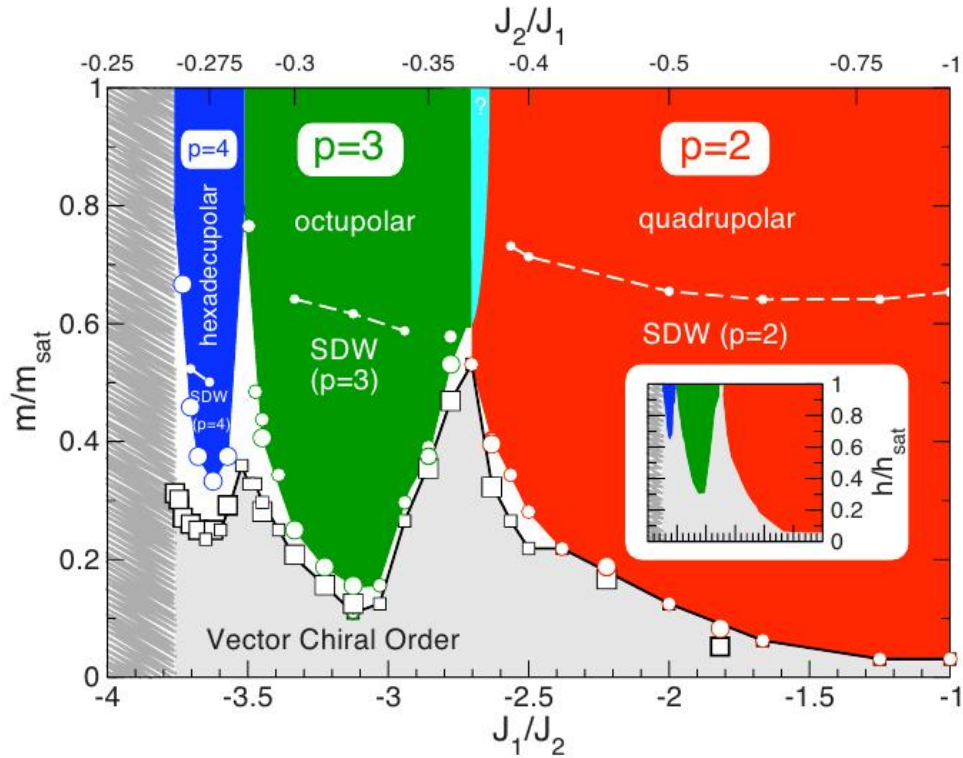


Abbildung 4.1: Phasendiagramm der frustrierten ferromagnetischen Kette für  $S = 1/2$  im äußeren Magnetfeld aus [78].

wo  $\varphi_{qu} = (J_2 - \frac{1}{4})^\gamma$  mit  $\gamma = 1/3$  für  $S = 1/2$  und  $\gamma = 1/2$  für  $S \geq 1$ . Dies steht im Widerspruch zu den CCM-Ergebnissen, die auch bei  $S = 1/2$  den klassischen Wert  $\gamma = 1/2$  vorhersagen. DMRG-Rechnungen finden bei Berechnungen des Winkels aus dem Maximum des Spinstrukturfaktors für  $S = 1/2$  einen Wert  $\gamma = 0.29$  [78].

Ein zusätzliches äußeres magnetisches Feld dreht klassisch die Spins mit wachsender Feldstärke immer stärker in Richtung des Feldes. Der Winkel  $\theta_{kl}$  bezüglich der  $z$ -Achse (bei einem in  $z$ -Richtung angelegtem Feld und einem planaren Spiralzustand in der  $x$ - $y$ -Ebene) lautet

$$\theta_{kl} = \arcsin \left( \frac{4g\mu_B B J_2}{S(4J_2 + J_1)^2} \right).$$

Das klassische Sättigungsfeld bei  $\theta_{kl} = \pi/2$  lautet demnach

$$B_{kl}^s = \frac{S(J_1 + 4J_2)^2}{4g\mu_B B J_2}.$$

Im Quantenfall  $S = 1/2$  ist ein solch einfaches Bild nicht mehr gegeben, Quantenfluktuationen sorgen für zahlreiche neue, interessante Phasen. Ein (mögliches) detailliertes Phasendiagramm

der frustrierten ferromagnetischen Kette im äußeren Magnetfeld, welches mit Daten der exakten Diagonalisierung und der Dichtematrix-Renormierungsgruppentheorie erstellt wurde, findet sich in [78], ein fast identisches in [79]. Dieses ist in Abbildung (4.1) gezeigt. Das Phasendiagramm besteht aus fünf Phasen. Der graue Bereich entspricht einer chiralen oder p-artigen nematischen Phase.

Als nematisch werden Zustände bezeichnet, die kein magnetisches Moment  $\langle \mathbf{S}_i \rangle$  besitzen und die Rotationssymmetrie des Hamiltonoperators im Spinraum brechen, die Zeitumkehrsymmetrie jedoch nicht [80]. Ein solcher Zustand ist charakterisiert durch eine langreichweitige Ordnung im Tensor

$$S_i^\alpha S_j^\beta = \delta_{\alpha,\beta} A(i, j) + \epsilon^{\alpha,\beta,\gamma} B^\gamma(i, j) + Q^{\alpha,\beta}(i, j)$$

mit einer skalaren Funktion  $A(i, j)$ .

Bei einem Zustand mit LRO im antisymmetrischen Twist-Operator  $B(i, j) = (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$  spricht man von p-artiger nematischer Ordnung, bei LRO im spurlosen symmetrischen Tensor  $Q^{\alpha,\beta}(i, j) = \frac{1}{2} (S_i^\alpha S_j^\beta + S_i^\beta S_j^\alpha) - \frac{\delta_{\alpha,\beta}}{3} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$  von n-artiger nematischer Ordnung.

Die chirale Ordnung im grauen Bereich ist demnach verbunden mit einem nichtverschwindenden Ordnungsparameter

$$\kappa^2(d) = \sum_{r \rightarrow \infty} \langle (\mathbf{S}_0 \times \mathbf{S}_d)^z (\mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r+d})^z \rangle$$

mit  $d = 1, 2$ .

Die farbigen in Abbildung (4.1) dargestellte Phasen bezeichnen  $n$ -nematische, gebundene  $p = 2, 3$  und 4 Magnonenzustände mit einem kommensurablen Schwerpunktsmoment ( $k = \pi$ ) [81], die durch eine Luttinger-Flüssigkeit beschrieben werden. Im Rahmen dieser Theorie fallen nahe des Sättigungsfeldes die transversalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_i^+ S_j^- \rangle$  exponentiell, Korrelationsfunktionen der Form

$$\langle \underbrace{S_0^+ S_1^+ \dots S_r^- S_{r+1}^- \dots}_{p \text{ Mal}} \rangle \propto (-1)^r \left( \frac{1}{r} \right)^{1/K},$$

mit dem Wellenvektor  $k = \pi$  algebraisch ab.  $K = K(p, m)$  ist der Luttingerparameter.

Ebenfalls algebraisch fallen die longitudinalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_0^z S_r^z \rangle - m^2$  mit

$$\langle S_0^z S_r^z \rangle - m^2 \propto \cos[kr] \left( \frac{1}{r} \right)^K$$

ab. Diese oszillieren mit dem Wellenvektor  $k = \frac{\pi}{p} (1 - 2m)$  ( $m$ : Magnetisierung) [75].

Bei  $K > 1$ , im Bereich hoher Feldstärken, dominieren die  $p$ -multipolaren Korrelationsfunktionen die LRO. Wird das erstmals von Chubukov vorgeschlagene Bild der Bosekondensation von gekoppelten *hard-core*-Multimagnonen [82] zugrunde gelegt, entsprechen diese Korrelationsfunktionen dem Erwartungswert des Bose-Propagators  $\langle b_0^{(p)} b_l^{(p)+} \rangle$  mit  $b_l^{(p)+} \propto S_l^- \dots S_{l+p-1}^-$ . Die in [82] vorgeschlagene Dimerisierung in dieser Phase wird nicht von der DMRG bestätigt [79].

Bei  $K < 1$  klingen die longitudinalen Korrelationsfunktionen langsamer ab und bestimmen so die LRO. Im Bild der *hard-core*-Bosonen ist diese proportional zur Dichteschwankung  $\langle n_0 n_l \rangle - \langle n_0 \rangle \langle n_l \rangle$ , weshalb dieser Bereich als SDW <sub>$p$</sub>  (spin-density-wave) Phase bezeichnet wird [79]. Die Linie  $K = 1$  ist als Grenzlinie der zwei Phasen in Abbildung 4.1 eingezeichnet.

Zwischen chiraler und multipolarer Phase, die weißen Bereiche in Abbildung (4.1), findet ein metamagnetischer Übergang statt [78]. Dieser ist charakterisiert durch hohe Sprünge in der Magnetisierungskurve. Die entsprechenden Sprünge wurden auch in [79] gefunden, doch die Interpretation als Übergang erster Ordnung, Charakteristikum des metamagnetischen Übergangs, wurde aufgrund möglicher finite-size Effekte nicht getroffen.

Die schmale türkis-farbene Phase in Abbildung 4.1 beschreibt eine Phase mit einem inkommensurablen Moment  $k = \pi \pm \delta$  im Regime zweier gebundener Magnonen [82] ohne langreichweitige chirale Ordnung [79].

Die schraffierte Fläche in der Nähe von  $J_2 = 0.25$  wurde in [78] nicht weiter untersucht, jedoch wird dort vermutet, dass ein metamagnetischer Übergang von der chiralen hin zum vollständig polarisierten Zustand vorliegt. Auch in [79] werden Phasen mit  $p \geq 5$  ausgeschlossen, über die Art des Übergangs wird jedoch nichts ausgesagt. Das Feld stabilisiert die ferromagnetische Phase in einen gewissen Bereich  $J_2 > 0.25$  [76, 79].

Anzumerken ist, dass in [79] für  $p = 4$  keine Phase mit einer dominanten Spindichtekorrelation gefunden wurde, in [78] schon.

Untersuchungen mit einer Bosonisierungstechnik [82] und der exakten Zwei-Magnonen Greenschen Funktion in *hard-core*-Bosonennäherung [37] zeigen, dass der multipolare Charakter der Phasen bei hohen Feldern zu einer Modifikation des Sättigungsfeldes führt. Für  $p = 2$  findet sich konkret

$$B_{2,S} = \frac{4J_2^2 - J_1^2 - 2J_1J_2}{2(J_2 - J_1)}.$$

Ein Charakteristikum der multipolaren Phase und der  $SDW_p$ -Phase ist, dass sich die Magnetisierung mit dem Feld in Sprüngen von  $\Delta S^z = p$  ändert [83].

Neben dem theoretischen, grundlegenden Interesse an niedrigdimensionalen Spinsystemen sind seit den 1970er Jahren auch reale Materialien bekannt, deren physikalische Eigenschaften sich anhand dieser Modelle beschreiben lassen. Als klassisches Beispiel gilt die Untersuchung inelastischer Neutronenstreuung an dem Material  $(CD_3)_4NMnCl_3$  (TMMC), in der die Wechselwirkung zwischen den  $Mn^{2+}$  mit dem wirkenden Spin  $S = 5/2$  [84] sowie  $Cu_2Cl_2 \cdot 2N(C_5D_5)$ , in dem die Austauschwechselwirkung zwischen den  $Cu^{2+}$ -Ionen mit  $S = 1/2$  dominiert [85]. Die experimentellen Daten lassen sich gut durch die exakte Lösung der antiferromagnetischen Kette beschreiben.

Als nahezu perfekte eindimensionale Ferromagnete gelten das Kupferchlorid  $Me_4NCuCl_3$  [86] beziehungsweise die etwas allgemeinere Klasse  $(CH_3)NMn_xCu_{1-x}Cl_3$  für  $x \gtrsim 0$  [87] sowie die organischen Magneten p-nitrophenyl nitronyl nitroxide (p-NPNN) [88], wobei das Material in einer bestimmten Kristallphase, der  $\gamma$ -Phase, vorliegen muss [89], und BBDTA(=benzo[1,2-d:4,5-d']bis[1,3,2]dithiazole)· $GaBr_4$  in der polymorphen  $\beta$ -Phase. Letzteres Material besteht abwechselnd aus anti- und ferromagnetischen Ketten mit sehr kleiner ferromagnetischer Zwischenkettenkopplung, wobei wegen  $J_{afm} \gg J_{fm}$  die ferromagnetischen Eigenschaften bei tiefen Temperaturen dominieren [90].

Weiteren Aufschwung erlebten Materialien mit dominanten niedrigdimensionalen Austauschwechselwirkungen in den 1980er Jahren, als der Effekt der Hochtemperatursupraleiter entdeckt wurde. Hier sind die *corner-shared chain cuprates*, in der die  $CuO_4$ -Moleküle die Ecken teilen um die Ketten zu formen, von besonderem Interesse, da sie die eindimensionale Variante von zwei-

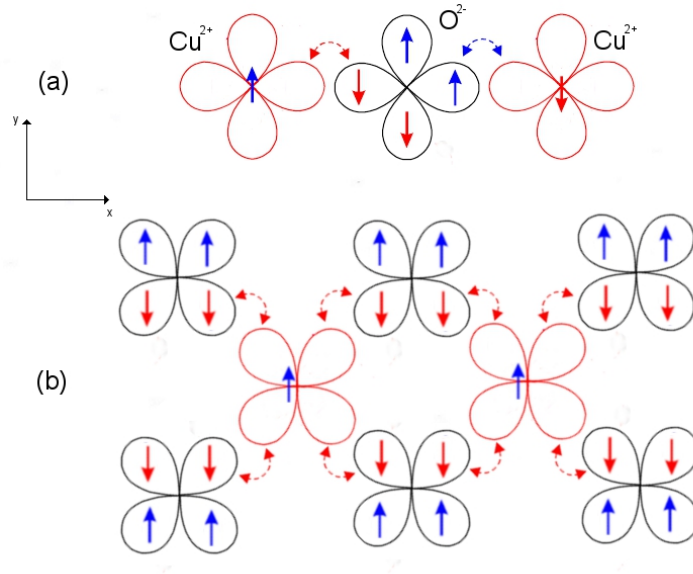


Abbildung 4.2: Schematische Orbitalstruktur von *corner-shared* (a) und *edge-shared chain cuprates* (b) zur Darstellung der Goodenough-Kanamori-Anderson Regel (siehe Text)

dimensionalen Kuprat-Hochtemperatursupraleitern sind [91]. Bekannte Beispiele, die als ideale antiferromagnetische Ketten gelten, sind  $\text{Sr}_2\text{CuO}_3$  und  $\text{SrCuO}_2$ , hier ist  $J_1$  antiferromagnetisch mit Kopplungsstärken im Bereich von zweitausend Kelvin [92].

Eine weitere Klasse von Kupferoxid-Materialien sind die *edge-shared chain cuprates*, in der die  $\text{CuO}_4$ -Moleküle die Kanten teilen. Diese Materialien sind Kandidaten dafür, eine ferromagnetische nächste-Nachbar-Koppelung zu besitzen. Die  $\text{Cu}^{2+}$ -Ionen besitzen die Elektronenkonfiguration  $3p^9$ , somit ist nur das Orbital  $3d_{x^2-y^2}$  besetzt<sup>1</sup>. Der wesentliche Orbitalüberlapp existiert zwischen diesem Orbital und den voll besetzten  $2p_\gamma$ -Orbital ( $\gamma = x, y$ ) des Sauerstoffs [91].

Der wesentliche Unterschied zwischen den zwei Kupratklassen besteht darin, dass bei den *corner-shared chain cuprates* der Bindungswinkel der  $\text{Cu-O-Cu}$  nahe  $\pi$ , der wesentliche Überlapp der benachbarten Kupferatome mit dem Sauerstoff über dasselbe  $2p_\gamma$ -Orbital besteht. Zwischen den Orbitalen findet der in Kapitel 1 beschriebene Superaustausch statt, dargestellt ist der Mechanismus in Abbildung 4.2a. Aufgrund des Pauli-Prinzips kann vom Sauerstoff nur ein Elektron mit negativem Spin auf das linke  $\text{Cu}$ -Ion springen<sup>2</sup>, das verbleibende Elektron mit positivem Spin kann nur auf der rechten  $\text{Cu}$ -Atom springen, wenn sich auf dem dortigen  $3d_{x^2-y^2}$ -Orbital ein Elektron mit negativem Spin befindet. Dies führt zu einer antiferromagnetischen Spinordnung

<sup>1</sup>Die fünffache Entartung des  $d$ -Orbitals wird durch das Kristallfeld aufgehoben, das dem elektrostatischen Feld der umgebenden Ionen entspricht. Betrachtungen von Symmetrietransformationen der Punktgruppe des Gitters sind hierzu äquivalent. Die Darstellung der Transformation sprengt jedoch den Rahmen dieser Arbeit, sie ist Bestandteil zahlreicher Lehrbücher über Kristallfeld- und Ligandenfeldtheorie.

<sup>2</sup>Die beschriebenen Hüpfprozesse sind kurzzeitige, virtuelle Prozesse.

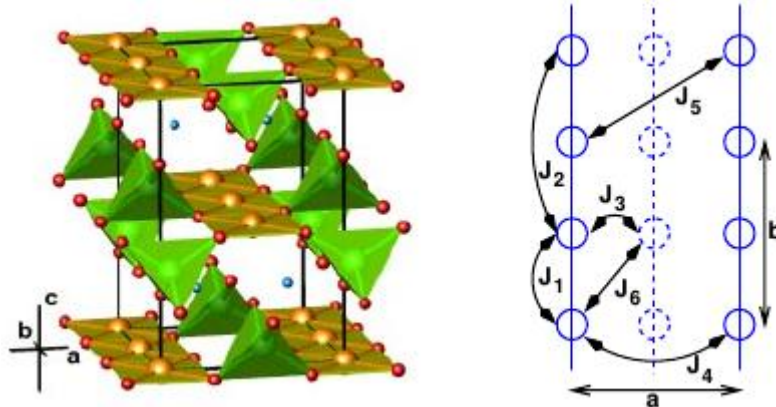


Abbildung 4.3: links: Gitterstruktur eines sich die Kanten teilenden Kupferoxids (*edge-shared*) am Beispiel von  $\text{LiCuVO}_4$  aus [97]. orange:  $\text{Cu}$ , rot:  $\text{O}$ , grün:  $\text{V}$ , blau:  $\text{Li}$ . rechts: Austauschwechselwirkung zwischen den  $\text{Cu}^{2+}$ -Atomen in der  $ab$ -Ebene (durchgezogene Linien) bzw. zwischen der Ebene (gestrichelt, um  $c/2$  verschoben)

der  $\text{Cu}$ -Elektronen. Sind die Spins der Elektronen auf den  $3d_{x^2-y^2}$ -Orbitalen beider Kupfer-Atome parallel, ist nur einer der zwei eingezeichneten Hopping-Pfade möglich, was im Rahmen der Störungsrechnung zu einer höheren Energie führt.

Bei den *edge-shared chain cuprates* mit einem Bindungswinkel von  $\pi/2$  überlappt ein Sauerstoffatom mit den Orbitalen  $2p_x$  und  $2p_y$  mit zwei benachbarten Kupferatomen, dargestellt in Abbildung 4.2b. Befindet sich ein positiver Spin auf einem Kupferatom, tragen die Elektronen mit negativem Spin von den vier benachbarten  $\text{O}$ -Atomen zum Superaustausch bei. Dabei taucht ein Zwischenzustand auf, bei dem zwei Elektronen eines Sauerstoffatoms bei zwei Kupfer-Atomen sind. Nach der ersten Hundschen Regel müssen die verbleibenden Spins dieselbe Spinorientierung besitzen. Die dargestellte Orientierung der  $\text{O}$ -Orbitale ist demnach energetisch am günstigsten, da so die meisten virtuellen Hüpfprozesse möglich sind. Somit ist die effektive Kopplung zwischen den Kupferatomen ferromagnetisch, hervorgerufen durch den Superaustausch. Ein direkter Austausch zwischen den Kupfer-Atomen, der eine antiparallele Ausrichtung der Spins bevorzugt, wird aufgrund des Bindungswinkels unterdrückt und verschwindet bei genau  $\pi/2$  [93].

Die beschriebene Abhängigkeit der Kopplungsart von den Winkeln in diesen Grenzfällen heißt Goodenough-Kanamori-Anderson-Regel [94–96]. Eine detaillierte Rechnung, die die Stärke und das Vorzeichen der Kopplung zweier benachbarter Kupferatome in Abhängigkeit des Bindungswinkels bestimmt, wird in [91] gegeben. Ein analoger Mechanismus, der Superaustausch über die Bindung  $\text{Cu-O-O-Cu}$ , führt zu der frustrierenden antiferromagnetischen übernächste-Nachbar-Wechselwirkung.

Als Beispiel eines *edge-shared-cuprate* ist die Kristallstruktur von  $\text{LiCuVO}_4$  in Abbildung 4.3 dargestellt. Experimentelle Messungen und ab-initio-Rechnungen zeigen zwar zum Teil sehr verschiedene Ergebnisse für die konkreten Werte der Kopplungen  $J_{1\dots 6}$ , jedoch sind übereinstimmend  $J_1$  und  $J_2$  um einen Faktor 10 größer als die restlichen  $J_i$  [97], womit die Modellierung als  $J_1$ - $J_2$ -Ferromagnet naheliegt. Weitere Beispiele von Spin-1/2 *edge-shared chain cuprates* mit ferromagnetischer nächster-Nachbar-Wechselwirkung sind  $\text{La}_6\text{Ca}_8\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  mit  $J_1 = -215\text{K}$  und

$J_2 = 78\text{K}$  sowie  $\text{Li}_2\text{CuO}_2$  mit  $J_1 = -100\text{K}$  und  $J_2 = 62\text{K}$  und  $\text{Ca}_2\text{Y}_2\text{Cu}_5\text{O}_{10}$  mit  $J_1 = -25\text{K}$  und  $J_2 = 55\text{K}$  [91].

Ein mögliches Kriterium, ob ein Material durch ein entsprechendes theoretisches Modell beschreibbar ist, ist der Vergleich der Position und Höhe des Maximums der Suszeptibilität mit theoretischen Vorhersagen. Es zeigt sich, dass die an den *edge-shared chain cuprates*  $\text{Pb}[\text{CuSO}_4(\text{OH})_2]$  mit  $J_1 = -30\text{K}$  und  $J_2 = 15\text{K}$  [98],  $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  mit  $J_1 = -138\text{K}$  und  $J_2 = 51\text{K}$  [99],  $\text{NaCu}_2\text{O}_2$  mit  $J_1 = -16.4\text{K}$ ,  $J_1 = 90\text{K}$  [100] und  $\text{Li}_2\text{ZrCuO}_4$ <sup>3</sup> gemessenen Werte gut mit Daten aus der exakten Diagonalisierung eines Rings aus 20 Spins übereinstimmen [101]. Insbesondere bei  $\text{NaCu}_2\text{O}_2$  wird deutlich, dass für eine exakte Beschreibung experimenteller Daten ein einfaches Modell nicht ausreicht, hier sind auch Wechselwirkungen über drei und vier Gitterplätze mit  $J_3 = 7.2\text{K}$  und  $J_4 = 6.3\text{K}$  sowie eine schwache Dzyalozhinskii-Moriya-Wechselwirkung  $\mathbf{D}_{ij} (\mathbf{S}_i \times \mathbf{S}_j)$  [102] relevant.

Das Material  $\text{Li}_2\text{ZrCuO}_4$  weist die Besonderheit auf, dass hier das Verhältnis der zwei Kopplungskonstanten mit  $J_2/|J_1| \approx 0.3$  in der Nähe der Quantenphasenübergangs liegt. Hier zeigt sich ein besonderes Verhalten, beispielsweise eine starke Feldabhängigkeit der spezifischen Wärme [101]. Dies ist möglicherweise ein Hinweis auf die im oberen Teil beschriebene Spinwellendichtephase.

Die kleinen Zwischenkettenkopplungen verschiedenster Reichweite, die zwangsläufig aufgrund der dreidimensionalen Struktur der Materialien auftreten, bewirken eine endliche Néel-Temperatur. Diese kann somit ebenfalls als Kriterium dienen, wie stark der eindimensionale Charakter der entsprechenden Materialien ist [76]. Beispielsweise hat  $\text{Rb}_2\text{Cu}_2\text{Mo}_3\text{O}_{12}$  eine Néel-Temperatur von  $T_N = 2\text{K}$  [99], für  $\text{La}_6\text{Ca}_8\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  wurde  $T_N = 12.2\text{K}$  gemessen [91]. Beide sind vergleichsweise klein, sodass theoretische Vorhersagen des eindimensionalen Modells in den Messungen zu sehen sein könnten.

Somit ist das eindimensionale Heisenberg-Modell ein guter Startpunkt zur Analyse der physikalischen Eigenschaften. Eine exakte Übereinstimmung berechneter und experimenteller Daten ist unter anderem aufgrund der Näherungen, die dem Heisenberg-Modell zugrunde liegen, der nur näherungsweise möglichen Lösung sowie der Vernachlässigung von Kopplungen nicht zu erwarten, doch wesentliche physikalische Mechanismen sind sehr gut erkennbar [71].

Im folgenden Unterkapitel 4.2 werden zunächst die Gleichungen der Greenfunktionsmethode aus Kapitel 3 für das  $J_1$ - $J_2$  Modell mit beliebiger Spinquantenzahl  $S$  beziehungsweise für  $S = 1/2$  mit einem äußeren Feld konkretisiert und gelöst. Mit der Methode soll in dem folgenden Kapitel 4.3 der Einfluss der übernächste-Nachbar-Wechselwirkung  $J_2$  und Spinquantenzahl  $S$  auf den Temperaturverlauf der thermodynamischen Größen Korrelationsfunktionen, spezifische Wärme, Suszeptibilität und Korrelationslänge untersucht und deren Verhalten mit Daten aus der exakten Diagonalisierung und der Hochtemperaturentwicklung verglichen werden. Ein besonderes Augenmerk soll auf der Untersuchung des kritischen Verhaltens von  $\chi_0$  und  $\xi$  bei  $T \rightarrow 0$  liegen. Der Parameterbereich ist hierbei derjenige, bei dem der ferromagnetische Grundzustand vorliegt. Obwohl im ferromagnetischen Regime  $J_2 < 0.25$  die frustrierende Kopplung keinen Einfluss auf die Grundzustandseigenschaften des Systems besitzt, ist ein Einfluss auf die thermodynamischen

<sup>3</sup>Hier wurde  $J_2/|J_1| \approx 0.3$  experimentell bestimmt, die konkreten Werte der Kopplungskonstanten in der Literatur weichen bei verschiedenen Messungen stark voneinander ab



Eigenschaften vorhanden.

Im abschließenden Abschnitt 4.4 wird das Verhalten der genannten physikalischen Größen bei  $S = 1/2$  unter Einfluss eines zusätzlichen äußeren Magnetfeldes betrachtet. Hier konnte für das unfrustrierte System mit  $J_2 = 0$  gezeigt werden, dass sich der Einfluss der Feldstärke auf Höhe und Position der Maxima von spezifischer Wärme und Suszeptibilität durch einfache Potenzgesetze beschreiben lässt. Ob dies auch bei endlicher Frustration  $J_2 < 0.25$  möglich ist, soll ebenfalls untersucht werden.

Teile der Ergebnisse sind bereits in [64, 103–105] veröffentlicht.

## 4.2 Gleichungen der Greenfunktionsmethode

Im Folgenden wird die in Kapitel 3 entwickelte Methode auf den eindimensionalen frustrierten Ferromagneten angewendet, zunächst für das  $SO(3)$ -symmetrische Modell für eine beliebige Spinquantenzahl  $S$  und dann für das Spin-1/2-Modell im äußeren Magnetfeld. Aufgrund der Translationssymmetrie des Gitters hängen die Korrelationsfunktionen nur vom Abstand der zu den Operatoren gehörenden Gitterplätze ab. Daher werden alle Korrelationsfunktionen ausgehend von einem Gitterplatz  $R_0 = 0$  aus betrachtet. Die Gitterkonstante wird zu  $a = 1$  gesetzt.

### 4.2.1 Die Gleichungen der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode für beliebige Spinquantenzahlen $S$

Die Momentenmatrix (3.61) lautet unter Berücksichtigung der Translationssymmetrie

$$M_q = -4J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle (1 - \cos q) - 4J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle (1 - \cos 2q) , \quad (4.1)$$

die Auswertung von Gleichung (3.64) liefert die Dispersion

$$\omega_q^2 = \sum_{i,j=1,2} J_i J_j (1 - \cos iq) (K_{i,j} + 4\alpha_i \langle S_i^- S_0^+ \rangle (1 - \cos jq)) \quad (4.2)$$

mit

$$\begin{aligned} K_{1,1} &= \frac{4}{3} S(S+1) + 2\lambda_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\alpha_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle - 6\alpha_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle , \\ K_{2,2} &= \frac{4}{3} S(S+1) + 2\lambda_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\alpha_4 \langle S_4^- S_0^+ \rangle - 6\alpha_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle , \\ K_{1,2} &= 2\alpha_3 \langle S_3^- S_0^+ \rangle - 2\alpha_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle , \\ K_{2,1} &= 2\alpha_3 \langle S_3^- S_0^+ \rangle + 2\alpha_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle - 4\alpha_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle . \end{aligned}$$

Die uniforme statische Suszeptibilität ergibt sich nach Gleichung (3.68) zu

$$\chi_0 = \lim_{q \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{1}{2} \chi_q^{+-}(\omega) = \frac{-2J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle - 8J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle}{\Delta} \quad (4.3)$$

mit

$$\Delta = J_1^2 K_{1,1} + 4J_2^2 K_{2,2} + J_1 J_2 K_{1,2} + 4J_1 J_2 K_{2,1}. \quad (4.4)$$

Zur Berechnung der Korrelationslänge wurden in Abschnitt 3.4 zwei Varianten vorgestellt. Die übliche Definition nach Gleichung (3.72) liefert hier

$$\xi^2 = \frac{2(J_1 + 4J_2) (J_1 \alpha_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle + 4J_2 \alpha_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle) - J_2 (J_1 K_{2,1} + J_2 K_{2,2})}{\Delta} - \frac{1}{12}, \quad (4.5)$$

aus der alternativen Definition Gleichung (3.73) folgt

$$\xi^2 = \frac{2(J_1 + 4J_2) (J_1 \alpha_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle + 4J_2 \alpha_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle) - J_2 (J_1 K_{2,1} + J_2 K_{2,2})}{\Delta} + \frac{J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle}{J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle + 4J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle}. \quad (4.6)$$

Einsetzen der exakten Ergebnisse der Hochtemperaturentwicklung der Korrelationsfunktionen und Entwicklung des resultierenden Ausdrucks für große Temperaturen liefert für die erste Variante einen von Null verschiedenen Wert bei  $T \rightarrow \infty$ , die zweite Variante ergibt erwartungsgemäß  $\xi(T \rightarrow \infty) \rightarrow 0$ . Außerdem tritt in der ersten Variante der Fall auf, dass die Korrelationslänge bei hohen Temperaturen imaginär wird. Da sich der qualitative Verlauf nicht von dem in Abschnitt 5.5 unterscheidet und dort diskutiert wird, wird im Folgenden für die Korrelationslänge ausschließlich die zweite Variante verwendet.

Die Anwendung des Spektraltheorems (2.23) auf die Greensche Funktion (3.65),

$$G_q^{+-}(\omega) = \frac{M_q}{\omega^2 - \omega_q^2}, \quad (4.7)$$

liefert mit einer Fouriertransformation ein System selbstkonsistenter Gleichungen für die Korrelationsfunktionen im Ortsraum,

$$\langle S_i^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{N} \sum_{q(\neq 0)} C_q \cos(iq) + C^{(0)}, \quad (4.8)$$

$$\frac{2}{3} S(S+1) = \frac{1}{N} \sum_{q(\neq 0)} C_q + C^{(0)} \quad (4.9)$$

mit

$$C_q = \frac{M_q}{2\omega_q} (1 + 2n(\omega_q)).$$

Im Falle einer endlichen Systemgröße  $N$  mit periodischen Randbedingungen ergeben sich die im System auftretenden Wellenvektoren zu

$$q = \frac{2\pi}{N}n, \quad \text{mit } n = 0, \dots, N-1.$$

Hier ist der additive Term wegen [49]

$$\chi_0 = \frac{1}{T} \sum_n \langle S_n^z S_0^z \rangle = \frac{1}{2T} \sum_n \langle S_n^- S_0^+ \rangle = \frac{N}{2T} C^{(0)}$$

immer endlich und damit bestimmt durch die Gleichung

$$\frac{-2J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle - 8J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle}{\Delta} = \frac{N}{2T} C^{(0)}. \quad (4.10)$$

Im thermodynamischen Limes hingegen lautet das System selbstkonsistenter Gleichungen für die Korrelationsfunktionen im Ortsraum

$$\begin{aligned} \langle S_i^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq C_q \cos iq + C^{(0)}, \\ \langle S_0^- S_0^+ \rangle &= \frac{2}{3} S(S+1) = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq C_q + C^{(0)}. \end{aligned} \quad (4.11)$$

Die RGM erfüllt das Mermin-Wagner-Theorem [60]. Der Kondensatterm  $C^{(0)}$ , der nach Gleichung (3.69) mit der Magnetisierung verknüpft ist, verschwindet bei  $T \neq 0$ .

Im Folgenden sollen die Grundzustandseigenschaften betrachtet werden. Im ferromagnetischen Regime  $J_2/|J_1| < 0.25$  ist das Ergebnis für die Korrelationsfunktionen exakt bekannt, da der vollständig polarisierte Zustand der exakte Eigenzustand ist. Es gilt

$$\langle S_i^- S_0^+ \rangle = \frac{2}{3} S^2 + \frac{2}{3} S \delta_{i,0}.$$

Dies liefert aus den Gleichungen (4.11) die Relationen

$$C_q(T=0) = \frac{M_q(T=0)}{2\omega_q(T=0)} = \frac{2}{3} S, \quad C^{(0)}(T=0) = \frac{2}{3} S^2. \quad (4.12)$$

Aus Gleichung (3.69) ergibt sich die zu erwartende Magnetisierung

$$m = \frac{1}{2}.$$

Wegen

$$M_q(T=0) = -\frac{8}{3} S^2 [J_1 (1 - \cos q) + J_2 (1 - \cos 2q)]$$

muss nach der ersten Gleichung (4.12)

$$\omega_q = 2S [J_1 (1 - \cos q) + J_2 (1 - \cos 2q)]$$

gelten. Dieses liefert aus der Definition der Dispersion (4.2)

$$K_{i,j}(T=0) = 0,$$

da  $\omega_q^2(T=0)$  aufgrund dieser Forderung nicht linear von  $(1 - \cos iq)$ ,  $i = 1, 2$ , abhängen darf. Daher folgt  $\alpha_1(T=0) = \alpha_2(T=0) = \alpha_3(T=0) \equiv \alpha$  und

$$\begin{aligned} 0 &= (S+1) + \lambda_1(T=0)S - 2\alpha S, \\ 0 &= (S+1) + \lambda_2(T=0)S + \alpha_4 S - 3\alpha S. \end{aligned} \quad (4.13)$$

Damit gilt für die Dispersion des Grundzustandes

$$\omega_q(T=0) = \sqrt{\frac{8}{3}S^2\alpha [J_1(1 - \cos q) + J_2(1 - \cos 2q)]} \quad (4.14)$$

und daher mit Gleichung (4.12)

$$\alpha = \frac{3}{2}.$$

Für die  $\lambda_i$  ergibt sich aus den Gleichungen (4.13)

$$\lambda_1(T=0) = \lambda_2(T=0) = 2 - \frac{1}{S}.$$

Hierbei wurde  $\alpha_4(T=0) = \alpha(T=0)$  verwendet. Für den Spezialfall  $S = 1/2$  und damit  $\lambda_i = 0$  folgt dies aus den Gleichungen (4.13), aufgrund der Unabhängigkeit des  $\alpha$  von  $S$  lässt sich dann für beliebige  $S$  auf diese Gleichheit schließen.

Es bleibt noch anzumerken, dass aufgrund von  $K_{i,j} = 0$  aus Gleichung (4.4)  $\Delta = 0$  und damit die bei  $T = 0$  für die ferromagnetische Phase charakteristische Divergenz von Suszeptibilität und Korrelationslänge folgt.

Ebenfalls exakt bekannt sind die Korrelationsfunktionen im Hochtemperaturlimes  $T \rightarrow \infty$ . In den Grenzfällen  $J_2 = 0$  beziehungsweise  $J_1 = 0$  kann mit dieser Information in den Gleichungen der Korrelationsfunktionen  $C_q$  der Ausdruck  $1 + 2n(\omega_q) \approx T/\omega$  gesetzt, die resultierenden Gleichungen für kleine Korrelationsfunktionen  $\langle S_i^- S_0^+ \rangle$  entwickelt und das so erhaltene Gleichungssystem iterativ gelöst werden [38]. Die Gültigkeit der Ergebnisse wird auch für das vollständige Modell angenommen, da sie unabhängig von den Kopplungskonstanten sind. Dies liefert [62, 64, 104]

$$\alpha_1 = \alpha_2 = \alpha_3 = \alpha_4 = 1, \quad \lambda_1 = \lambda_2 = 1 - \frac{3}{4S(S+1)}.$$

Das Ergebnis lässt sich numerisch verifizieren.

Im Grundzustand und im Hochtemperaturlimes sind alle vier  $\alpha_i$  ebenso wie die zwei  $\lambda_i$  identisch. Somit kann angenommen werden, dass sie auch im Temperaturverlauf nicht stark voneinander abweichen und gleichgesetzt werden können. Um die Gleichungssysteme (4.8) beziehungsweise (4.11) bei endlichen Temperaturen selbstkonsistent lösen zu können, wird nach [62, 64] der Quotient

$$\frac{\lambda(T) - \lambda(\infty)}{\alpha(T) - \alpha(\infty)} = r(T) = r(0)$$

als temperaturunabhängig angenommen, was zur Gleichung

$$\frac{\lambda(T) + \frac{3}{4S(S+1)} - 1}{\alpha(T) - 1} = 2 - \frac{1 + 4S}{2S(S+1)} \quad (4.15)$$

führt.

#### 4.2.2 Die Gleichungen der Greenfunktionsmethode mit äußerem Magnetfeld und der Spinquantenzahl $S = 1/2$

Die Momentenmatrix (3.22) für die Greensche Funktion der longitudinalen Korrelationsfunktionen lautet für das translationsinvariante eindimensionale  $J_1$ - $J_2$ -Modell

$$M_q^{zz} = -2J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle (1 - \cos q) - 2J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle (1 - \cos q), \quad (4.16)$$

die Dispersionsrelation (3.24) ergibt sich zu

$$(\omega_q^{zz})^2 = \sum_{i,j=1,2} J_i J_j (1 - \cos iq) (K_{i,j}^{zz} + 4\alpha_i^{zz} \langle S_i^- S_0^+ \rangle (1 - \cos jq)) \quad (4.17)$$

mit

$$\begin{aligned} K_{1,1}^{zz} &= 1 + 2\alpha_2^{zz} \langle S_2^- S_0^+ \rangle - 6\alpha_1^{zz} \langle S_1^- S_0^+ \rangle, \\ K_{2,2}^{zz} &= 1 + 2\alpha_4^{zz} \langle S_4^- S_0^+ \rangle - 6\alpha_2^{zz} \langle S_2^- S_0^+ \rangle, \\ K_{1,2}^{zz} &= 2\alpha_3^{zz} \langle S_3^- S_0^+ \rangle - 2\alpha_1^{zz} \langle S_1^- S_0^+ \rangle, \\ K_{2,1}^{zz} &= 2\alpha_3^{zz} \langle S_3^- S_0^+ \rangle + 2\alpha_1^{zz} \langle S_1^- S_0^+ \rangle - 4\alpha_2^{zz} \langle S_2^- S_0^+ \rangle. \end{aligned}$$

Mit der Greenschen Funktion (3.25),

$$G_q^{zz}(\omega) = \frac{M_q^{zz}}{\omega^2 - (\omega_q^{zz})^2}, \quad (4.18)$$

liefert das Spektraltheorem (2.23) unter Berücksichtigung des ferromagnetischen Ordnungsvektors  $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$  und des Kondensatterms (3.57) im thermodynamischen Limes das Gleichungssystem

$$\langle S_i^z S_0^z \rangle = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq C_q^{zz} \cos iq + \langle S^z \rangle^2 \quad (4.19)$$

mit

$$C_q^{zz} = \frac{M_q^{zz}}{2\omega_q^{zz}} (1 + 2n(\omega_q^{zz})).$$

Für die Greensche Funktion der transversalen Korrelationsfunktionen lautet die Momentenmatrix (3.39)

$$M_q^{+-} = -2J_1 (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) (1 - \cos q) - 2J_2 (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle) (1 - \cos 2q) + 2h\langle S^z \rangle. \quad (4.20)$$

Die Dispersionsrelation (3.40) ergibt sich zu

$$(\omega_q^{+-})^2 = \sum_{i,j(=1,2)} J_i J_j (1 - \cos iq) \left( K_{i,j}^{+-} + 2\alpha_i^{+-} (\langle S_i^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_i^z S_0^z \rangle) (1 - \cos jq) \right) \quad (4.21)$$

mit

$$\begin{aligned} K_{1,1}^{+-} &= 1 + \alpha_2^{+-} (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle) - 3\alpha_1^{+-} (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) , \\ K_{2,2}^{+-} &= 1 + \alpha_4^{+-} (\langle S_4^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_4^z S_0^z \rangle) - 3\alpha_2^{+-} (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle) , \\ K_{1,2}^{+-} &= \alpha_3^{+-} (\langle S_3^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_3^z S_0^z \rangle) - \alpha_1^{+-} (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) , \\ K_{2,1}^{+-} &= \alpha_3^{+-} (\langle S_3^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_3^z S_0^z \rangle) + \alpha_1^{+-} (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) - 2\alpha_2^{+-} (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle) . \end{aligned}$$

Aus der Partialbruchzerlegung der Greenschen Funktion

$$\langle\langle S_q^+; S_{-q}^- \rangle\rangle = \sum_{i=1,2} \frac{A_{qi}}{\omega - \omega_{qi}}, \quad \omega_{q1,2} = h \pm \omega_q^{+-} \quad (4.22)$$

mit

$$A_{q1,2} = \langle S^z \rangle \pm \frac{1}{2\omega_q^{+-}} (M_q^{+-} - 2h\langle S^z \rangle)$$

erhält man durch Anwendung des Spektraltheorems (2.23) die gesuchten transversalen Korrelationsfunktionen im thermodynamischen Limes

$$\langle S_i^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq C_q^{-+} \cos iq \quad (4.23)$$

mit

$$C_q^{-+} = \sum_{i=1,2} A_{qi} n(\omega_{qi}) .$$

Weitere Gleichungen zur selbstkonsistenten Lösung des Gleichungssystems liefern die Summenregel (3.54),

$$\langle S^z \rangle = \frac{1}{2} - \langle S_0^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{2} - \frac{1}{\pi} \int_0^\pi c_q^{-+} dq, \quad (4.24)$$

sowie die Summenregel  $\langle S_i^z S_i^z \rangle = S^2 = 0.25$  durch

$$\langle S_0^z S_0^z \rangle = \frac{1}{4} = \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq C_q^{zz} + \langle S^z \rangle^2. \quad (4.25)$$

Die höhere Summenregel (3.56) ergibt sich für das betrachtete Modell zu

$$\begin{aligned} \frac{1}{\pi} \int_0^\pi dq \left( \frac{(\omega_q^{+-}) A_{q1}}{e^{\beta(h+\omega_q^{+-})} - 1} - \frac{(\omega_q^{+-}) A_{q2}}{e^{\beta(h-\omega_q^{+-})} - 1} \right) &= 2J_1 \left( \frac{1}{2} \langle S_1^- S_0^+ \rangle + \langle S_1^z S_0^z \rangle - \frac{1}{2} \langle S^z \rangle \right) \\ &+ 2J_2 \left( \frac{1}{2} \langle S_2^- S_0^+ \rangle + \langle S_2^z S_0^z \rangle - \frac{1}{2} \langle S^z \rangle \right), \quad (4.26) \end{aligned}$$

die Regularitätsbedingung (3.50) lautet

$$2h\langle S^z \rangle = -2J_1 (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) (1 - \cos q_c) - 2J_2 (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle) (1 - \cos 2q_c) . \quad (4.27)$$

Weiterhin gilt die Suszeptibilitätsgleichung (3.59)

$$\frac{\partial \langle S^z \rangle}{\partial h} = \frac{-2J_1 \langle S_1^- S_0^+ \rangle - 8J_2 \langle S_2^- S_0^+ \rangle}{\Delta^{zz}} \quad (4.28)$$

mit

$$\Delta^{zz} = J_1^2 K_{1,1}^{zz} + 4J_2^2 K_{2,2}^{zz} + J_1 J_2 (K_{1,2}^{zz} + 4K_{2,1}^{zz}) .$$

Diese Gleichung wird ausgewertet, indem die Ableitung durch den Differenzenquotienten

$$\frac{\partial \langle S^z \rangle}{\partial h} = \frac{\langle S^z (h + dh) \rangle - \langle S^z (h) \rangle}{dh}$$

ersetzt wird. Dies bedeutet, dass die Korrelationsfunktionen, die Summenregeln und die Regularitätsbedingung sowohl bei der Feldstärke  $h$  als auch bei  $h + dh$  berechnet werden müssen. Damit fehlt noch eine Gleichung. Diese ist wie in [30] durch

$$\Delta^{zz} (h) = \Delta^{zz} (h + dh) \quad (4.29)$$

gegeben [106], wo dieses Vorgehen mit Erfolg auf die rein ferromagnetische Kette angewendet wurde.

Mit den jeweils vier Gleichungen (4.23) und (4.19), den drei Summenregeln, der Regularitätsbedingung und der Suszeptibilitätsgleichung gibt es 13 Gleichungen für die 17 offenen Größen  $\langle S_i^- S_0^+ \rangle$ ,  $\langle S_i^z S_0^z \rangle$ ,  $\alpha_i^{+-}$ ,  $\alpha_i^{zz}$  und  $\langle S^z \rangle$  mit  $i = 1, \dots, 4$ . Um eine selbstkonsistente Lösung zu ermöglichen, werden den nächsten-Nachbar-Korrelationsfunktionen  $\langle S_1^- S_0^+ \rangle$  und  $\langle S_i^z S_0^z \rangle$  die Vertexparameter  $\alpha_1^{+-}$  beziehungsweise  $\alpha_1^{zz}$  zugeordnet, die weiteren Vertexparameter werden durch  $\alpha_2^{+-} = \alpha_3^{+-} = \alpha_4^{+-}$  und  $\alpha_2^{zz} = \alpha_3^{zz} = \alpha_4^{zz}$  gleichgesetzt.  $\alpha_1^{+-}$  und  $\alpha_1^{zz}$  werden unterschieden, da die zugehörigen Korrelationsfunktionen zur dominanten Kopplung  $J_1$  gehören.

Weiterhin soll die Korrelationslänge bestimmt werden. Durch den Bruch der Rotationssymmetrie durch das Feld in  $z$ -Richtung gibt es unterschiedliche Korrelationslängen in der  $x - y$ -Ebene und der  $z$ -Richtung im Spinraum. Da bereits im feldfreien Fall die übliche Definition nach Gleichung (3.72) als ungeeignet verworfen wurde, werden hier nur die Ergebnisse der alternativen Definition Gleichung (3.73) angegeben. Damit folgt

$$(\xi^{+-})^2 = -\frac{J_1 (\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_1^z S_0^z \rangle) + 4J_2 (\langle S_2^- S_0^+ \rangle + 2\langle S_2^z S_0^z \rangle)}{2\langle S^z \rangle h} - \frac{\Delta^{+-}}{2h^2} \quad (4.30)$$

mit

$$, \Delta^{+-} = J_1^2 K_{1,1}^{+-} + 4J_2^2 K_{2,2}^{+-} + J_1 J_2 (K_{1,2}^{+-} + 4K_{2,1}^{+-})$$

sowie

$$\begin{aligned}
(\xi^{zz})^2 &= \frac{2(J_1 + 4J_2)(J_1\alpha_1^{zz}\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 4J_2\alpha_2^{zz}\langle S_2^- S_0^+ \rangle)}{\Delta^{zz}} \\
&+ \frac{2J_2\langle S_2^- S_0^+ \rangle}{2J_1\langle S_1^- S_0^+ \rangle + 8J_2\langle S_2^- S_0^+ \rangle} - \frac{J_2(J_1K_{21}^{zz} + J_2K_{22}^{zz})}{\Delta^{zz}}. \tag{4.31}
\end{aligned}$$

Die Definition von  $\xi^{zz}$  unterscheidet sich leicht von der in [105] angegebenen. Die dort gezeigten Korrelationslängen sind jedoch nur marginal größer und besitzen einen identischen Verlauf.

### Grundzustandseigenschaften

Die Grundzustandsresultate der Korrelationsfunktionen bei einer endlichen Feldstärke  $h$  lauten exakt

$$\langle S_n^- S_0^+ \rangle (T=0) = 0, \quad \langle S_n^z S_0^z \rangle (T=0) = S^2 = \frac{1}{4}, \quad \langle S^z \rangle (T=0) = S = \frac{1}{2}. \tag{4.32}$$

Da  $\langle S_n^- S_0^+ \rangle (T=0)$  unabhängig von  $n$  ist, müssen nach Gleichung 4.23 die  $A_{q1,2}(T=0)$  unabhängig von  $q$  sein. Dies hat zur Folge, dass  $K_{ij}^{+-} = 0$  gelten muss. Daraus folgt

$$\alpha_i^{+-} (T=0) = 1.$$

und auch

$$\xi^{+-} (T=0) = \sqrt{-\frac{J_1 + 4J_2}{2h}}. \tag{4.33}$$

$\alpha_i^{zz}$  und  $\Delta^{zz}$  und daraus abgeleitete Größen können nur im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  bestimmt werden, da  $\lim_{T \rightarrow 0} M_q^{zz} = 0$  gilt [30, 105].

## 4.3 Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand

Im Folgenden wird  $J_1 = -1$  gesetzt. Die Lösung des Gleichungssystems erfolgt mit dem Broydn-Verfahren mit einer Genauigkeit von  $10^{-8}$  [107], die im thermodynamischen Limes benötigte numerische Integration der Momente erfolgt per Gauss-Legendre-Integration mit 1000 Stützstellen. Als renormierte Temperaturskala wird  $t = T/S(S+1)$  verwendet, da im Hochtemperaturlimes die physikalischen Größen eine  $t$ -Abhängigkeit, welche unabhängig von  $S$  ist, aufweisen [23, 24]. Andere Temperaturskalen werden nur verwendet, wenn speziell der Tieftemperaturbereich untersucht werden soll. Hier renormiert die Temperatur in einer anderen Art, Näheres dazu an den entsprechenden Stellen im Text.



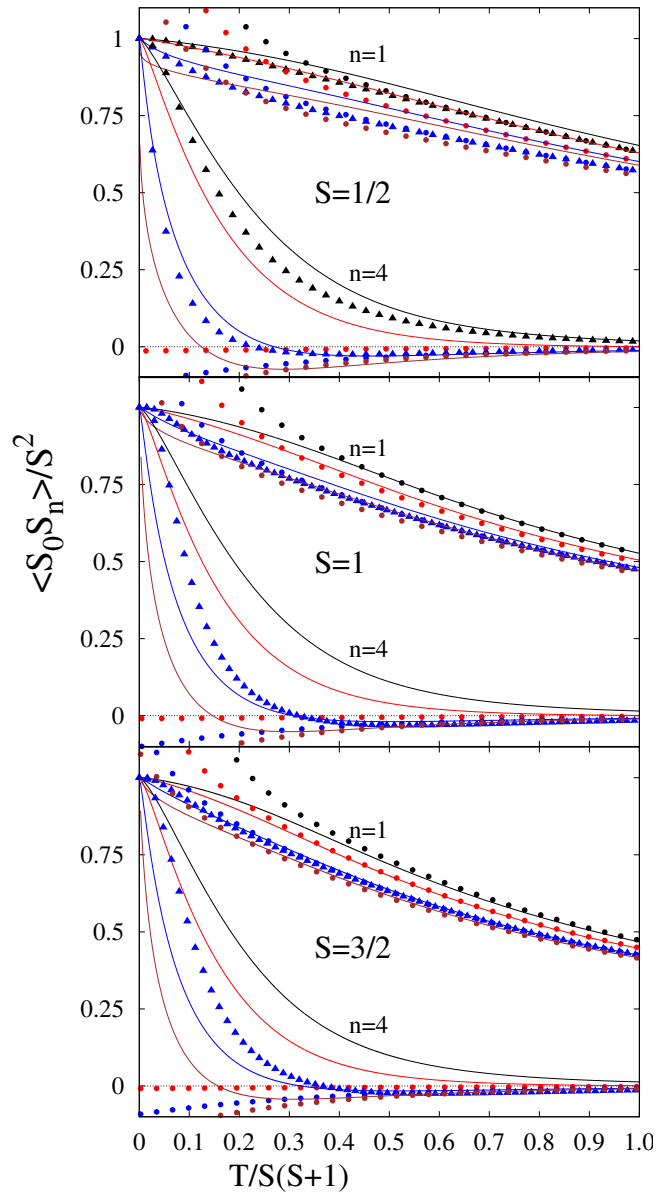


Abbildung 4.4: Nächste-Nachbar ( $n = 1$ ) und viertnächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen ( $n = 4$ ) der frustrierten ferromagnetischen Kette für verschiedene  $S$  mit  $J_2 = 0$  (schwarz),  $J_2 = 0.1$  (rot),  $J_2 = 0.2$  (blau) und  $J_2 = 0.24$  (braun). Außerdem sind zum Vergleich ED-Resultate für  $J_2 = 0.2$  (bei  $S = 1/2$  auch für  $J_2 = 0$ ) (Dreiecke) und Daten der [3,3]-Padé-Approximation der HTE bis zur sechsten Ordnung ([23], Punkte in den entsprechenden Farben) dargestellt.

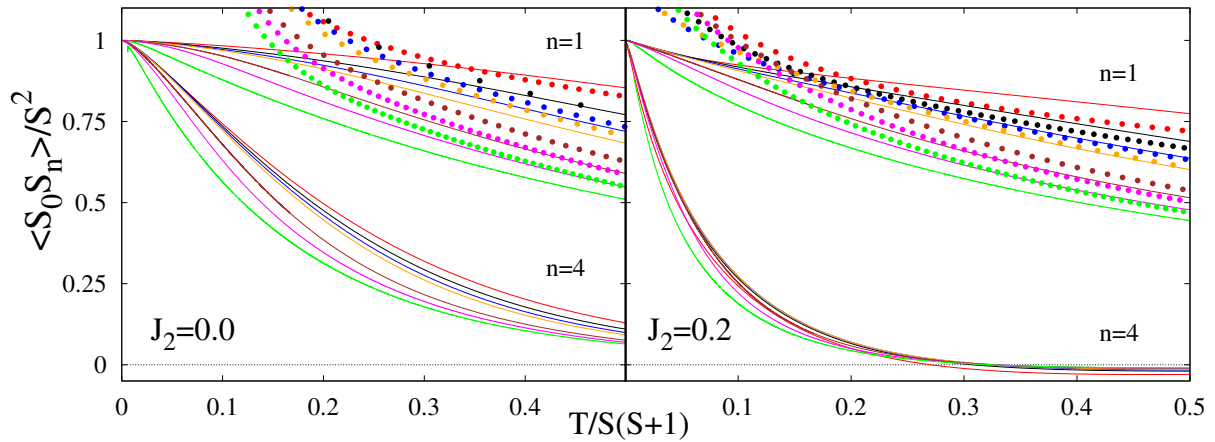


Abbildung 4.5: Nächste-Nachbar ( $n = 1$ ) und viertnächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen ( $n = 4$ ) der frustrierten ferromagnetischen Kette mit  $S = 1/2$  (rot),  $S = 1$  (schwarz),  $S = 3/2$  (blau),  $S = 2$  (orange),  $S = 5$  (braun),  $S = 10$  (magenta) und  $S = 50$  (grün) für  $J_2 = 0$  und  $J_2 = 0.2$ . Zum Vergleich dargestellt sind außerdem die Ergebnisse für  $n = 1$  der [3,3]-Padé-Approximation der HTE [23] in den entsprechenden Farben.

### 4.3.1 Korrelationsfunktionen

Die Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \rangle$  und  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_4 \rangle$  für  $S = 1/2, 1$  und  $3/2$  für  $J_2 = 0, 0.1, 0.2, 0.22$  und  $0.24$  sind in Abbildung 4.4 dargestellt. Eine zunehmender Frustrationsparameter  $J_2$  führt zu einem im Temperaturverlauf schnelleren Abklingen.

Die numerischen Lösungen reproduzieren den korrekten Wert  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_n \rangle (T = 0) = S^2$  für  $n > 0$ . Im Hochtemperaturlimes stimmen die Kurvenverläufe mit denen der ebenfalls dargestellten Ergebnisse der [3,3]-Padé-Approximation der Hochtemperaturentwicklung (HTE) [23] überein<sup>4</sup>. Zu bemerken ist außerdem, dass ein Wachsen der Spinquantenzahl  $S$  zu einer besseren Übereinstimmung zwischen rotationsinvarianter Greenfunktionsmethode (RGM) und HTE bei mittleren Temperaturen führt. So zeigen die Kurven der nächsten-Nachbar-Korrelationsfunktion für  $T/S(S+1) \gtrsim 0.5$  bei  $S = 1/2$  im dargestellten Bereich Abweichungen voneinander, bei  $S = 1$  und  $3/2$  stimmen sie sehr gut überein. Dies ist auch die Größenordnung der Temperatur, bis zu der die HTE-Resultate vertrauenswürdig sind. Die Größe der Abweichungen bei den viertnächsten-Nachbar-Korrelationsfunktionen zwischen RGM und HTE ist hingegen für die dargestellten Spinquantenzahlen im Wesentlichen unabhängig von  $S$ .

Gezeigt sind auch die Ergebnisse der exakten Diagonalisierung (ED) für  $J_2 = 0.2$  und für  $S = 1/2$  ebenfalls für  $J_2 = 0$ . Die verwendeten Systemgrößen sind  $N = 20$  für  $S = 1/2$  und  $N = 8$  für  $S = 1$  und  $3/2$ . Hier zeigt sich für  $S = 1/2$  eine gute Übereinstimmung mit den RGM-Ergebnissen bei sehr niedrigen Temperaturen. Bei hohen Temperaturen fallen die Daten von  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_1 \rangle$  deutlich eher mit denen der Hochtemperaturentwicklung zusammen als die der Greenfunktionsmethode,

<sup>4</sup>Bei  $J_2 = 0$  lässt sich keine Padé-Approximation der viertnächsten-Nachbar-Korrelationsfunktion finden, da dort erst der vierte Koeffizient ungleich Null ist

bei  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_4 \rangle$  ist hier kein wesentlicher Unterschied auszumachen.

Interessant ist außerdem die Frage, wie die Spinquantenzahl  $S$  den Verlauf der Korrelationsfunktionen beeinflusst. Zur Beantwortung sind in Abbildung 4.5 die nächste- und die viertnächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen für  $S = 1/2, 1, 3/2, 2, 10$  und  $50$  mit  $J_2 = 0$  und  $J_2 = 0.2$  dargestellt. Ein wachsendes  $S$  hat zur Folge, dass die dargestellten Korrelationsfunktionen im Temperaturverlauf bei niedrigen Temperaturen  $T/S(S+1) \lesssim 0.2$  schneller abklingen.

Mit wachsendem  $S$  werden die Quantenfluktuationen immer stärker unterdrückt, bis sie im klassischen Limes  $S \rightarrow \infty$  verschwinden. Ein anschauliches Beispiel hierfür ist der Verlauf von  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_4 \rangle$  für  $J_2 = 0.2$ , wo ab einer bestimmten Temperatur Quantenfluktuationen für negative Korrelationsfunktionen sorgen. Mit wachsendem  $S$  wächst auch die Temperatur, bei der die negative Korrelation eintritt. Im klassischen Limes gibt es bei diesem Parameter keine negativen Korrelationen.

### 4.3.2 Spezifische Wärmekapazität

Der Begriff “spezifisch” bezeichnet eigentlich die Wärmekapazität pro Masse. Da die Masse der Spinträger bei den Betrachtungen keine Rolle spielt, kann sie zu Eins gesetzt werden. So ist die Bezeichnung äquivalent zu der hier verwendeten Definition Wärmekapazität pro Teilchen.

In Abbildung 4.6 sind die Resultate der RGM im thermodynamischen Limes und für endliche Systeme im Vergleich mit Ergebnissen der exakten Diagonalisierung endlicher Systeme, einer Transfermatrix-Renormierungsgruppentheorie (TMRG) [71] und der Hochtemperaturentwicklung [23, 24] dargestellt. Gemeint ist hier die spezifische Wärme pro Spin.

Für  $S = 1/2$  zeigt sich ein ähnlicher Verlauf der Daten der verwendeten Methoden. Im gezeigten Temperaturbereich bis  $T/S(S+1) = 0.8$  fallen sie jedoch nicht zusammen. Der Vergleich zwischen ED und TMRG liefert hingegen einen identischen Verlauf, von hohen Temperaturen kommend, bis  $T/S(S+1) \approx 0.2$ . Somit kann der Temperaturbereich abgeschätzt werden, in dem finite-size-Effekte einen Einfluss haben. Die [5,5]-Padé-Approximation stimmt für  $T/S(S+1) \gtrsim 0.7$  mit denen der exakten Diagonalisierung und, wo verfügbar, mit der TMRG überein. Diese Temperatur dient so als Abschätzung für den Gültigkeitsbereich der HTE. Es zeigt sich, dass mit der HTE das charakteristische breite Maximum erst reproduziert wird, wenn  $J_2$  groß genug ist. Außerdem ist anzumerken, dass im Rahmen der Greenfunktionsmethode bei  $J_2 = 0.24$  für  $S = 1/2$  die spezifische Wärme negativ wird, weshalb sich die Daten für diesen Parameter insbesondere bei tiefen Temperaturen als nicht vertrauenswürdig erweisen.

Bis auf die HTE zeigen die Methoden übereinstimmend, dass sich bei zunehmenden Werten von  $J_2$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum in der spezifischen Wärme ausbildet. Die exakte Diagonalisierung und die TMRG sagen dies für  $J_2 \geq 0.125$ , die Greenfunktionsmethode für  $J_2 \geq 0.16$  voraus [64]. In den Daten der exakten Diagonalisierung taucht für  $J_2 = 0.24$  sogar noch ein drittes Maximum auf, wie in Abbildung 4.7 zu sehen ist. Da diese Maxima in einem Temperaturbereich liegen, bei dem finite-size-Effekte eine Rolle spielen, werden dort Daten für verschiedene Systemgrößen dargestellt. Es zeigt sich, dass für  $S = 1/2$  die Maxima monoton mit

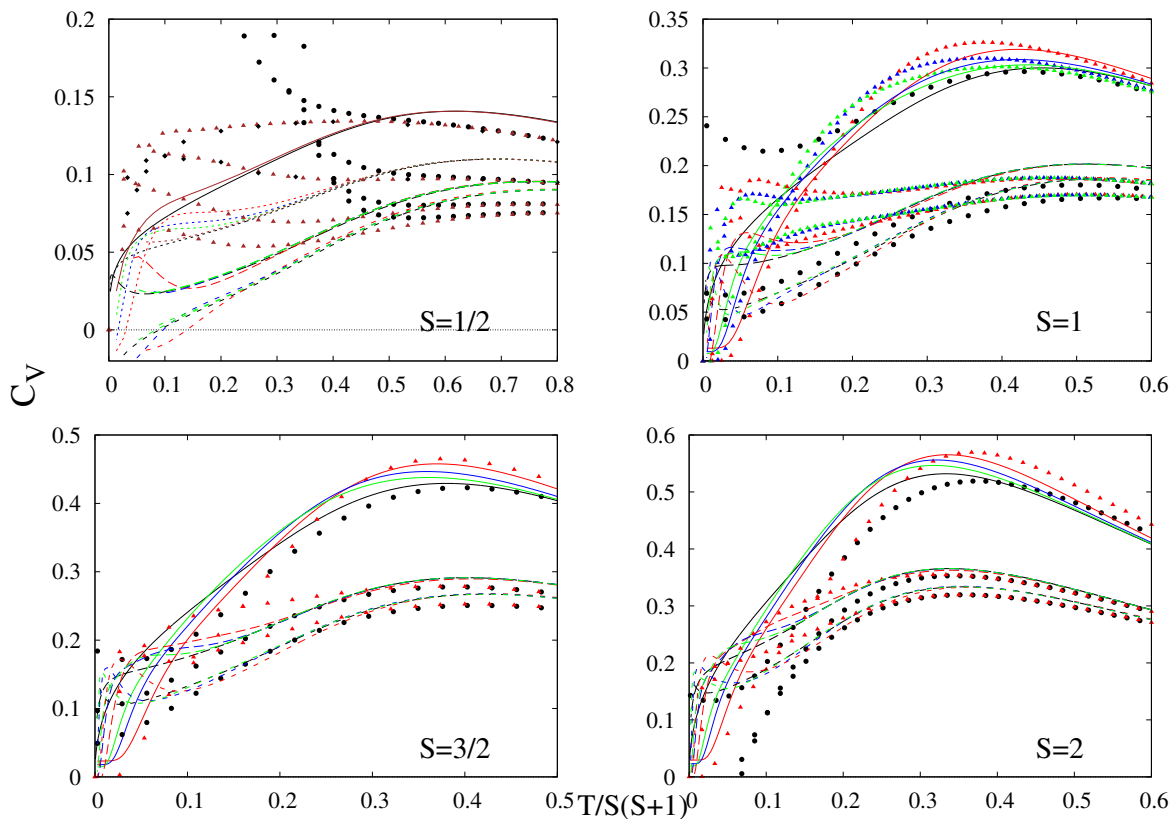


Abbildung 4.6: Spezifische Wärme der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  für  $J_2 = 0$ ,  $J_2 = 0.2$  und  $J_2 = 0.24$  sowie  $J_2 = 0.125$  für  $S = 1/2$  von oben nach unten. Neben den Ergebnissen aus der RGM im thermodynamischen Limes (schwarz) und für endliche Systeme ( $N = 8$  (rot),  $N = 10$  (blau),  $N = 8$  (grün),  $N = 20$  (braun)) sind Resultate aus einer exakten Diagonalisierung (Dreiecke,  $N$  entspricht der Farbe der RGM-Daten), einer TMRG [71] für  $S = 1/2$  (schwarze Rauten) und der [5,5]-Padé-Approximation der Daten der HTE [23, 24] (schwarze Kreise) dargestellt.

$N$  fallen. Daher werden Position und Höhe nach

$$a(N) = a_0 + \frac{a_1}{N^2} + \frac{a_2}{N^4}$$

extrapoliert [64, 104]. Die Ergebnisse sind ebenfalls in Abbildung 4.7 dargestellt. Somit bestätigen diese Daten die Aussage der Greenfunktionsmethode und der TMRG über die Existenz eines zusätzlichen Tieftemperaturmaximums. Das für  $J_2 = 0.24$  bei noch tieferen Temperaturen auftretende dritte Maximum hingegen ist ein finite-size Effekt.

Nun soll untersucht werden, welchen Einfluss die Spinquantenzahl  $S$  auf die spezifische Wärme und auf die mögliche Existenz eines zusätzlichen Tieftemperaturmaximums analog zu  $S = 1/2$  hat. Zunächst kann in Abbildung 4.6 gesehen werden, dass eine gute Übereinstimmung zwischen den verschiedenen Methoden besteht. Außerdem fällt auf, dass für  $S > 1/2$  die quantitative

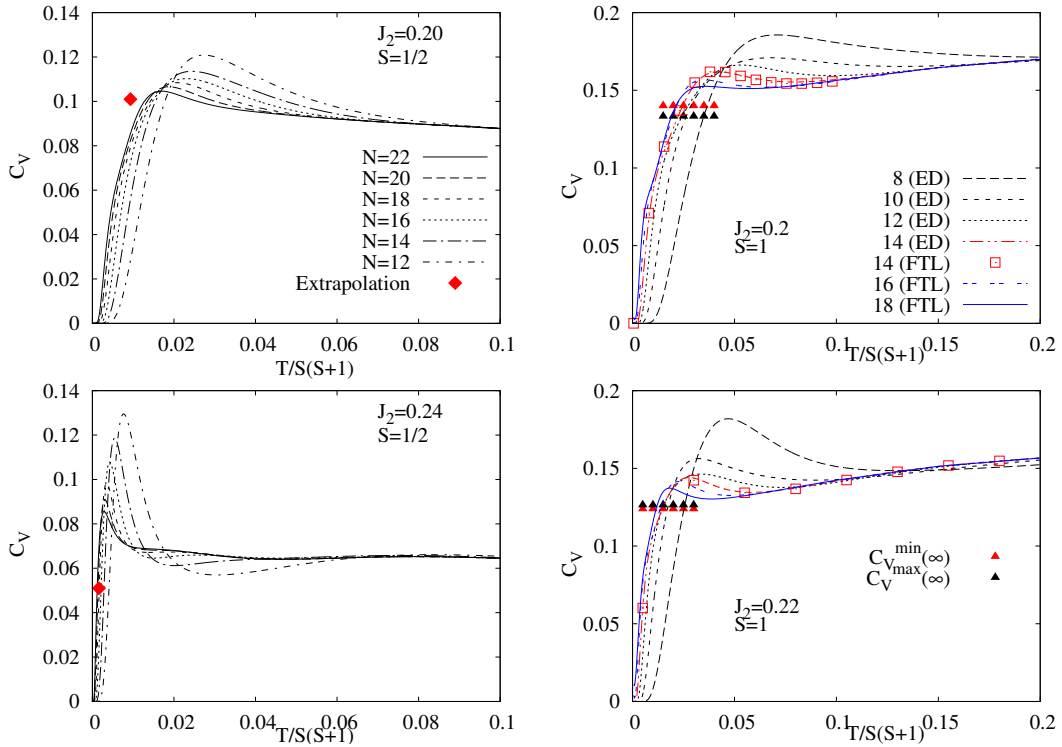


Abbildung 4.7: Spezifische Wärme der frustrierten ferromagnetischen Kette der exakten Diagonalisierung für  $S = 1/2$  (links) mit  $N = 12, 14, 16, 18, 20$  und  $22$  sowie  $S = 1$  (rechts) für  $J_2 = 0.2$  (oben) und  $J_2 = 0.22$  (unten) mit  $N = 8, 10, 12$  und  $14$ , zusammen mit Daten einer Lanczos-Näherungen für endliche Temperaturen (FTL) mit  $N = 14, 16, 18$  und  $20$ . Weiterhin gezeigt ist die Extrapolation des Maximums in den thermodynamischen Limes, für  $S = 1$  außerdem die Extrapolation des nahe gelegenen Minimums.

Übereinstimmung der Ergebnisse der Greenfunktionsmethode mit Vergleichsdaten der exakten Diagonalisierung und der Hochtemperaturentwicklung besser ist als bei  $S = 1/2$ . Im Vergleich der Greenfunktions- und ED-Daten für verschiedene Systemgrößen zeigt sich, dass sowohl die Stärke als auch der Temperaturbereich der finite-size-Effekte mit wachsendem  $J_2$  bei allen gezeigten Werten von  $S$  geringer wird. Auch der Vergleich mit der Hochtemperaturentwicklung bestätigt dies, die ED-Daten für  $N = 8$  fallen bei  $S = 3/2$  und  $S = 2$  bei  $J_2 \geq 0.2$  bereits bei  $T/S(S+1) \approx 0.3$  zusammen.

Wie auch in Abbildung 4.8 anhand der Daten der Greenfunktionsmethode deutlich wird, entwickelt sich auch für  $S = 1$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum, hier im Parameterbereich  $J_2 \gtrsim 0.21$  [104]. Um zu untersuchen, ob die exakte Diagonalisierung diese Aussage stützt, wird wiederum eine Extrapolation in den thermodynamischen Limes vorgenommen, diesmal sowohl von Position und Höhe des Maximums als auch des sich in dessen Nähe befindlichen Minimums. Um größere Systeme als  $N = 14$  berücksichtigen zu können, werden außerdem Daten einer Lanczos-Näherungen für endliche Temperaturen verwendet. Der Vergleich der exakten Daten und der Näherung, dargestellt in Abbildung 4.7, zeigt eine exzellente Übereinstimmung bis hin

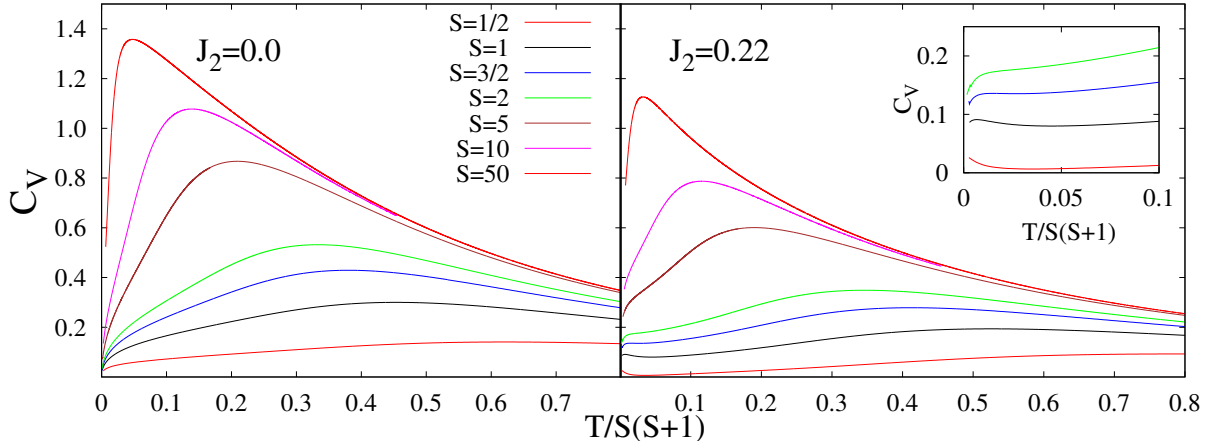


Abbildung 4.8: Spezifische Wärme der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  für  $J_2 = 0$  (links) und  $J_2 = 0.22$  (rechts). Der Inset zeigt die Daten von  $S = 1/2, 1, 3/2$  und  $2$  mit  $J_2 = 0.22$  in einer geänderten Skala, die Farben entsprechen der Legende im linken Bild.

zu niedrigsten Temperaturen, womit die genäherten Daten verwendet werden können.

Es zeigt sich, dass für  $J_2 = 0.2$  das extrapolierte Minimum höher als das Maximum ist, bei  $J_2 = 0.22$  das Minimum jedoch tiefer bleibt als das Maximum. Dies ist ein Hinweis, dass die exakte Diagonalisierung die Aussage der Greenfunktionsmethode bestätigt, dass sich analog zum Fall  $S = 1/2$  für  $J_2 > 0.2$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum entwickelt. Ob bei höheren Spinquantenzahlen ebenfalls noch ein Tieftemperaturmaximum auftaucht, soll hier nicht untersucht werden. Falls es existiert, wird der Frustrationsparameter, bei der es auftaucht, zu immer größeren Werten von  $J_2$  verschoben, im klassischen Limes verschwindet es<sup>5</sup>.

Die Ursache für das Auftreten der Doppelmaximumstruktur liegt bei einem subtilen Einfluss der Frustration auf die niedrigen Energieniveaus insbesondere bei kleinen Spinquantenzahlen. Mit wachsendem  $J_2$  kommt es zu einer Häufung von Energieniveaus nahe der Grundzustandsenergie.

Wie in Abbildung 4.6 zu sehen, sinkt die Höhe des breiten Maximums der spezifischen Wärme bei wachsendem  $J_2$ . Die Temperatur, bei der es auftritt, wächst leicht. Bei wachsenden  $S$  sinkt die Höhe, die Position wächst, vgl. Abbildung 4.8. Da diese Daten im Vergleich mit experimentell gemessenen Daten einen Hinweis auf die Größe von  $J_2$  liefern können, sind Höhe  $C_{V,\max}$  und Position  $T_{\max}(C_V)$  dieses Maximums in Abbildung 4.9 dargestellt. Die einzige Größe, die sich durch eine einfache Funktion beschreiben lässt, ist die Abhängigkeit der Position  $T(C_{V,\max})$  von  $S$  bei festem  $J_2$ . Diese fällt exponentiell mit

$$T(C_{V,\max}) = aS^{-\alpha}. \quad (4.34)$$

Da die Resultate des Fits an diese Funktion nur schwach von  $J_2$  abhängen, sind sie nicht grafisch dargestellt, sondern nur in Tabelle 4.1 aufgeführt. Die schwache Abhängigkeit von Position und

<sup>5</sup>Die spezifische Wärme des klassischen Heisenberg-Modells bleibt im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  endlich und verletzt somit den dritten Hauptsatz der Thermodynamik [108, 109].

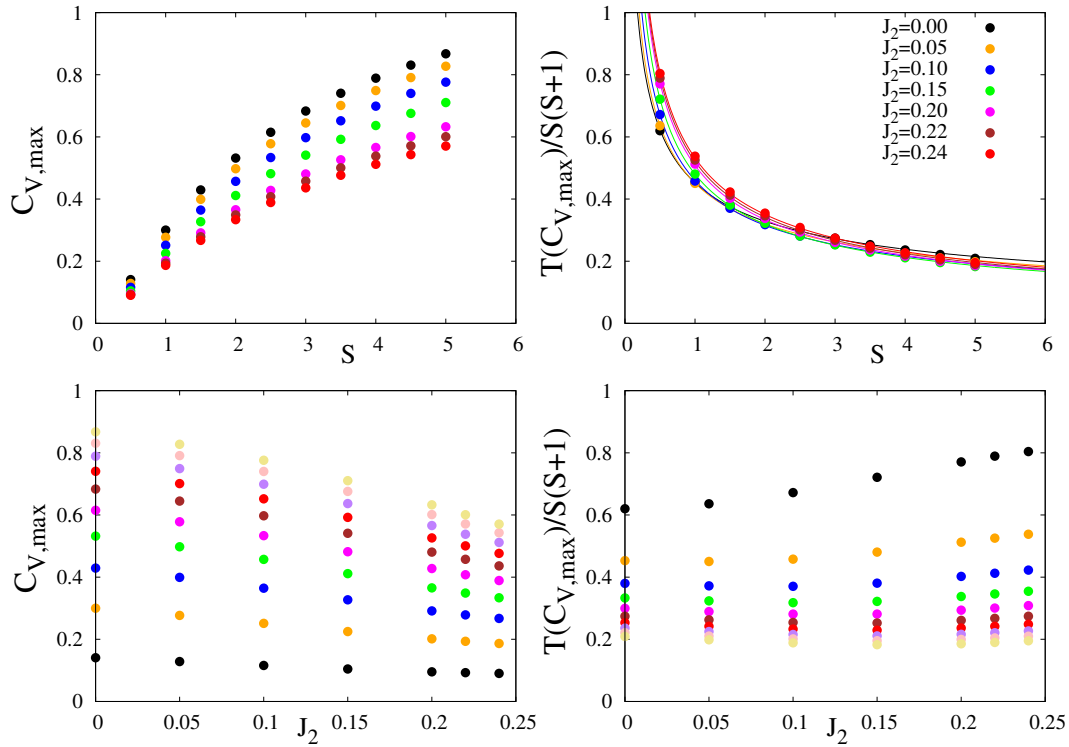


Abbildung 4.9: Höhe  $C_{V,\max}$  und Position  $T(C_{V,\max})$  des Maximums der spezifischen Wärme in Abhängigkeit der Spinquantenzahl  $S$  (oben, Bedeutung der Farben in der Legende) und  $J_2$  (unten) mit  $S = 1/2$  (schwarz),  $S = 1$  (orange),  $S = 3/2$  (blau),  $S = 2$  (grün),  $S = 5/2$  (magenta),  $S = 3$  (braun),  $S = 7/2$  (rot),  $S = 4$  (lila),  $S = 9/2$  (pink) und  $S = 5$  (kahki).

Höhe in  $J_2$  wird im unteren Teil von Abbildung 4.9 deutlich. Somit kann konstatiert werden, dass es anhand von experimentellen Messungen an schwach frustrierten eindimensionalen Ferromagneten schwierig sein wird, den Parameter  $J_2$  anhand des Maximums der spezifischen Wärme zu bestimmen. Erschwerend kommt hinzu, dass die aus der magnetischen Wechselwirkung resultierende spezifische Wärme mit dem phononischen Beitrag überlagert ist.

Abschließend sollen kurz einige nicht diskutierte Eigenschaften erwähnt werden. Das von Takahashi mit der modifizierten Spinwellentheorie bestimmte Tieftemperaturverhalten der spezifischen Wärme der ferromagnetischen Kette verhält sich gemäß [16]

$$C = \frac{3}{4} \frac{\zeta(3/2)}{\sqrt{2\pi}} \left( -\frac{T}{2SJ_1} \right)^{1/2} + \frac{1}{S} \left( \frac{T}{2SJ_1} \right) + O\left(T^{3/2}\right). \quad (4.35)$$

mit einem ferromagnetischen  $J_1 < 0$ . Diese Ergebnisse werden durch numerische Berechnungen aus dem Bethe-Ansatz im Rahmen der angegebenen Genauigkeit für  $S = 1/2$  bestätigt [110]. Eine Tieftemperaturentwicklung im Rahmen der Greenfunktionsmethode liefert in der ersten Ordnung eine identische Temperaturabhängigkeit, jedoch einen kleineren Vorfaktor [43]. Eine

$J_2$	$a$	$\alpha$
0.0	0.452457	0.461927
0.05	0.451559	0.497507
0.1	0.460455	0.545221
0.15	0.480339	0.589243
0.2	0.508435	0.607362
0.22	0.520904	0.607395
0.24	0.53241	0.603351

Tabelle 4.1: Ergebnisse des Fits von  $T(C_{V,\max})(S)$  an Gleichung (4.34) für ausgewählte Werte von  $J_2$

Anpassung der Daten der RGM an eine derartige Funktion ist nicht möglich, da der Temperaturbereich, in dem die ersten drei Ordnungen ausreichen, zu klein und insbesondere für kleine  $S$  numerisch nicht mehr zugänglich ist.

TMRG-Rechnungen zeigen, dass die Doppelmaximumstruktur in der spezifischen Wärme auch für  $J_2 > 0.25$  auftritt [71]. Dieses konnte mit ED-Daten für  $J_2 = 1/3$  bestätigt werden [83]. Die Höhe des breiten Maximums bei mittleren Temperaturen  $T/|J_2| \approx 0.6 \dots 0.7$  nimmt für ein wachsendes  $J_2$  nahe des quantenkritischen Punktes  $0.25 \leq J_2 < 0.5$  nur sehr leicht ab, auch die Position ist nahezu unabhängig von der Position [71]. Bereits für  $J_2 \gtrsim 0.6$  verschwindet die Doppelmaximumstruktur [75]. Das zweite, sehr scharfe Maximum entwickelt sich von sehr kleinen Temperaturen kommend bei wachsender übernächster-Nachbar-Wechselwirkung hin zu höheren Temperaturen und stimmt für  $J_2 \rightarrow \infty$ , also dem Grenzfall der antiferromagnetischen Kette, mit dem dort auftretenden einzigen, breiten Maximum überein [111].

Fazit:

Es wurde gefunden, dass die Höhe des Maximums in  $C_V(T)$  mit wachsender Spinquantenzahl  $S$  und fixiertem Verhältnis der Kopplungskonstanten wächst und die Position zu höheren Temperaturen verschoben wird. Bei festem  $S$  und wachsendem  $J_2$  sinkt die Höhe, die Temperatur, bei der es auftritt, wächst leicht. Für  $J_2 > 0.16$  (0.125) beziehungsweise  $J_2 > 0.21$  (0.2) für  $S = 1/2$  beziehungsweise  $S = 1$  tritt ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum auf, berechnet mit der RGM (ED).

### 4.3.3 Suszeptibilität

Die uniforme statische Suszeptibilität für  $S = 1/2, 1, 3/2$  und  $2$  ist für verschiedene Parameter  $J_2$  in Abbildung 4.10 dargestellt. Gezeigt sind Ergebnisse der Greenfunktionsmethode, der [5,5]-Padé-Approximation der zehnten Ordnung der Hochtemperaturentwicklung [23, 24], der TMRG für  $S = 1/2$  mit  $J_2 = 0$  und  $0.125$  [71], der exakten Diagonalisierung für verschiedene Systemgrößen  $N$  und des Bethe-Ansatzes für die unfrustrierte ferromagnetische  $S = 1/2$ -Kette [112].



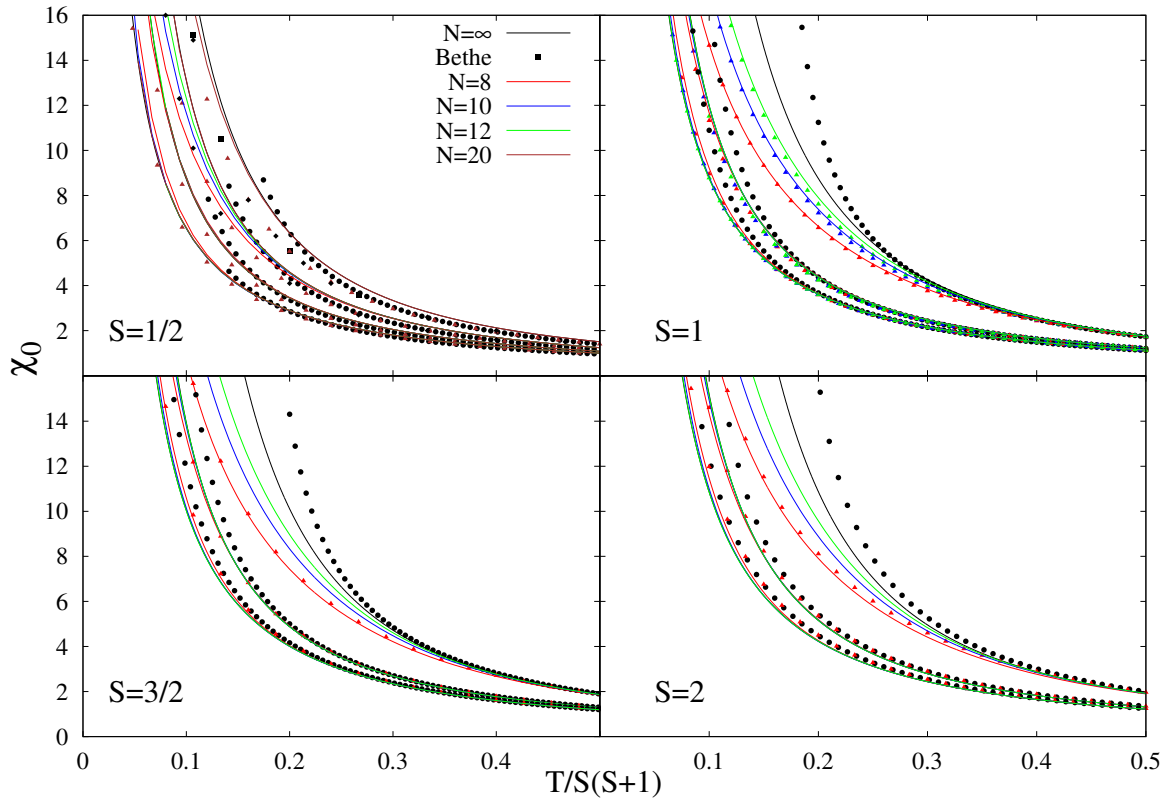


Abbildung 4.10: Suszeptibilität der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  für  $J_2 = 0$ ,  $J_2 = 0.2$  und  $J_2 = 0.24$  von oben nach unten. Für  $S = 1/2$  ist ebenfalls  $J_2 = 0.125$  gezeigt. Neben den Ergebnissen aus der RGM im thermodynamischen Limes und für endliche Systeme sind Resultate aus einer exakten Diagonalisierung (Dreiecke,  $N$  entspricht der Farbe der RGM-Daten), einer TMRG [71] (schwarze Rauten), des Bethe-Ansatzes [112] (schwarze Quadrate) und der [5,5]-Padé-Approximation der Daten der HTE [23, 24] (schwarze Kreise) dargestellt.

Alle Kurven divergieren erwartungsgemäß für  $T \rightarrow 0$ , was in Übereinstimmung mit dem Mermin-Wagner-Theorem einen Phasenübergang von der ungeordneten Phase bei endlichen Temperaturen zum ferromagnetischen Grundzustand indiziert. Zu sehen ist insbesondere für  $S > 1/2$  eine exzellente Übereinstimmung der Kurven der RGM für endliche Systeme mit den Ergebnissen der ED der entsprechenden Systemgrößen. Dies lässt vermuten, dass die Qualität der Ergebnisse im thermodynamischen Limes ebenfalls sehr hoch ist.

Alle Ergebnisse laufen bei hohen Temperaturen für alle dargestellten  $S$  im angegebenen Temperaturbereich zusammen. Hierbei fällt auf, dass die Temperatur, bis zu der die Daten der Hochtemperaturentwicklung mit denen der anderen Methoden übereinstimmen, für wachsendes  $J_2$  fällt.

Für  $S = 1/2$  stimmen im dargestellten Temperaturbereich die Daten der exakten Diagonalisierung, der TMRG und des Bethe-Ansatzes exzellent überein, die Greenfunktionsmethode weicht insbesondere bei mittleren Temperaturen  $T/S(S+1) \approx 0.15 \dots 0.4$  leicht von diesen Kurven ab.

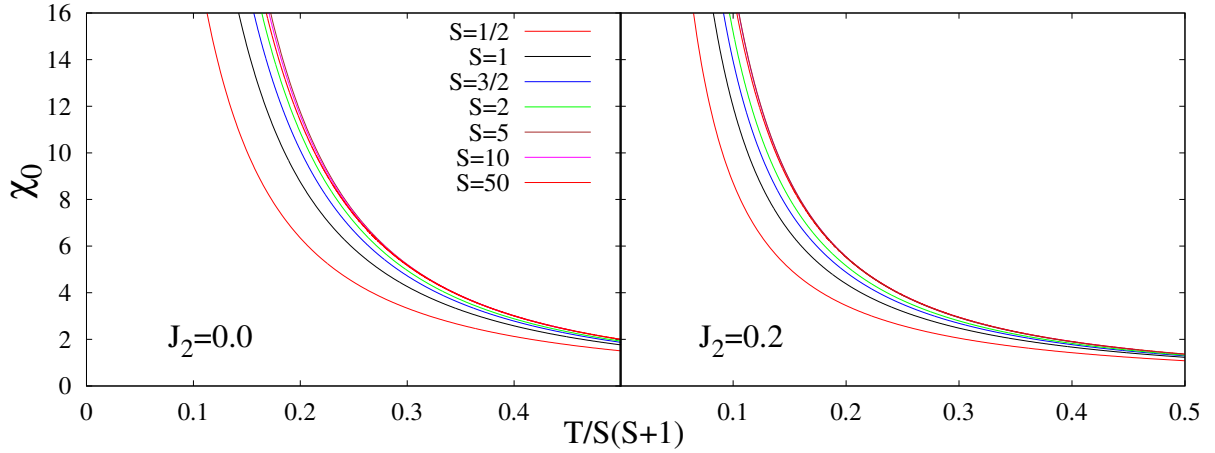


Abbildung 4.11: Suszeptibilität der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  für  $J_2 = 0$  und  $J_2 = 0.2$

Mit wachsendem Frustrationsparameter wird die Abweichung geringer.

Der Einfluss der Spinquantenzahl  $S$  wird in Abbildung 4.11 untersucht. Mit wachsendem  $S$  nähern sich die Kurven schnell an, bereits für  $S \geq 5$  ist, unabhängig von  $J_2$ , in der gewählten Darstellung kein Unterschied mehr zu  $S \geq 50$  zu sehen. Ein starker Einfluss von Quantenfluktuationen liegt nur bei niedrigen Temperaturen vor.

Das kritische Verhalten des frustrierten Ferromagneten, die Divergenz bei  $T \rightarrow 0$ , und insbesondere der Einfluss von  $J_2$  auf das Tieftemperaturverhalten sollen nun genauer untersucht werden. Hierzu wird zunächst der unfrustrierte Ferromagnet betrachtet. Hier findet Takahashi mit der modifizierten Spinwellentheorie [16]

$$\chi_0 = -\frac{8S^4 J_1}{3T^2} \left( 1 - \frac{3}{S} \frac{\zeta(1/2)}{\sqrt{2\pi}} \left( -\frac{T}{2SJ_1} \right)^{1/2} + \frac{3}{S^2} \frac{\zeta^2(1/2)}{2\pi} \left( -\frac{T}{2SJ_1} \right) + O\left(T^{3/2}\right) \right). \quad (4.36)$$

mit  $J_1 < 0$ . Diese Ergebnisse werden durch numerische Berechnungen aus dem Bethe-Ansatz im Rahmen der angegebenen Genauigkeit für  $S = 1/2$  bestätigt [110], eine Tieftemperaturentwicklung der Gleichungen der RGM [43] liefert für die erste Ordnung das identische Ergebnis<sup>6</sup>. Zur genaueren Analyse des Tieftemperaturverhaltens im Rahmen der Greenfunktionsmethode werden die Datenpunkte für  $\chi_0 T^2 / S^4$  an die Funktion

$$\frac{\chi_0 T^2}{S^4} = x_0 + x_1 \sqrt{T} + x_2 T \quad (4.37)$$

gefittet. Die Extrapolation erfolgt wie in [64, 104] von  $T_0$  bis  $T_0 + T_{\text{cut}}$  mit  $T_{\text{cut}} = 0.005$ , wobei  $T_0$  der tiefste erreichbare Datenpunkt der numerischen Auswertung bei einer Schrittweite

<sup>6</sup>Sowohl in [16] als auch in [110] ist die Suszeptibilität so gewählt, dass sie vier Mal so groß ist wie die in dieser Arbeit und in [43] definierte.

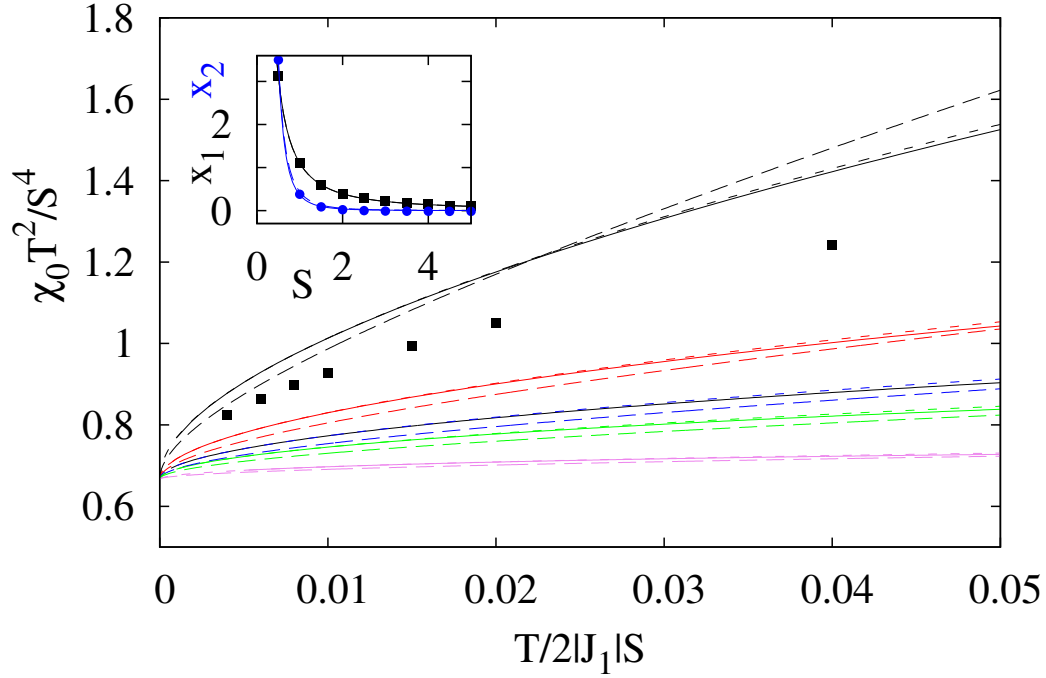


Abbildung 4.12: Suszeptibilität  $\chi_0 T^2/S^4$  über  $T/2|J_1|S$  der ferromagnetischen Kette ( $J_2 = 0$ , durchgezogene Linien) im Vergleich mit der modifizierten Spinwellentheorie aus [16] (lang gestrichelte Linien) und den Ergebnissen der Anpassung nach Gleichung (4.37) (kurz gestrichelte Linien) für  $S = 1/2$  (schwarz),  $S = 1$  (rot),  $S = 3/2$  (blau),  $S = 2$  (grün) und  $S = 5$  (violett). Das Inset zeigt die Resultate  $x_1$  (schwarz) und  $x_2$  (blau) mit den entsprechenden Fits (siehe Text). Für  $S = 1/2$  sind ebenfalls die Ergebnisse des Bethe-Ansatzes [112] gezeigt.

$\Delta T = 0.001$  ist, also sechs Datenpunkte verwendet werden. Dieses Vorgehen liefert die beste Übereinstimmung für  $x_0$  mit dem exakten Ergebnis aus dem Bethe-Ansatz. Verwendet werden die Datensätze bis einschließlich  $S = 5$ , da für größere  $S$  die Datenpunkte aufgrund des Faktors  $S^{-4}$  zu ungenau werden.

Die Suszeptibilität  $\chi_0 T^2/S^4$  über  $T/2|J_1|S$  mit  $J_2 = 0$  ist zusammen mit den Ergebnissen der Fits nach Gleichung (4.37) und den Ergebnissen der modifizierten Spinwellentheorie (4.36) in Abbildung 4.12 dargestellt. Die Resultate für  $x_0$  stimmen bis zur dritten Nachkommastelle mit dem Resultat von Takahashi,  $x_0 = 2/3$ , überein. Um die Abhängigkeit der Ergebnisse von  $x_1$  und  $x_2$  von  $S$  zu ermitteln, werden die Ergebnisse an die Funktionen

$$x_1^{(1)} = aS^\alpha, \quad x_2^{(1)} = bS^\beta \quad (4.38)$$

sowie nach Gleichung (4.36) an die Funktionen

$$x_1^{(2)} = aS^{-3/2}, \quad x_2^{(2)} = bS^{-3}$$

angepasst. Die Ergebnisse der Fits sind

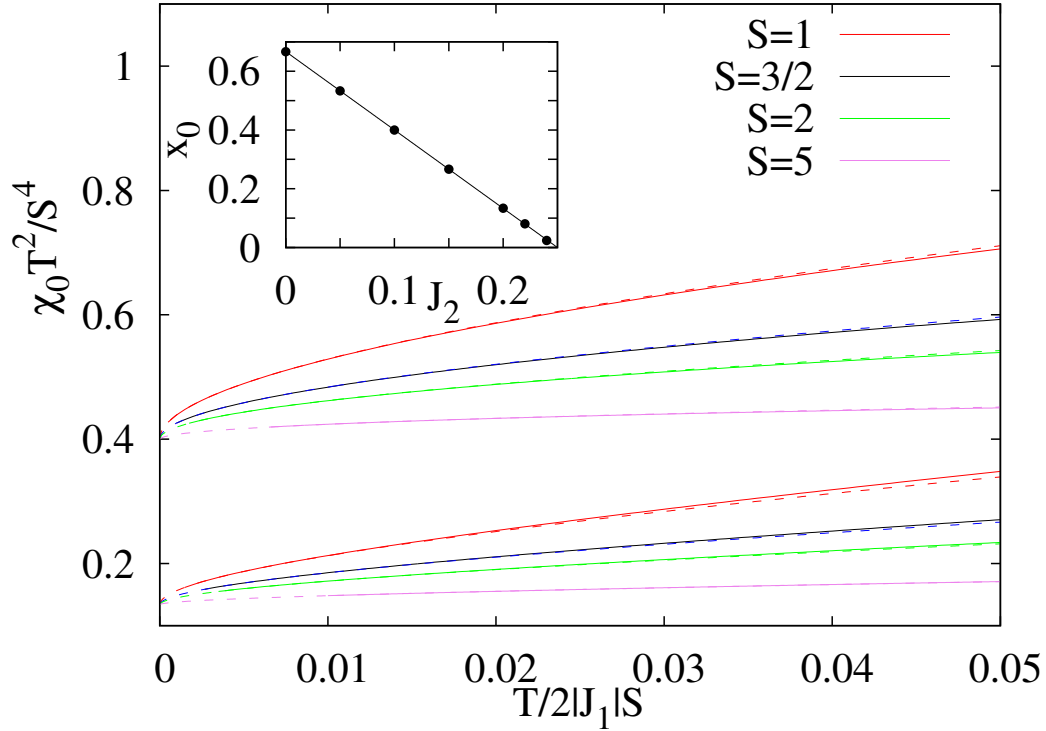


Abbildung 4.13: Suszeptibilität  $\chi_0 T^2 / S^4$  über  $T/2|J_1|S$  für  $J_2 = 0.1$  und  $J_2 = 0.2$  für einige exemplarische Werte von  $S$ . Der Inset zeigt den Mittelwert der Extrapolationen von  $x_0$  mit der Kurve  $f(J_2) = 2(1 - 4J_2)/2$ , vgl. Text.

	$a$	$\alpha$		$b$	$\beta$
$x_1^{(1)}$	1.10497	-1.49577	$x_2^{(1)}$	0.365952	-3.25694
$x_1^{(2)}$	1.10245	-1.5 (fixiert)	$x_2^{(2)}$	0.436001	-3 (fixiert)
[16]	1.23588	-1.5	[16]	0.50913	-3

Somit zeigt sich eine gute Übereinstimmung der RGM mit der modifizierten Spinwellentheorie und mit der exakten Bethe-Ansatz-Lösung für  $S = 1/2$  im Rahmen der numerischen Genauigkeit. Der leichte Unterschied zu den in [104] veröffentlichten Daten resultiert aus der zusätzlichen Berücksichtigung der Daten von  $S = 5/2, 3, 7/2, 4$  und  $9/2$  in den hier vorgenommenen Extrapolationen. Weiterhin ist in Abbildung 4.12 zu sehen, dass der Unterschied der Kurven mit offenem und festem Exponenten nicht zu erkennen ist sowie dass der Temperaturbereich, in dem die ersten drei Ordnungen ausreichen, mit  $T = 0 \dots 0.002$  sehr klein ist.

Nun soll die Frage untersucht werden, welchen Einfluss  $J_2$  auf die Parameter  $x_0$ ,  $x_1$  und  $x_2$  besitzt. Hierzu wird das identische Extrapolationsverfahren wie bei  $J_2 = 0$  angewendet. Verwendet werden Daten mit allen Spinquantenzahlen zwischen  $S = 1/2$  und  $S = 5$ . In Abbildung 4.13 sind exemplarisch die numerischen Daten zusammen mit der Extrapolation nach Gleichung (4.37) für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  mit den Spinquantenzahlen  $S = 1, 3/2, 2$  und  $5$  dargestellt. Zunächst ist anzumerken, dass bis einschließlich  $J_2 = 0.2$  alle Ergebnisse für  $x_0$  bis mindestens

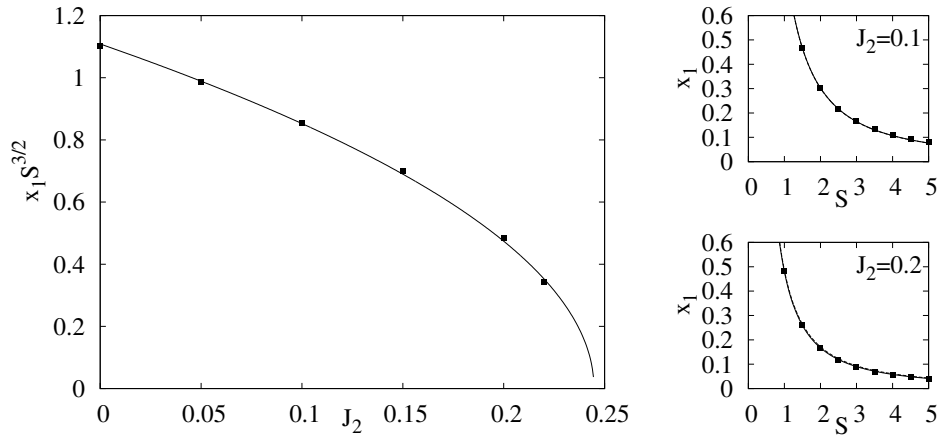


Abbildung 4.14: rechts:  $x_1$  für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  in Abhängigkeit von  $S$  zusammen mit der Extrapolation an Gleichung (4.38). links: Ergebnisse  $x_1 S^{3/2}$  zusammen mit der Kurve  $y_1 S^{3/2} = 1.109\sqrt{1 - 4J_2}$ .

drei Nachkommastellen übereinstimmen. Für  $J_2 = 0.22$  und insbesondere für  $J_2 = 0.24$  weichen die Ergebnisse von  $S = 1/2$  deutlich von denen der größeren Spinquantenzahlen ab. So ist für  $J_2 = 0.24$  das Ergebnis für  $x_0$  bei  $S = 1/2$  nur etwa halb so groß wie die Resultate für  $S \geq 1$ . Bei den folgenden Betrachtungen werden daher die  $S = 1/2$ -Ergebnisse für die Extrapolation bei  $J_2 = 0.22$  und  $0.24$  analog zum Vorgehen in [64] vernachlässigt.

Im Inset in Abbildung 4.13 sind die Mittelwerte der Ergebnisse für  $x_0$  mit den erwähnten Einschränkungen dargestellt. Es zeigt sich, dass sich die Datenpunkte exzellent durch

$$x_0 = \frac{2}{3}(1 - 4J_2)$$

beschreiben lassen.

Die Spinabhängigkeit  $x_1 \propto S^{-3/2}$  der ferromagnetischen Kette sollte sich auch für ein endliches  $J_2$  nicht ändern. Tatsächlich ergeben sich bei einem Fit mit einem offenen Exponenten nach Gleichung (4.38) für  $J_2 \leq 0.22$  Werte zwischen  $-1.496$  und  $-1.516$ . Die Ergebnisse dieser Fits sind für die Werte  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  auf der rechten Seite von Abbildung 4.14 ebenso wie die mit einem festen Exponenten  $S^{-3/2}$  dargestellt. Zwischen beiden Varianten ist kein Unterschied sichtbar. Bei  $J_2 = 0.24$  liefert der Fit mit offenem Exponenten einen Wert  $-1.087$ . Dieser weicht deutlich von dem erwarteten ab und wird deshalb weggelassen. Dass die RGM für diesen Wert keine guten Ergebnisse liefert, wurde bereits bei der spezifischen Wärme diskutiert, die bei  $S = 1/2$  negativ wird. Möglicherweise spielen nahe des Übergangspunktes Multi-Magnonen-Anregungen eine wichtige Rolle, die durch das verwendete Entkopplungsschema vernachlässigt wurden.

Die Ergebnisse des Fits  $a = x_1 S^{3/2}$  sind auf der linken Seite von Abbildung 4.14 dargestellt. Es zeigt sich, dass sich die Resultate sehr gut durch

$$x_1 = AS^{-3/2}\sqrt{1 - 4J_2} \quad \text{mit } A = 1.109$$

beschreiben lassen.

Die Ergebnisse für  $x_2$  sollen hier nicht diskutiert werden, da die Fits mit offenem Exponenten Resultate liefern, die stark um den erwarteten Wert  $-3$  schwanken. Ursache hierfür ist eine deutliche Abhängigkeit des Fitparameters von der Größe von  $T_{cut}$ .

Es findet sich für die Suszeptibilität der frustrierten ferromagnetischen Kette ein Tieftemperaturverhalten gemäß [104]

$$\frac{\chi_0 T^2}{S^4} = -\frac{2}{3} (J_1 + 4J_2) + 1.109 S^{-3/2} \sqrt{-(J_1 + 4J_2)} \sqrt{T}. \quad (4.39)$$

Eine solche Abhängigkeit lässt vermuten, dass am Quantenphasenübergang  $|J_1| = 4J_2$  ein Wechsel im Tieftemperaturverhalten der Suszeptibilität auftritt. Tatsächlich folgt aus feldtheoretischen Methoden am Übergangspunkt  $J_2/|J_1| = 0.25$  für das klassische Modell exakt [113]

$$\xi \propto T^{-1/3}, \quad \chi_0 \propto T^{-4/3}.$$

Diese Resultate werden durch Monte-Carlo-Simulationen bestätigt [114]. Wenn wie in der ferromagnetischen Phase das Tieftemperaturverhalten universell ist, gilt diese Beziehung für beliebige  $S$ . Tatsächlich findet man mit der modifizierten Spinwellentheorie [114]

$$\chi_0 = \frac{1}{T} \left[ \left( -\frac{S^8 J_1}{4T} \right)^{1/3} - \frac{7 \zeta\left(\frac{1}{4}\right) S^{4/3}}{6 \sqrt{2} \Gamma\left(\frac{3}{4}\right)} \left( -\frac{S J_1}{4T} \right)^{1/12} + \frac{S}{3} + \dots \right] \quad (4.40)$$

eine identische Temperaturabhängigkeit. Die numerische Überprüfung dieser Entwicklung mit der TMRG für das  $S = 1/2$ -Modell liefert jedoch einen etwas kleineren kritischen Exponenten  $\approx -1.2$  [114], wobei argumentiert wird, dass die zur Anpassung verwendeten Datenpunkte bei zu großen Temperaturen liegen könnten.

Die Suszeptibilität nahe des kritischen Punktes  $J_2/|J_1| \gtrsim 0.25$  des klassischen Modells wird bei  $T = 0$  endlich [113].

Fazit:

Festgehalten werden kann, dass die Suszeptibilität mit wachsendem Verhältnis  $J_2/|J_1|$  bei fester Spinquantenzahl  $S$  im Temperaturverlauf schneller, mit wachsendem  $S$  und festem  $J_2/|J_1|$  langsamer fällt. Das kritische Verhalten beim Phasenübergang  $T \rightarrow 0$  konnte bestimmt werden zu

$$\frac{\chi_0 T^2}{S^4} = -\frac{2}{3} (J_1 + 4J_2) + 1.109 S^{-3/2} \sqrt{-(J_1 + 4J_2)} \sqrt{T}.$$

#### 4.3.4 Korrelationslänge

Die Ergebnisse für die Korrelationslänge nach Gleichung (4.6) sind in Abbildung 4.15 dargestellt. Dass diese Größe über den gesamten Temperaturbereich bestimmt werden kann, ist eine Stärke

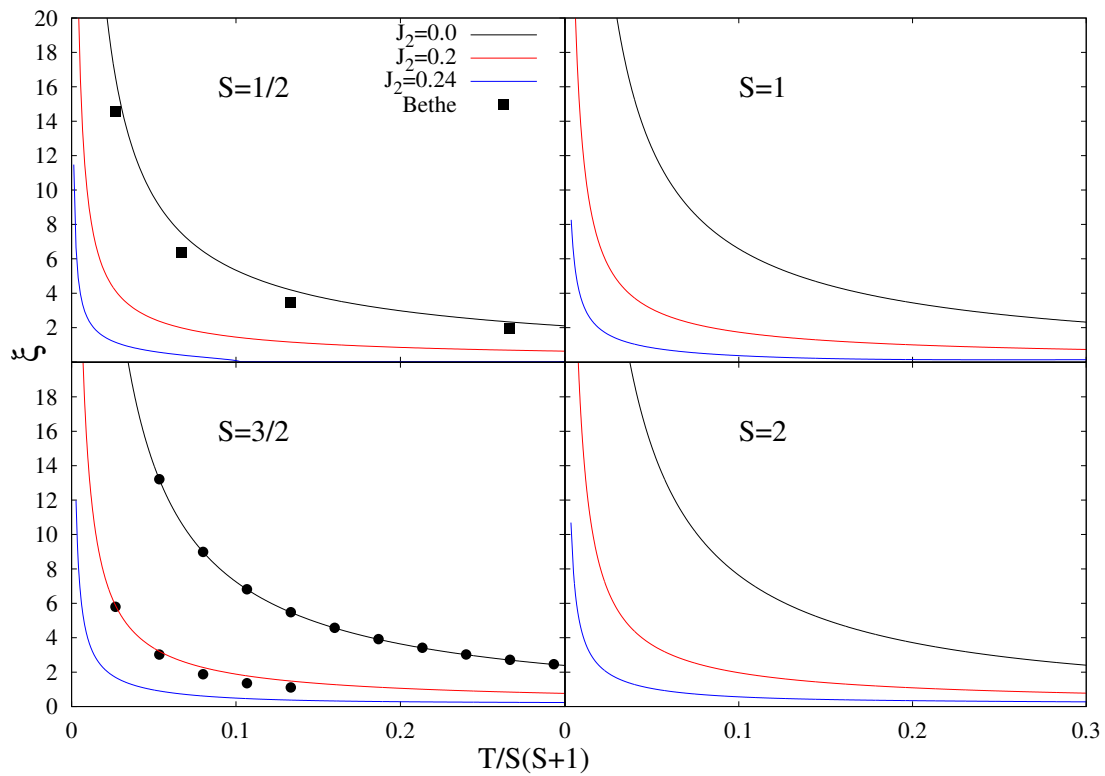


Abbildung 4.15: Korrelationslänge der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  im thermodynamischen Limes für  $J_2 = 0$  (schwarz), 0.2 (rot) und 0.24 (blau) sowie die Resultate des Bethe-Ansatzes für  $J_2 = 0$  und  $S = 1/2$  [112]. Weiterhin gezeigt sind für  $S = 3/2$  mit  $J_2 = 0$  und 0.2 die Ergebnisse der Korrelationslänge definiert über den exponentiellen Abfall, s. Gleichung (4.41).

der Greenfunktionsmethode. Es gibt wenig weitere Methoden mit denen dies möglich ist. So ist als Vergleichsmöglichkeit nur das Resultat des Bethe-Ansatzes [112] gezeigt, welcher auf  $J_2 = 0$  und  $S = 1/2$  beschränkt ist.

Es zeigt sich, dass mit wachsendem  $J_2$  übereinstimmend für alle gezeigten Spinquantenzahlen  $S$  die Korrelationslänge schneller abfällt. Der Vergleich mit dem Bethe-Resultat liefert eine qualitativ gute Übereinstimmung zwischen beiden Methoden. Bei mittleren Temperaturen  $T \approx 0.05 \dots 0.2$  sind leichte Unterschiede zu erkennen, welche bei hohen und niedrigen Temperaturen verschwinden.

In Abbildung 4.16 werden die Korrelationslängen bei festem  $J_2$  für verschiedene Spinquantenzahlen miteinander verglichen. Interessanterweise zeigt sich hier ein unsystematisches Verhalten bei wachsendem  $S$ . Bis zu  $S \approx 5$  fällt sie langsamer ab, für  $S = 10$  und  $S = 50$  dann wieder schneller. Ob dieses Verhalten real ist oder ein Artefakt der Methode, kann aufgrund fehlender Vergleichsmöglichkeiten nicht ermittelt werden.

Eine weitere Methode, die Korrelationslänge zu ermitteln, besteht aus der Analyse des exponen-

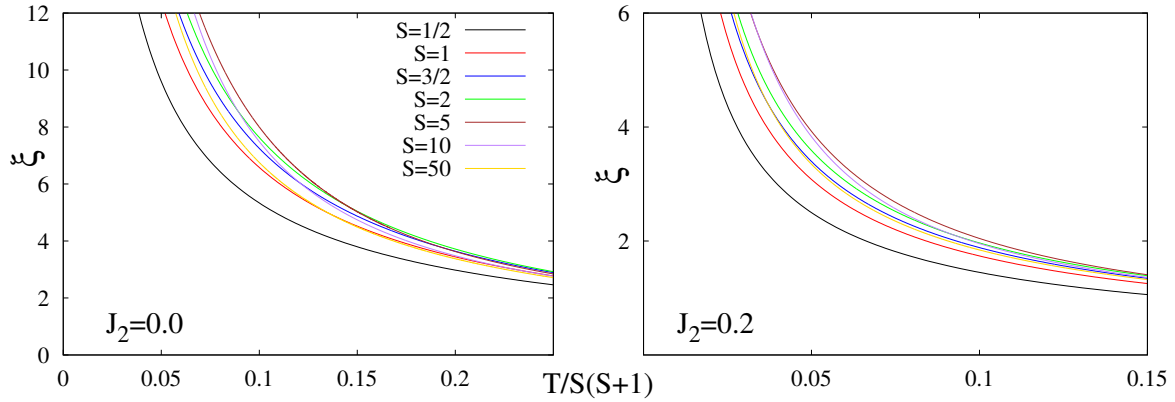


Abbildung 4.16: Korrelationslänge der frustrierten ferromagnetischen Kette mit verschiedenen Spinquantenzahlen  $S$  für  $J_2 = 0$  und  $J_2 = 0.2$ .

tiellen Abfalls der Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_j \rangle$  über dem Abstand  $i$ . Die Greenfunktionsmethode für den reinen Ferromagneten liefert für die langreichweitigen Korrelationsfunktionen bei tiefen Temperaturen eine Ornstein-Zernike-artige Abhängigkeit [43] der Form

$$\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle = \xi \left( -\frac{T}{J_1} \right) e^{-\frac{|j-i|}{\xi}} \quad (4.41)$$

beziehungsweise die modifizierte Spinwellentheorie [112]

$$\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle = \xi^2 \left( -\frac{T}{J_1 S} \right)^2 e^{-\frac{|j-i|}{\xi}} .$$

Exemplarisch dargestellt sind in Abbildung 4.17 bei festen Temperaturen einige Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_n \rangle > 10^{-6}$ , um Verfälschungen durch numerische Ungenauigkeiten zu vermeiden. Ebenfalls gezeigt sind die Ergebnisse von linearen Fits dieser Daten gemäß

$$\ln(\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_n \rangle) = a - \frac{n}{\xi} .$$

Die Resultate für die Korrelationslänge nach diesem Vorgehen sind in Abbildung 4.15 eingefügt. Im unfrustrierten Fall zeigt sich, dass die Korrelationsfunktionen im gesamten untersuchten Temperaturbereich  $T \leq 2$  einen perfekten exponentiellen Abfall über  $n$  beschreiben, die Ergebnisse stimmen exzellent mit denen nach Gleichung (4.6) bestimmten überein. Mit wachsendem  $J_2$  fallen, wie bereits diskutiert, die Korrelationen schneller ab und werden zum Teil negativ, vgl. Abbildung 4.5. Bei  $J_2 = 0.2$  wird für die niedrigen Temperaturen  $T = 0.1$  und  $0.2$  die exzellente Übereinstimmung mit dem exponentiellen Verlauf gefunden. Bei  $T = 0.3$  ist für  $n < 8$  bereits eine Abweichung zu sehen, bei  $T = 0.4$  und  $T = 0.5$  ist in Abbildung 4.17 kein lineares Verhalten mehr sichtbar. Die eingezeichneten Linien sind grobe Abschätzungen, was sich auch in der Abweichung zwischen der Definition über den exponentiellen Abfall und der nach Gleichung (4.6), zu sehen in Abbildung 4.15, äußert. Diese Abweichung vom Ornstein-Zernike-Verhalten



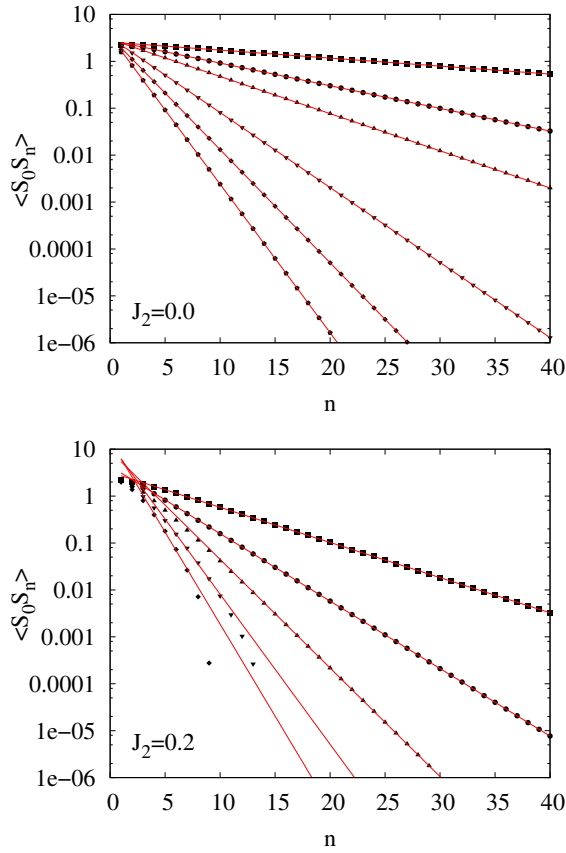


Abbildung 4.17:  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_n \rangle > 10^{-6}$  für  $S = 3/2$  in Abhängigkeit für  $n$  für  $J_2 = 0$  bei  $T = 0.1, 0.3, 0.5, 1.0, 1.5$  und  $2.0$  von oben nach unten und  $J_2 = 0.2$  bei  $T = 0.1, 0.2, 0.3, 0.4$  und  $0.5$  von oben nach unten.

könnte das Versagen der Standarddefinition der Korrelationslänge (3.72) erklären.

Wie die Suszeptibilität zeigt die Korrelationslänge ein kritisches Verhalten bei  $T \rightarrow 0$ , eine Divergenz, welche den Phasenübergang zwischen ungeordneter Phase bei  $T \neq 0$  und dem ferromagnetischen Grundzustand signalisiert. Im Folgenden soll der Einfluss des Frustrationsparameters  $J_2$  auf das Tieftemperaturverhalten untersucht werden. Für den reinen Ferromagneten liefert die modifizierte Spinwellentheorie [112]

$$\xi \simeq -\frac{J_1 S^2}{T} \left( 1 - \frac{\zeta(1/2)}{S\sqrt{2\pi}} \left( -\frac{T}{2J_1 S} \right)^{1/2} + O\left(T^{3/2}\right) \right). \quad (4.42)$$

für ein ferromagnetisches  $J_1 < 0$ . Diese Ergebnisse werden durch numerische Berechnungen aus dem Bethe-Ansatz im Rahmen der angegebenen Genauigkeit für  $S = 1/2$  bestätigt [112], die erste Ordnung wird auch von der Greenfunktionsmethode reproduziert [43].

Zur genaueren Analyse des Tieftemperaturverhaltens der Korrelationslänge wird die Größe

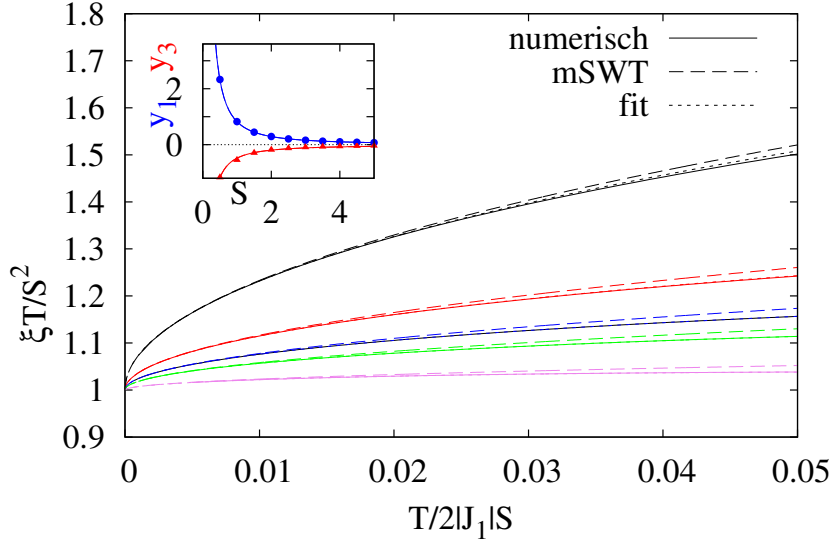


Abbildung 4.18: Vergleich der numerischen Ergebnisse, des Resultats der modifizierten Spinwellentheorie [112] (mit einem doppelten Wert  $\propto T$ , vgl. Text) und der Fits an die Gleichung (4.44) für  $S = 1/2$  (schwarz),  $S = 1$  (rot),  $S = 3/2$  (blau),  $S = 2$  (grün) und  $S = 5$  (violett) bei  $J_2 = 0$ . Der Inset zeigt die Ergebnisse der Fits der Koeffizienten  $y_1$  (blau) und  $y_3$  (rot), zur Analyse der funktionalen Abhängigkeit von  $S$  wurden die Daten an Funktionen  $aS^\alpha$  angepasst. Die Resultate werden im Text erläutert.

$\xi T/S^2$  an die Funktion

$$\frac{\xi T}{S^2} = y_0 + y_1 T^{1/2} + y_2 T + y_3 T^{3/2} \quad (4.43)$$

gefittet. Dies ist eine Ordnung in  $T$  mehr als die in [64, 104] verwendete. So soll insbesondere der Term  $\propto T$  genauer untersucht werden, der in der modifizierten Spinwellentheorie nicht existiert. Das Vorgehen bei der Extrapolation ist analog zu dem bei der Suszeptibilität verwendeten. Benutzt werden Datenpunkte von  $T_0$  bis  $T_0 + T_{\text{cut}}$  mit  $T_{\text{cut}} = 0.005$ .  $T_0$  ist dabei der tiefste erreichbare Datenpunkt der numerischen Auswertung bei einer Schrittweite  $\Delta T = 0.001$ . Somit werden sechs Datenpunkte benutzt.

Der Fit liefert mit einer Genauigkeit von vier Nachkommastellen für  $S = 1/2$  und  $S = 5$  und von mindestens fünf Nachkommastellen für die anderen  $S$  den Wert  $y_0 = 1$  in Übereinstimmung mit Gleichung (4.42). Für  $y_2$  ergibt sich außer für  $S = 1/2$  mit  $10^{-1}$  und  $S = 1$  mit  $10^{-3}$  Größenordnungen von  $10^{-4}$ , welches sich als Hinweis darauf deuten lässt, dass auch im Rahmen der RGM kein Term  $\propto T$  bei  $\xi T/S^2$  auftaucht. Die Abweichung bei kleinen Spinquantenzahlen  $S$  könnte mit der Vernachlässigung von Fluktuationen von multipolaren Anregungen durch das Entkopplungsschema erklärt werden, welche insbesondere bei kleinen Quantenzahlen relevant werden.

Für die Analyse von  $y_1$  und  $y_3$  wird zur Reduzierung des Fehlers  $y_0 = 1$  und  $y_2 = 0$  gesetzt, die

verwendete Funktion ist demnach

$$\frac{\xi T}{S^2} = 1 + y_1 T^{1/2} + y_3 T^{3/2}. \quad (4.44)$$

Die Ergebnisse der Fits im Vergleich mit den numerischen Daten und der modifizierten Spinwellentheorie sind in Abbildung 4.18 dargestellt. Der Fit beschreibt die numerischen Daten im dargestellten Temperaturbereich sehr gut. Der Vergleich mit dem Ergebnis der modifizierten Spinwellentheorie (4.42) zeigt, dass die RGM einen doppelt so großen Faktor  $y_1$  liefert. Die Resultate für  $y_1$  und  $y_3$  sind im Inset von Abbildung 4.18 gezeigt. Zur Analyse der funktionalen Abhängigkeit der Koeffizienten der Gleichungen (4.44) werden die Daten an die Funktionen

$$y_1 = a_1 S^{\alpha_1}, \quad \text{und} \quad y_3 = a_3 S^{\alpha_3}$$

angepasst. Eine weitere Anpassung von  $y_1$  erfolgt im Sinne von Gleichung (4.42) an die Funktion

$$y_1^{(2)} = b_1 S^{-3/2}.$$

Die Resultate lauten

	$a_1$	$\alpha_1$		$a_3$	$\alpha_3$
$y_1$	0.824033	-1.50032	$y_3$	-0.481088	-1.30649
$y_1^{(2)}$	0.824174	-1.5 (fixiert)			
[112]	0.411958	-1.5			

Im Rahmen der numerischen Genauigkeit wird auch mit einem offenen Exponenten  $\alpha_1$  die funktionale Abhängigkeit von  $y_1$  in der Form  $S^{-3/2}$  reproduziert, wie es von der modifizierten Spinwellentheorie vorhergesagt wird. Die Ergebnisse der entsprechenden Vorfaktoren  $a_1$  und  $b_1$  zeigen, dass in [112] ein Faktor vorhergesagt wird, der fast exakt um den Faktor zwei kleiner ist als im Rahmen der Greenfunktionsmethode, wie auch schon in Abbildung 4.18 deutlich wird.

Die Greenfunktionsmethode reproduziert demnach im Rahmen der numerischen Genauigkeit die ersten zwei Ordnungen des Tieftemperaturverhaltens der ferromagnetischen Kette im Rahmen der modifizierten Spinwellentheorie und damit des Bethe-Ansatzes für  $S = 1/2$  bis auf den Faktor zwei in der Ordnung  $\propto T^{1/2}$ . Die Methode ist also geeignet, den Einfluss von  $J_2$  auf diese Faktoren zu untersuchen. Hierzu wird das Vorgehen bei  $J_2 = 0$  auf das System mit endlichem  $J_2 < 0.25$  angewendet, indem die Funktion bis einschließlich der Ordnung  $\propto T^{3/2}$  an die numerischen Daten bis  $S \leq 5$  angepasst wird. Die resultierenden Kurven sind exemplarisch für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  mit  $S = 1, 3/2, 2$  und  $5$  in Abbildung 4.19 dargestellt.

Die Ergebnisse für  $y_0$  stimmen bei festem  $J_2$  für alle betrachteten Werte von  $S$  auf mindestens drei Nachkommastellen überein, bei kleineren Werten von  $J_2$  ist die Abweichung nur von der Größenordnung  $10^{-5}$ . Ausnahmen bilden hier, wie bereits im vorherigen Kapitel diskutiert, die Werte für  $J_2 = 0.22$  mit  $S = 1/2$  und für  $J_2 = 0.24$  mit  $S = 1/2$  und  $S = 1$ . Zur Verringerung der numerischen Schwankung werden bei festem  $J_2$  die Mittelwerte von  $y_0$  bei verschiedenen  $S$  verwendet. Diese sind ebenfalls in Abbildung 4.19 gezeigt und lassen sich exzellent mit der Gleichung

$$y_0 = 1 - 4J_2$$

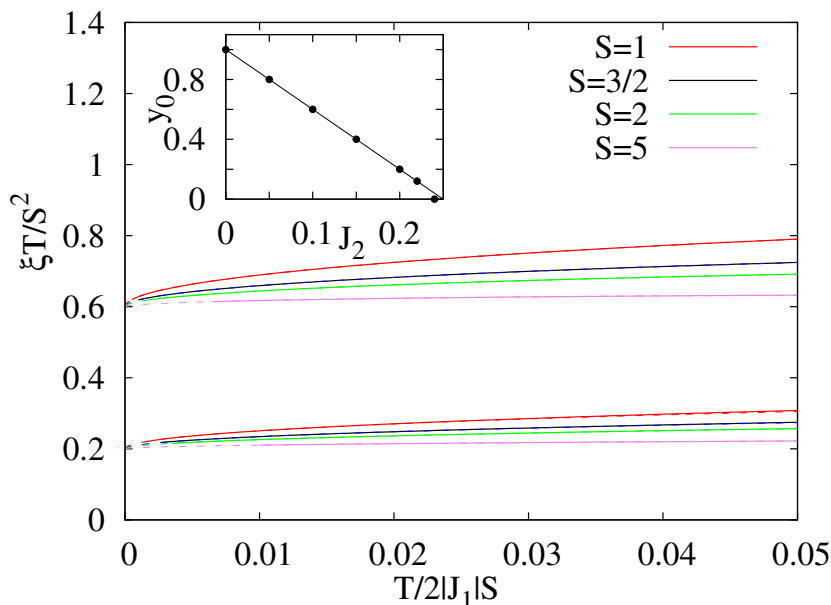


Abbildung 4.19: Numerische Daten der Greenfunktionsmethode für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  von oben nach unten (durchgezogene Linie) mit den an Gleichung (4.43) angepassten Kurven (gestrichelt). Der Inset zeigt den Mittelwert der Werte von  $y_0$  für  $S \leq 5$  mit der Kurve  $f(J_2) = 1 - 4J_2$ .

beschreiben. Die leichte Abweichung des Datenpunktes von  $J_2 = 0.24$  von dieser Kurve trat schon bei der ersten Ordnung der Suszeptibilität auf. Ob diese Abweichung real ist oder ein Artefakt des verwendeten Approximationsschemas kann nicht geklärt werden.

Zur Analyse der Ergebnisse von  $y_1$  wird zunächst bei festem  $J_2$  deren funktionale Abhängigkeit von  $S$  untersucht. Hierfür werden die Daten an eine Funktion

$$y_1(S) = bS^\beta \quad (4.45)$$

angepasst. Es zeigt sich, dass für  $J_2 \leq 0.22$  ein Exponent zwischen  $\beta = -1.499$  und  $\beta = -1.558$  folgt. Damit liegt die Vermutung nahe, dass sich der Exponent für  $J_2 \neq 0$  nicht ändert und den Wert  $\beta = -1.5$  beibehält. Bei  $J_2 = 0.24$  weicht das Ergebnis mit  $\beta = 0.985$  jedoch deutlich ab. Daher wird dieser Datensatz wie in [64, 104] weggelassen.

Exemplarisch sind die Daten für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  auf der rechten Seite von Abbildung 4.20 zusammen mit der Extrapolation der Daten an Gleichung (4.45) mit offenem und mit festem Exponenten  $-1.5$  dargestellt. Ein offensichtlicher Unterschied existiert nicht.

Auf der linken Seite von Abbildung 4.20 sind die Ergebnisse des Fits  $b = y_1 S^{3/2}$  abgebildet. Die Datenpunkte lassen sich exzellent mit der Gleichung

$$y_1 S^{3/2} = B\sqrt{1 - 4J_2} \quad \text{mit } B = 0.824$$

beschreiben.

Ob die Terme  $\propto T$  auch bei einem endlichen  $J_2$  verschwinden, kann aus den vorliegenden Daten

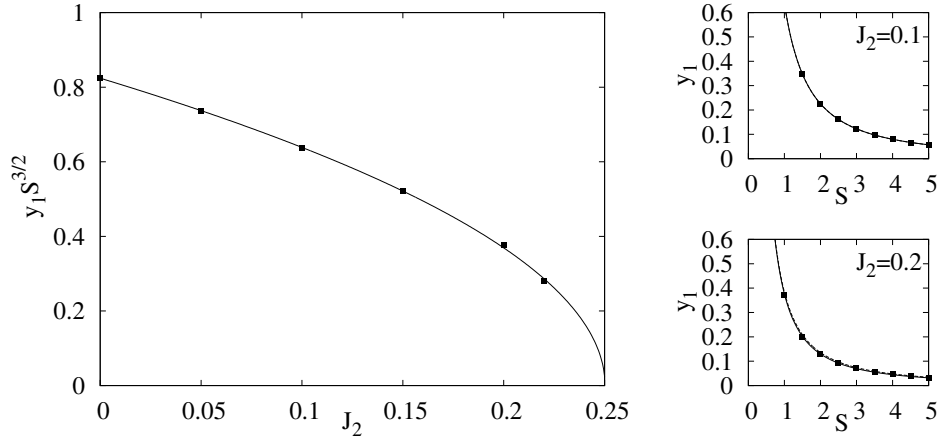


Abbildung 4.20: rechts:  $y_1$  für  $J_2 = 0.1$  und  $0.2$  in Abhängigkeit von  $S$  zusammen mit der Extrapolation an Gleichung (4.45). links: Ergebnisse  $y_1 S^{3/2}$  zusammen mit der Kurve  $y_1 S^{3/2} = 0.824\sqrt{1 - 4J_2}$ .

nicht eindeutig ermittelt werden. Die resultierenden Werte sind zwar sehr klein, bei der überwiegenden Anzahl der  $y_2$  liegt Null innerhalb des Fehlerbereichs. Jedoch ist der Fehler zu groß um konkrete Aussagen zu tätigen. Dies gilt ebenfalls für die  $y_3$ , weshalb diese beiden Parameter nicht weiter berücksichtigt werden sollen.

Die ersten zwei Ordnungen des Tieftemperaturverhaltens der Korrelationslänge im ferromagnetischen Regime kann also beschrieben werden durch [104]

$$\frac{\xi T}{S^2} = -(J_1 - 4J_2) + 0.824S^{-3/2} \sqrt{-(J_1 - 4J_2)} \sqrt{T}. \quad (4.46)$$

Auch hier deutet sich analog zur Suszeptibilität ein Wechsel des kritischen Verhaltens beim Übergang in die Spiralphase,  $J_2/|J_1| \geq 0.25$ , an. Untersuchungen hierzu gibt es nach Wissen des Autors jedoch nicht.

Fazit:

In diesem Abschnitt wurde erläutert, dass die Korrelationslänge bei wachsendem  $J_2/|J_1|$  und festem  $S$  im Temperaturverlauf schneller abfällt. Das kritische Verhalten bei  $T \rightarrow 0$  konnte bestimmt werden zu

$$\frac{\xi T}{S^2} = -(J_1 - 4J_2) + 0.824S^{-3/2} \sqrt{-(J_1 - 4J_2)} \sqrt{T}.$$

Ein exponentieller Abfall der Korrelationsfunktionen über dem Abstand konnte bei Werten von  $J_2/|J_1|$  nahe des Phasenüberganges nicht gefunden werden, da die  $\langle \mathbf{S}_n \mathbf{S}_0 \rangle$  bei Temperaturen  $T \geq 0.3$  schon bei kleinen Abständen  $n \gtrsim 10$  zu klein werden, um das Verhalten analysieren zu können.

## 4.4 Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand im äußeren Feld

In diesem Kapitel soll der Einfluss eines äußeren Magnetfeldes auf die im vorherigen Abschnitt betrachteten physikalischen Eigenschaften des eindimensionalen  $J_1$ - $J_2$ -Modells untersucht werden. Insbesondere sollen die in [29, 30] für das unfrustrierte System gefundene charakteristische Gesetze für den Einfluss der Feldstärke auf die Maxima von spezifischer Wärme und Suszeptibilität auf das frustrierte System erweitert werden. Die in den erwähnten Arbeiten erzielten Resultate werden in den folgenden Unterkapiteln dargelegt.

Betrachtet werden im Folgenden Feldstärken  $h \leq 0.1$ . Wegen

$$H(kOe) = \frac{J(meV)}{0.0116} h$$

entspricht das Feldstärken von  $H \lesssim 86kOe$  im CGI-System beziehungsweise einer magnetischen Flussdichte  $B \lesssim 8.6T$  im SI-System, was dem Feldstärkenbereich üblicher Experimente entspricht. Angenommen wurde hier eine Größenordnung der Austauschwechselwirkung im Bereich  $J \approx 10meV$ , wie sie beispielsweise bei den Materialien  $LiCu_2O_2$  und  $NaCu_2O_2$  vorliegt [102, 115, 116].

Zur Auswertung der Suszeptibilitätsgleichung (4.28) wird die numerische Ableitung der Magnetisierung benötigt. Hierbei wird  $dh$  zu  $10^{-6}$  gewählt. Die numerische Lösung des Gleichungssystems erweist sich als kompliziert, es können bei einzelnen festen Temperaturen starke Schwankungen in den physikalischen Größen auftreten. Diese Spitzen werden vernachlässigt. Außerdem weisen die Daten für  $J_2 > 0.2$  keine plausiblen Verläufe auf, weshalb nur die Resultate  $J_2 \leq 0.2$  berücksichtigt werden. Ursache hierfür könnte das verwendete Näherungsschema sein.

### 4.4.1 Korrelationsfunktionen

Zunächst sollen die transversalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_0^x S_n^x \rangle = \langle S_0^y S_n^y \rangle$  und die longitudinalen Korrelationsfunktionen  $\langle S_0^z S_n^z \rangle$  betrachtet werden. Die Daten der Greenfunktionsmethode (GFM) und der exakten Diagonalisierung für die Systemgröße  $N = 20$  stimmen gut überein, insbesondere für tiefe ( $T \lesssim 0.1$ ) und für hohe ( $T \gtrsim 0.5$ ) Temperaturen, wie in Abbildung 4.21 zu sehen ist. Beide Methoden liefern das korrekte Grundzustandsresultat.

Der feldinduzierte Bruch der Rotationssymmetrie sorgt für einen unterschiedlichen Verlauf der Korrelationsfunktionen in Feldrichtung  $z$  und in der  $x$ - $y$ -Ebene. Hohe thermische Energien  $T \gg h$  zerstören diesen Unterschied, das System wird rotationsinvariant und der Unterschied zwischen transversalen und longitudinalen Korrelationsfunktionen verschwindet.

Die transversalen Korrelationsfunktionen weisen ein Maximum auf, dessen Höhe und Position von dem Abstand der Spins  $n$ , der Größe des Parameters  $J_2$  und der Feldstärke  $h$  abhängt.

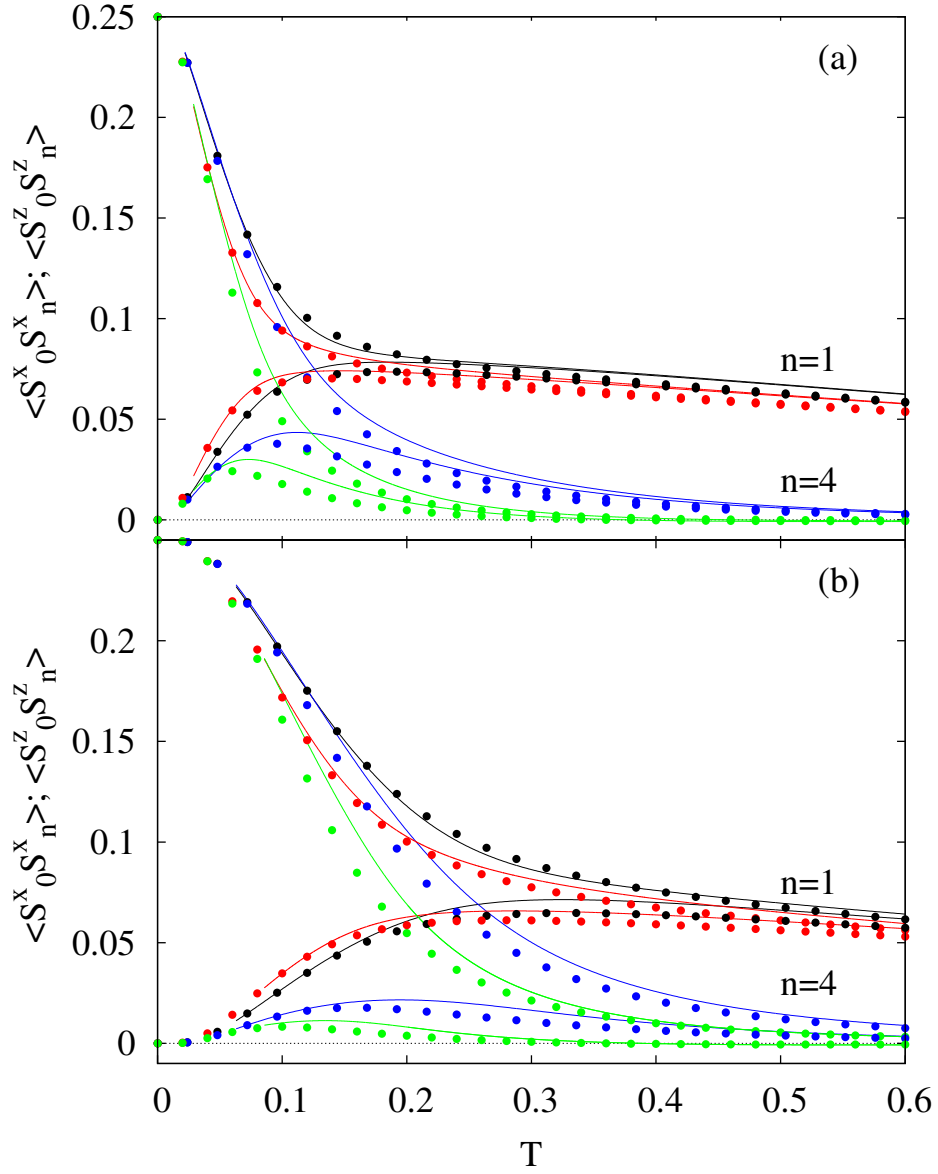


Abbildung 4.21: Nächste- und viertnächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen  $\langle S_0^z S_n^z \rangle$  und  $\langle S_0^x S_n^x \rangle$  für  $h = 0.03$  (a) und  $h = 0.1$  (b) aus der Greenfunktionsmethode (Linien) und exakter Diagonalisierung (Symbole,  $N = 20$ ). Gezeigt sind die Daten für  $J_2 = 0$  (schwarz, blau) und  $J_2 = 0.15$  (rot, grün).

Bei fester Feldstärke fallen die Korrelationsfunktionen analog zum feldfreien Fall mit wachsenden Werten von  $J_2$  im Temperaturverlauf schneller ab, wobei der Anstieg der transversalen Korrelationsfunktionen bei kleinen Abständen zum Maximum erhöht wird. Das Maximum selbst verschiebt sich bei festem Abstand  $n$  zu niedrigeren Temperaturen und nimmt ab. Bei fester Frustration hat ein wachsendes Feld nur bei tiefen Temperaturen einen Einfluss auf die Korre-

lationsfunktionen. In Feldrichtung fallen sie langsamer ab, in der  $x$ - $y$ -Ebene wird das Maximum zu höheren Temperaturen verschoben und etwas kleiner. Auch wird der Anstieg zum Maximum beziehungsweise der Abfall bei hohen Temperaturen langsamer [105].

Es ist anzumerken, dass der Charakter der dominanten Korrelationen im Temperaturverlauf möglicherweise wechselt. Beispielsweise können für bestimmte Parameterbereiche bei eigentlich dominierenden longitudinalen Korrelationen  $\langle S_r^z S_{r+n}^z \rangle$  Temperaturbereiche auftauchen, in denen der chirale Charakter der Spin-Korrelationen  $\langle (\mathbf{S}_0 \times \mathbf{S}_1)^z (\mathbf{S}_r \times \mathbf{S}_{r+1})^z \rangle$  der bestimmende ist [75].

#### 4.4.2 Spezifische Wärmekapazität

Bekannt ist, dass im feldfreien Fall ein breites Maximum bei  $T \approx 0.45$  ( $T \approx 0.35$ ), berechnet mit der GFM (dem Bethe-Ansatz), auftritt sowie  $\lim_{T \rightarrow 0} C_V(T) = \lim_{T \rightarrow \infty} C_V(T) = 0$  gilt [29, 30, 64, 71]. Weiterhin wurde bereits gezeigt, dass bei  $J_2 = 0$  und einem endlichen Feld  $h < h^*$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum auftritt, welches bei wachsendem Feld größer und zu höheren Temperaturen verschoben und bei  $h > h^*$  zum einzigen Maximum wird. Mit der GFM (dem Bethe-Ansatz) kann  $h^* \approx 0.07$  ( $h^* \approx 0.008$ ) bestimmt werden. Dieses zusätzliche feldinduzierte Maximum tritt in zweidimensionalen Systemen nicht auf [29, 30]. Andererseits wurde in Abschnitt 4.3.2 bereits für  $h = 0$  diskutiert, dass die spezifische Wärme im Rahmen der GFM (exakten Diagonalisierung, TMRG) für  $J_2 \geq 0.16$  ( $J_2 \geq 0.125$ ) ebenfalls eine, diesmal frustrationsinduzierte Doppelmaximumstruktur aufweist [64, 71, 104]. Für das betrachtete System ist somit eine Kombination beider Effekte zu erwarten.

Die Resultate für  $J_2 = 0.05$  und  $J_2 = 0.15$  bei verschiedenen Feldstärken  $h$  sind in Abbildung 4.22 dargestellt. Wie für  $J_2 = 0$  zeigen die Daten bei einem kleinen, endlichen  $J_2$  bei kleinen Feldern ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum sowohl mit der GFM als auch mit der exakten Diagonalisierung. Wie in [29, 30] für den unfrustrierten Fall wächst auch bei den betrachteten, endlichen Werten von  $J_2$  dieses neue Maximum mit wachsender Feldstärke und wird zu höheren Temperaturen verschoben, bis es zum einzigen Maximum wird, wenn die Position den Temperaturbereich des Maximums des feldfreien Systems bei  $T \approx 0.45$  erreicht.

Ebenfalls in Abbildung 4.22 ist zu sehen, dass die Feldstärke  $h^*$ , bei der die feldinduzierte Doppelmaximumstruktur verschwindet, mit wachsendem Frustrationsparameter wächst. So ist für  $J_2 = 0.15$  diese Struktur in den Greenfunktionsdaten noch bei  $h = 0.08$  und in den Daten der exakten Diagonalisierung noch bei  $h = 0.03$  zu sehen.

Auch wenn zwischen den Ergebnissen der GFM und der exakten Diagonalisierung quantitative Unterschiede existieren, weisen sie für beide Methoden das beschriebene Verhalten auf.

In [29, 30] wurde diskutiert, dass sich die Feldabhängigkeit der Höhe  $C_{V,max}$  und der Position  $T(C_{V,max})$  für  $J_2 = 0$  durch Potenzgesetze der Form

$$C_{V,max} = dh^\delta, \quad T(C_{V,max}) = rh^\rho \quad (4.47)$$



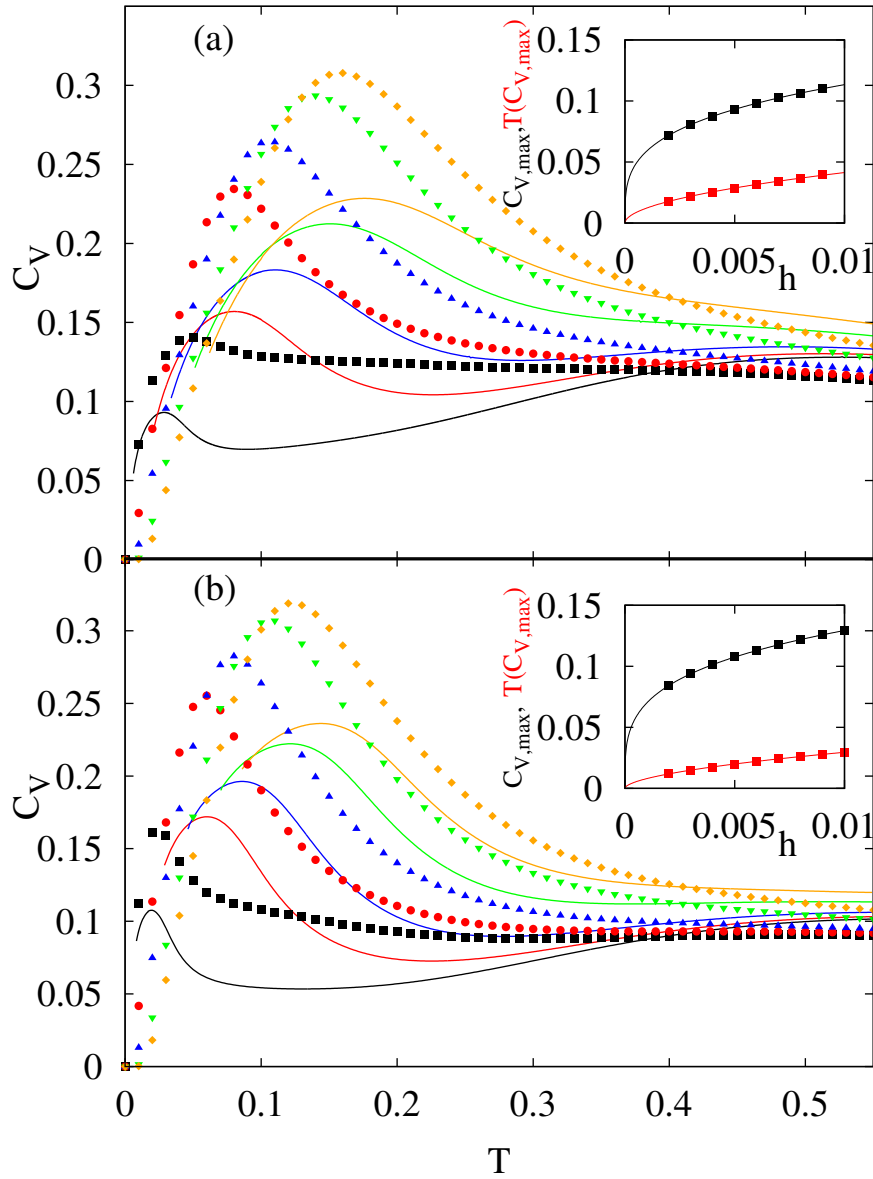


Abbildung 4.22: Spezifische Wärme, berechnet mit der Greenfunktionsmethode (Linien) und der exakten Diagonalisierung mit  $N = 20$  (Symbole) für  $J_2 = 0.05$  (a) und  $J_2 = 0.15$  (b). Die betrachteten Feldstärken sind  $h = 0.005$  (schwarz),  $h = 0.03$  (rot),  $h = 0.05$  (blau),  $h = 0.08$  (grün) und  $h = 0.1$  (orange). Der Inset zeigt die Feldabhängigkeit der Höhe  $C_{V,max}$  und der Position  $T(C_{V,max})$  des Tieftemperaturmaximums bei entsprechender Werten von  $J_2$  sowie den Fit der Daten an Gleichung (4.47).

beschreiben lässt. Verwendet wurden dort die Daten  $0.001 \leq h \leq 0.01$  in Schritten von 0.001, an welche die Parameter der angegebenen Gesetze angepasst wurden<sup>7</sup>. Die erzielten Resultate

<sup>7</sup>Die angegebenen Potenzgesetze sind nur für kleine Felder gültig. Bei  $h > 0.4$  wird die Position des (einzigen) Maximums beschrieben durch das lineare Gesetz  $T(C_{V,max}) = a + bh$  [29].

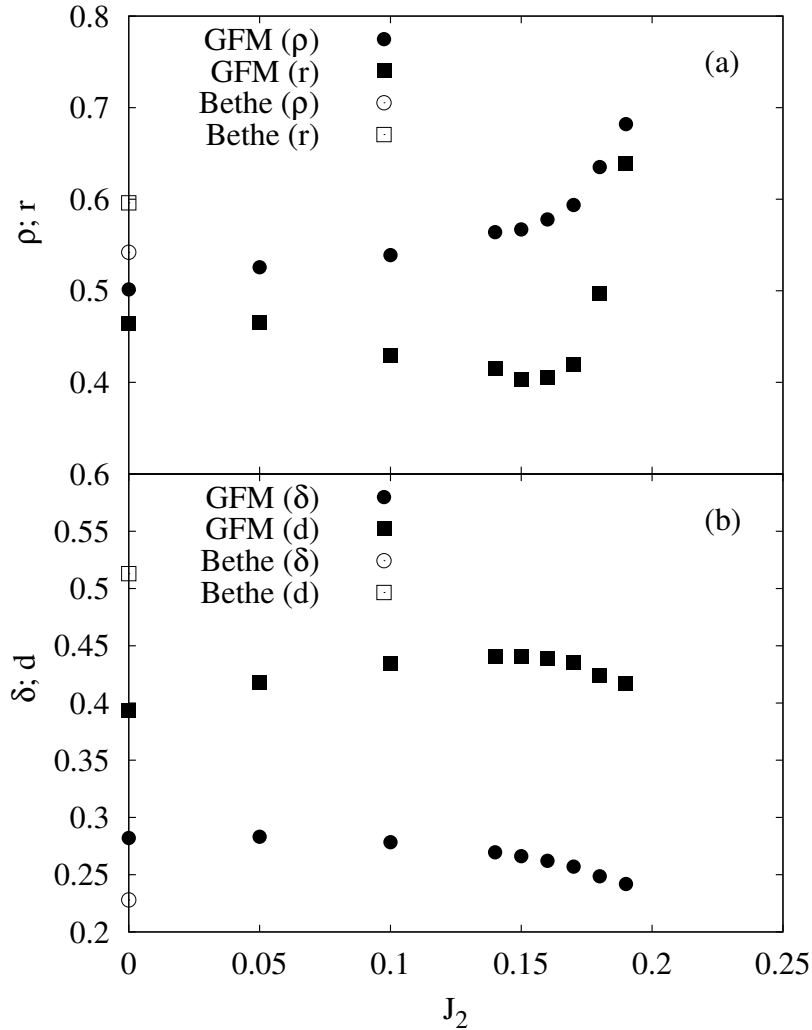


Abbildung 4.23: Abhängigkeit der Parameter  $r$  und  $\rho$  des Potenzgesetzes  $T(C_{V,max}) = rh^\rho$  (a) sowie von  $d$  und  $\delta$  des Potenzgesetzes  $C_{V,max} = dh^\delta$  (b) von  $J_2$ , berechnet mit der Greenfunktionsmethode. Zum Vergleich sind auch die Ergebnisse des Bethe-Ansatzes Tabelle 4.2 gezeigt.

aus GFM und Bethe-Ansatz sind in Tabelle 4.2 zusammengefasst. Diese Gesetze behalten ihre Gültigkeit auch für endliche  $J_2$ . Wie bereits angemerkt, werden im Rahmen dieser Betrachtungen nur Werte  $J_2 \leq 0,2$  verwendet. Das Vorgehen ist analog zu dem in [30] verwendeten. Exemplarisch sind die Ergebnisse für  $J_2 = 0,05$  und  $J_2 = 0,15$  in den Insets von Abbildung 4.22 gezeigt.

Die Untersuchung der Abhängigkeit der Parameter  $d$ ,  $\delta$ ,  $r$  und  $\rho$  aus Gleichung (4.47) erfolgt in Abbildung 4.23. Es zeigt sich für  $J_2 \leq 0,15$  nur eine schwache Abhängigkeit der Parameter von  $J_2$ , für größere Werte wachsen  $r$  und  $\rho$  deutlich. Bei dieser Untersuchung werden die Resultate der exakten Diagonalisierung nicht betrachtet, da sie zum Teil sehr stark von der Systemgröße

Methode	$d$	$\delta$	$r$	$\rho$	Quelle
Bethe-Ansatz	0.513	0.228	0.596	0.542	[30]
Greenfunktionsmethode	0.394	0.282	0.462	0.501	[30]

Tabelle 4.2: Literaturergebnisse der Feldabhängigkeit von Position und Höhe des Tieftemperaturmaximums der spezifischen Wärme der unfrustrierten ferromagnetischen Kette nach Gleichung (4.47).

abhängen [105].

Es ist bekannt, dass die Ergebnisse der GFM im Vergleich zu anderen sehr genauen Methoden wie der Quanten-Monte-Carlo-Methode, der exakten Diagonalisierung, des (exakten) Bethe-Ansatzes oder der TMRG große Abweichungen bei der spezifischen Wärme aufweisen. Andere Größen, insbesondere die Suszeptibilität, werden besser beschrieben. Doch unabhängig davon bestätigen alle angegebenen Methoden, wo anwendbar, qualitativ die Aussagen der GFM zur Existenz der Doppelmaximumstruktur, auch wenn konkrete Zahlenwerte wie beispielsweise  $h^*$  Unterschiede aufweisen. Somit werden die grundlegenden Aussagen gestützt, die konkreten Zahlenwerte wie die  $J_2$ -Abhängigkeit der Parameter aus Gleichung (4.47) sollten kritisch behandelt werden.

Fazit:

Als Fazit kann gezogen werden, dass sich für Feldstärken  $h < h^*$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum entwickelt, welches mit wachsendem Feld größer wird und sich zu höheren Temperaturen verschiebt, bis es bei  $h > h^*$  mit dem breiten Maximum des feldfreien Falles verschmilzt.  $h^*$  wird mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  größer. Weiterhin ergaben sich für  $h \leq 0.01$  und  $J_2/|J_1| \leq 0.2$  die Potenzgesetze

$$C_{V,max} = dh^\delta, \quad T(C_{V,max}) = rh^\rho$$

zur Beschreibung der Feldabhängigkeit von Höhe und Position des Tieftemperaturmaximums, wobei die Parameter nur schwach vom Verhältnis  $J_2/|J_1|$  abhängig sind.

### 4.4.3 Magnetisierung

In Abbildung 4.24 ist die Magnetisierung für verschiedene Frustrations- und Feldstärken im Vergleich mit den Resultaten der exakten Diagonalisierung eines Systems aus  $N = 20$  Gitterplätzen dargestellt. Der Verlauf der Kurven stimmt bei beiden Methoden qualitativ überein. Es ist zu beobachten, dass sie bei festem Magnetfeld mit wachsendem  $J_2$  im Temperaturverlauf schneller abfällt. Andererseits erhöht sie sich mit wachsendem Magnetfeld bei fester Frustration.

Das ist damit zu erklären, dass aufgrund des Zeeman-Terms die Energiedifferenz zwischen dem ferromagnetischen Grundzustand und denen mit  $\langle S^z \rangle < 1/2$  mit wachsendem Feld größer wird. Somit wird die thermische Energie, die zur Anregung nötig ist, auch immer größer. Andererseits

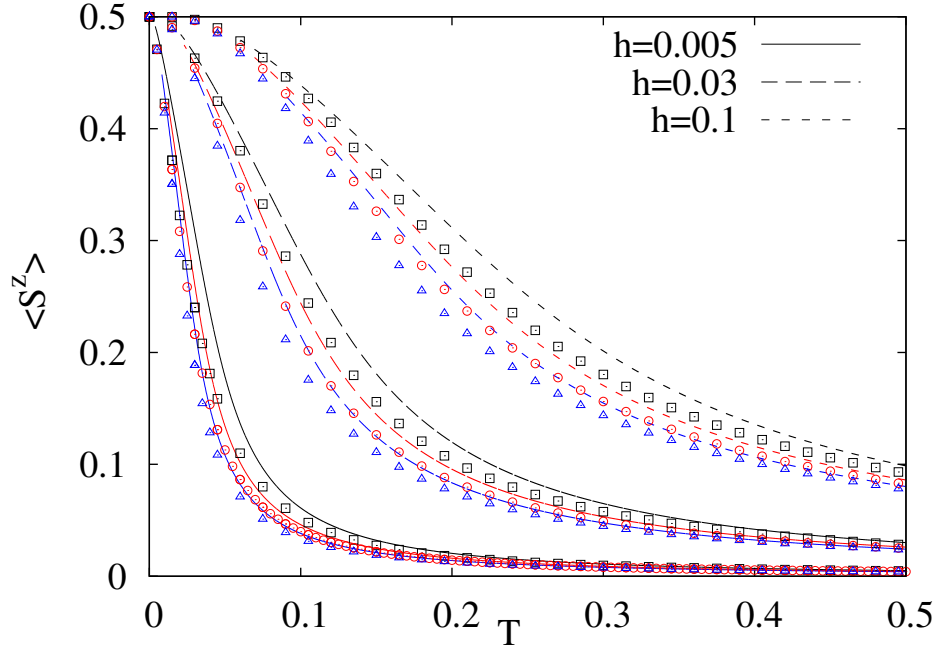


Abbildung 4.24: Magnetisierung der frustrierten linearen Kette mit  $J_2 = 0$  (schwarz) 0.1 (rot) und 0.15 (blau) und  $h = 0.005, 0.03$  und  $0.1$ , berechnet mit der Greenfunktionsmethode (Linien) und exakter Diagonalisierung (Symbole,  $N = 20$ ).

wurde bereits in Abschnitt 4.3.2 konstatiert, dass mit wachsendem  $J_2$  die niedrigen Energieniveaus näher zusammenrücken, was die thermische Energie zur Anregung von Zuständen  $\langle S^z \rangle < 1/2$  reduziert.

Im Zusammenhang mit Experimenten an  $La_{0.91}Mn_{0.95}O_3$  [117] wurde konstatiert, dass sich auch ein isotroper Ferromagnet gemäß der Landau-Theorie verhalten sollte. So sagt sie ein Potenzgesetz der Form  $m(T_{max}^{chi}) = Ah^{1/3}$  unabhängig von der Dimension voraus [118]. Aus dem Bethe-Ansatz folgt jedoch  $m(T_{max}^{chi}) \approx \text{konst.}$  [29], die Landau-Theorie mit ihrem Molekularfeldcharakter ist somit nicht geeignet zur Beschreibung des hier betrachteten Systems [29].

Für kleine Felder kann das Tieftemperaturverhalten der Magnetisierung bei  $J_2 = 0.25$  beim klassischen Modell beschrieben werden durch [76]

$$m \propto \frac{hS^{5/3}}{T^{4/3}}.$$

Fazit:

Gezeigt wurde, dass die Magnetisierung bei festem Magnetfeld mit wachsendem Frustrationsparameter im Temperaturverlauf schneller abfällt, bei wachsendem Magnetfeld mit festem  $J_2/|J_1$  langsamer.

Methode	$a$	$\gamma$	$b$	$\beta$	Quelle
Bethe-Ansatz	0.765	0.576	0.208	-0.952	[29]
Greenfunktionsmethode	1.013	0.596	0.192	-0.925	[30]
Landau-Theorie		2/3		-2/3	[118]

Tabelle 4.3: Literaturergebnisse der Feldabhängigkeit von Position und Höhe des Maximums der Suszeptibilität der unfrustrierten ferromagnetischen Kette nach Gleichung (4.48).

#### 4.4.4 Suszeptibilität

In Abschnitt 4.3.3 wurde erörtert, dass die Nullfeldsuszeptibilität bei  $T \rightarrow 0$  gemäß  $\chi_0 T^2 = (1 - 4J_2)/24$  divergiert, ein Charakteristikum des Überganges bei  $T = 0$  von der geordneten ferromagnetischen zur ungeordneten Phase. Mit einem endlichen Feld  $h \neq 0$  folgt  $\lim_{T \rightarrow 0} \chi_0 = 0$ , da im betrachteten Parameterbereich für  $J_2$  unabhängig vom Feld  $\langle S^z \rangle (T = 0) = 1/2$  gilt. Es tritt in der Suszeptibilität ein Maximum auf, dessen Höhe und Position abhängig von Frustration und Feldstärke sind.

Dargestellt ist  $\chi_0$  für  $J_2 = 0.05$  und  $0.15$  für verschiedene Feldstärken in Abbildung 4.25. Es zeigt sich, dass bei Temperaturen  $T \gtrsim 0.4$  bei festem  $J_2$  die Kurven unabhängig von der Feldstärke werden und zusammenfallen. Das Maximum wird mit wachsendem  $h$  kleiner und verschiebt sich zu höheren Temperaturen. Bei fester Feldstärke und wachsendem  $J_2$  wird es höher und taucht bei niedrigeren Temperaturen auf. Die Daten der exakten Diagonalisierung zeigen nur geringe finite-size-Effekte bei tiefen Temperaturen, wie ein Vergleich der Ergebnisse für  $N = 16$  und  $20$  zeigt. Das Maximum ist hier höher und bei niedrigeren Temperaturen als bei der GFM.

Für den unfrustrierten Ferromagneten ( $J_2 = 0$ ) wurde gefunden, dass sich die Feldabhängigkeit von Höhe  $\chi_{max}$  und Position  $T(\chi_{max})$  des Maximums der Suszeptibilität durch Potenzgesetze der Form

$$T(\chi_{max}) = ah^\gamma, \quad \chi_{max} = bh^\beta \quad (4.48)$$

beschreiben lässt, wobei die Koeffizienten von Spinquantenzahl und Dimension des Systems abhängen[29, 30, 118]. Die verfügbaren Literaturresultate für den in dieser Arbeit betrachteten Feldbereich sind in Tabelle 4.3 gezeigt<sup>8</sup>. Die GFM reproduziert die Ergebnisse der exakten Bethe-Ansatz-Methode sehr gut. Da die Näherung identisch ist, stimmen die Ergebnisse in dieser Arbeit mit [30] überein.

Für  $0 < J_2 \leq 0.2$  soll nun mittels GFM untersucht werden, ob das Potenzgesetz Gleichung (4.48) die Gültigkeit behält und wenn ja, wie die Koeffizienten von  $J_2$  abhängen.

In den Insets in Abbildung 4.25 sind Höhe und Position der Maxima aus der GFM und der exakten Diagonalisierung bei  $N = 20$  bei verschiedenen Feldstärken  $h \leq 0.1$  für  $J_2 = 0.05$  und  $J_2 = 0.15$  dargestellt und an Gleichung (4.48) angepasst. Es kann festgestellt werden, dass sich die Ergebnisse exzellent durch das Potenzgesetz beschreiben lassen. Eine weitere Überprüfung

<sup>8</sup>Für größere Feldstärken bleibt das Potenzgesetz für die Höhe  $\chi_{max}$  ebenfalls gültig, die konkreten Zahlenwerte sind jedoch andere. Die Position ändert sich für  $h > 1$  linear mit der Feldstärke [30].

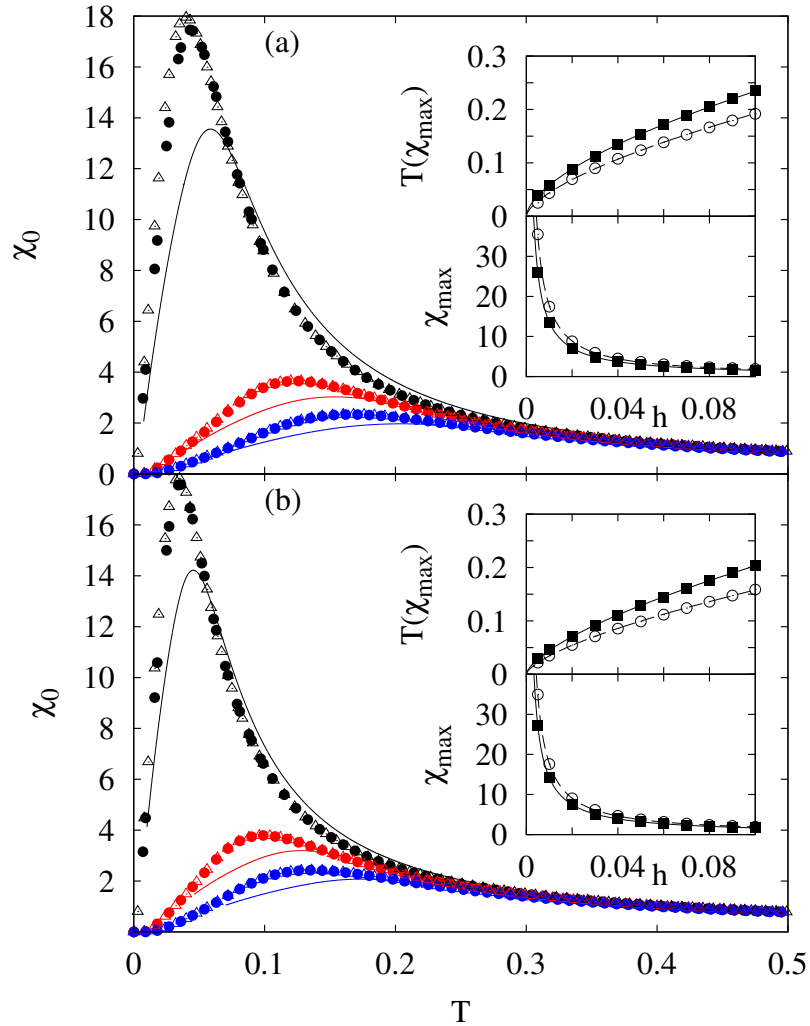


Abbildung 4.25: Suszeptibilität mit  $J_2 = 0.05$  (oben) und  $0.15$  (unten) bei den Feldstärken  $h = 0.01$  (blau) und  $h = 0.005$  (schwarz),  $0.05$  (rot) und  $0.08$  (blau), berechnet mit der Greenfunktionsmethode (Linien) und exakter Diagonalisierung (offene Symbole,  $N = 16$  und gefüllte Symbole,  $N = 20$ ). Die Insets zeigen die Feldabhängigkeit der Höhe  $\chi_{max}$  und der Position  $T(\chi_{max})$ .

der funktionalen Abhängigkeit von  $\chi_{max}$  und  $T(\chi_{max})$  findet in Abbildung 4.26 anhand der logarithmischen Darstellung statt. Dort zeigt sich, dass die zu untersuchenden Größen für alle dargestellten Werte von  $J_2$  ein lineares Verhalten aufweisen. Dieses kann als weitere Bestätigung der Gültigkeit von Gleichung (4.48) auch für Werte von  $J_2$  im Bereich  $0 \leq J_2 \leq 0.2$  aufgefasst werden.

Auch die Daten der exakten Diagonalisierung erfüllen diesen Zusammenhang, wie in den Insets von Abbildung 4.26 zu sehen ist. Dort sind die Ergebnisse für  $N = 20$  und  $J_2 = 0.15$  im Vergleich zu den Resultaten der GFM dargestellt. Hier gilt der Zusammenhang für alle  $J_2 < 0.25$ .

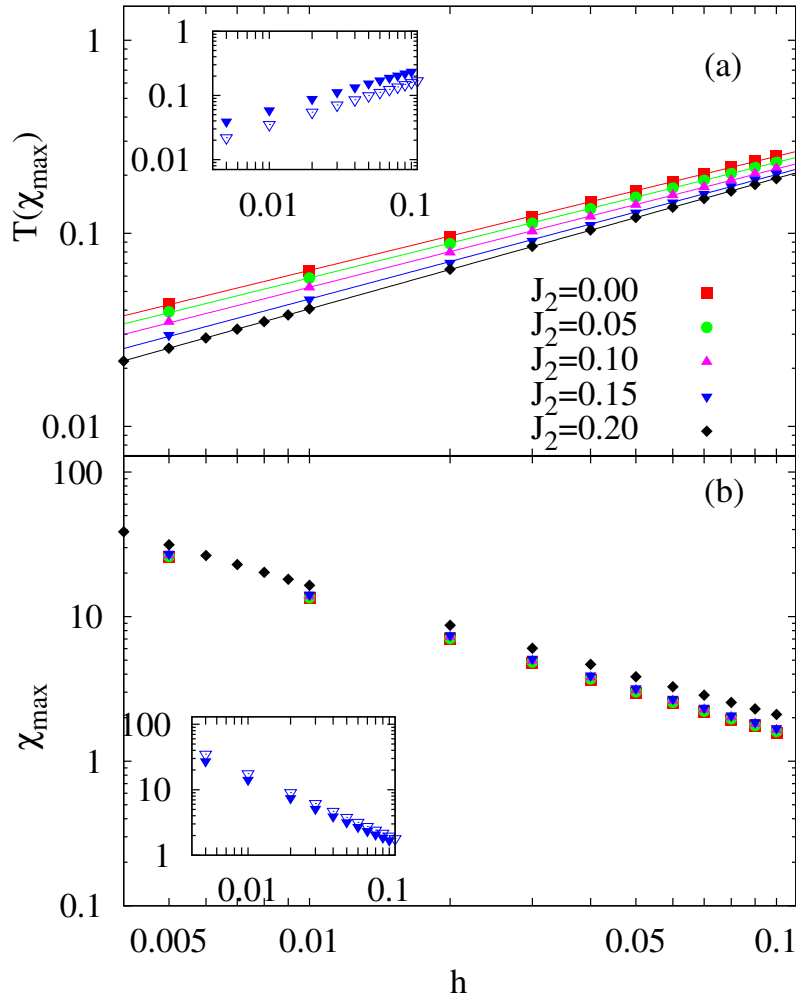


Abbildung 4.26: Position (a) und Höhe (b) des Maximums der Suszeptibilität in Abhängigkeit der Feldstärke für die angegebenen Werte von  $J_2$ , berechnet mit der Greenfunktionsmethode. Die Insets zeigen den Vergleich der Resultate der Greenfunktionsmethode (gefüllte Symbole) und der exakten Diagonalisierung ( $N = 20$ , offene Symbole) für  $J_2 = 0.15$ .

Zur Untersuchung der  $J_2$ -Abhängigkeit der Parameter  $\gamma$ ,  $a$ ,  $\beta$  und  $b$  werden die Daten bei verschiedenen Feldstärken  $h < 0.1$  und fester Frustration an Gleichung (4.48) angepasst. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.27 dargestellt. Es ist zu sehen, dass der Einfluss der übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung auf die Zahlenwerte für  $J_2 \leq 0.2$  sehr schwach ist. So variiert  $\gamma$  zwischen 0.59 und 0.68,  $\beta$  ist mit Werten zwischen  $-0.9$  und  $-0.93$  nahezu konstant, ebenso wie  $b$ . Bis auf den Koeffizienten  $a$  gibt es eine sehr gute Übereinstimmung zwischen den Daten der exakten Diagonalisierung und der GFM, die wesentlichen Unterschiede stammen aus den finite-

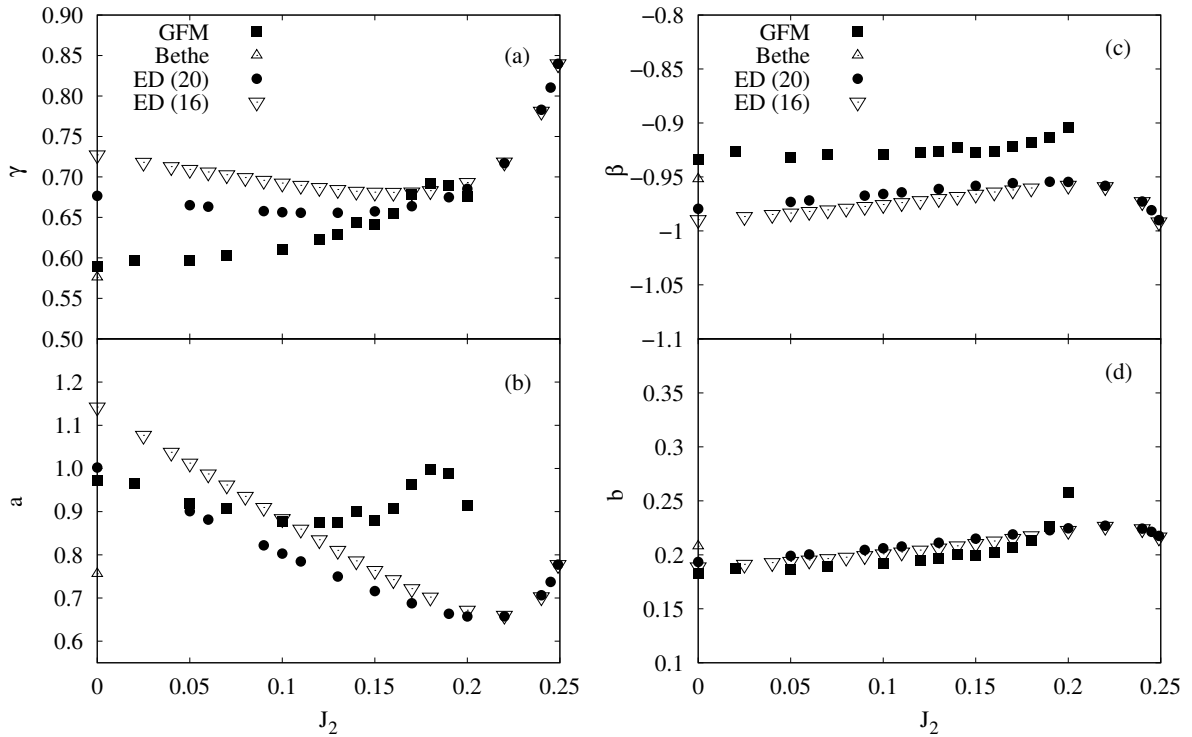


Abbildung 4.27: Koeffizienten  $\gamma$  (a) und  $a$  (b) des Potenzgesetzes  $T(\chi_{max}) = ah^\gamma$  sowie  $\beta$  (c) und  $b$  (d) des Potenzgesetzes  $\chi_{max} = bh^\beta$  in Abhängigkeit von  $J_2$ , berechnet mit der Greenfunktionsmethode und der exakten Diagonalisierung mit  $N = 16$  und  $20$ . Für  $J_2 = 0$  sind auch die Ergebnisse des Bethe-Ansatzes (Tabelle 4.3) gezeigt.

size-Effekten. Hier liefert die GFM offensichtlich nicht nur qualitativ, sondern auch quantitativ gute Ergebnisse. Für  $a$  ist die Abweichung vom Ergebnis des Bethe-Ansatzes bei  $J_2 = 0$  am größten, zur Beschreibung dieses Parameters scheint die GFM nicht geeignet zu sein.

Weiterhin bestätigt sich hier die Beobachtung aus dem feldfreien Fall, wonach die finite-size-Effekte bei wachsendem  $J_2$  in immer tieferen Temperaturbereichen relevant werden. In diesem Fall werden auch die Abweichungen der Datenpunkte für  $N = 16$  und  $20$  immer kleiner. Im Bereich  $0.2 < J_2 < 0.25$ , der nur mit der exakten Diagonalisierung zugänglich ist, sind sie nahezu verschwunden. In diesem Parameterbereich sind deutliche Änderungen der Koeffizienten  $\gamma$ ,  $a$ ,  $\beta$  und  $b$  ablesbar.

Experimente an  $La_{0.91}Mn_{0.95}O_3$  zeigen, dass die Höhe des Maximums der Ableitung des elektrischen Widerstandes nach der Temperatur mit  $h^{2/3}$  wächst [117]. Unter der Annahme, dass dieses Maximum mit dem der Suszeptibilität übereinstimmt, konnte dieselbe Feldabhängigkeit aus der Landau-Theorie entwickelt werden [118]. Wie bereits in Tabelle 4.3 zu sehen, weicht beim isotropen unfrustrierten Ferromagneten dieser Exponent deutlich von den mit Bethe-Ansatz und GFM ermittelten Werten ab [29]. In Abbildung 4.27 konnte gezeigt werden, dass der Exponent insbesondere nahe des Übergangspunktes  $J_2^c = 0.25$  stark von  $J_2$  abhängt. Außerdem ist



er abhängig von der Dimension des Systems [30]. Somit ist eine Beschreibung dieses Materials durch ein isotropes System, in dem keine endliche kritische Temperatur vorliegt, nicht geeignet [29].

Fazit:

In diesem Abschnitt wurde deutlich gemacht, dass sich die Feldabhängigkeit von Position und Höhe des Maximums der Suszeptibilität für  $h < 0.1$  mit den Potenzgesetzen

$$T(\chi_{max}) = ah^\gamma, \quad \chi_{max} = bh^\beta$$

beschreiben lässt, wobei die Koeffizienten für  $J_2/|J_1| \leq 0.2$  nur schwach vom Parameter  $J_2/|J_1|$  abhängen, sich nahe des Übergangspunktes aber stärker ändern.

#### 4.4.5 Korrelationslänge

Wie bei den Korrelationsfunktionen weisen auch die transversale ( $\xi^{+-}$ ) und die longitudinale ( $\xi^{zz}$ ) Komponente der Korrelationslänge eine unterschiedliche Temperaturabhängigkeit auf, zu sehen in Abbildung 4.28. Die transversale Korrelationslänge weist für  $h > 0$  im Limes  $T \rightarrow 0$  keine Divergenz wie im feldfreien Fall auf, vgl. Abschnitt 4.3.4. Vielmehr ergibt sie für  $T = 0$  nach Gleichung (4.33) einen endlichen Wert

$$\xi^{+-}(T=0) = \sqrt{\frac{(1-4J_2)}{2h}}.$$

Bei niedrigen Temperaturen wird sie bei festem Feld demnach gemäß  $(1-4J_2)^{1/2}$  kleiner mit wachsendem  $J_2$ . Dieses schnellere Abfallen ist über den gesamten dargestellten Temperaturbereich sichtbar. Bei fester Frustration wird  $\xi^{+-}$  bei kleinem  $T$  mit  $h^{-1/2}$  kleiner. Hier ist im Gegensatz zum Einfluss von  $J_2$  festzustellen, dass die feldinduzierten Unterschiede bei Temperaturen  $T \gtrsim 3h$  verschwinden.

Der Unterschied zwischen  $\xi^{+-}$  und  $\xi^{zz}$  verschwindet ebenfalls bei Temperaturen in Größenordnung der Feldstärke, analog zu den Korrelationsfunktionen wird die Temperatur die dominierende Energieskala. Thermische Fluktuationen zerstören die magnetische Ordnung, das Feld wird irrelevant [105]. Die Temperatur bei der dies auftritt sinkt leicht mit wachsendem  $J_2$ .

Die longitudinale Korrelationslänge  $\xi^{zz}$  weist bei  $J_2 = 0$  ein anomales Verhalten auf, sie zeigt eine Schulter bei tiefen Temperaturen. Dies wird durch Quanten-Monte-Carlo-Rechnungen bestätigt [30]. Die Schulter ist auch bei kleinen Werten von  $J_2$  sichtbar. Der Temperaturbereich, in dem der horizontale Verlauf auftritt, verkleinert sich bei wachsendem  $J_2$ . Wie  $\xi^{+-}$  fällt  $\xi^{zz}$  mit wachsendem Frustrationsparameter und festem Feld schneller ab, sichtbar im gesamten betrachteten Temperaturbereich. Auch wird sie bei niedrigen Temperatur kleiner bei wachsendem Feld und fester Frustration. Der Einfluss von  $h$  verschwindet bei Temperaturen, die etwas höher sind als bei  $\xi^{+-}$ .

Bei niedrigen Temperaturen gilt  $\xi^{+-} > \xi^{zz}$  [105], im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  könnte sich das Verhältnis

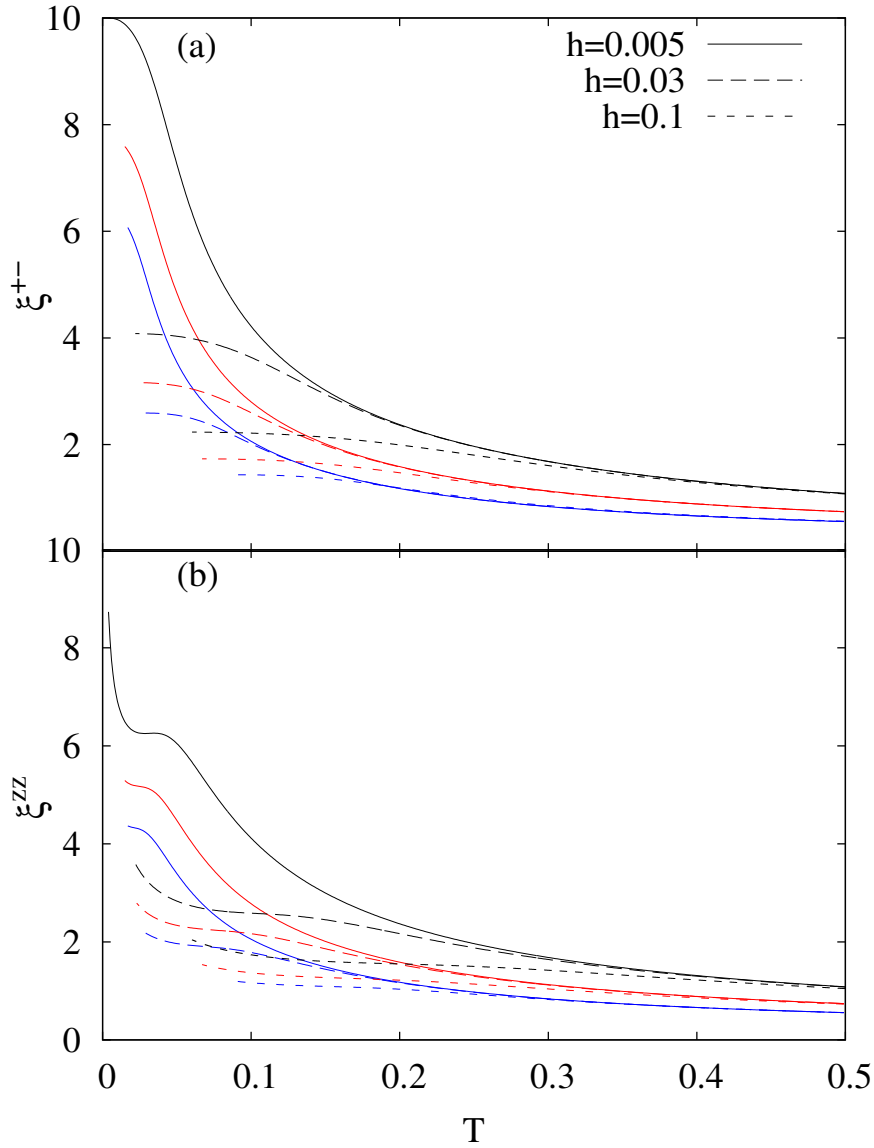


Abbildung 4.28: Korrelationslänge der Greenfunktionsmethode orthogonal zu (a) und in Feldrichtung (b) mit  $J_2 = 0$  (schwarz), 0.1 (rot) und 0.15 (blau) für die angegebenen Feldstärken.

umdrehen. Hier wächst  $\xi^{zz}$  sehr schnell. Ob dieser Effekt real ist, kann jedoch nicht gesichert gesagt werden, da in diesem Limes in Gleichung 4.31 Nenner und Zähler zu Null werden und somit große numerische Unsicherheiten existieren.

Fazit:

Es konnte gezeigt werden, dass die Korrelationslängen im betrachteten Parameterbereich mit wachsendem  $J_2$  im gesamten Temperaturbereich schneller abfallen. Unter Einfluss des Magnetfeldes werden  $\xi^{+-}$  und  $\xi^{zz}$  kleiner, der Unterschied verschwindet bei endlichen Temperaturen in Größenordnung der Feldstärke. Die transversale Korrelationslänge erreicht bei  $T = 0$  den endlichen Wert

$$\xi^{+-}(0) = \sqrt{\frac{(1 - 4J_2)}{2h}},$$

die longitudinale Komponente weist im Limes  $T \rightarrow 0$  eine Schulter auf, die mit wachsendem  $J_2$  kleiner wird.



## Kapitel 5

# Anwendung der Greenfunktionsmethode auf den zweidimensionalen frustrierten Heisenberg-Ferromagneten

### 5.1 Grundlagen, Stand der Forschung

Auch hier soll zunächst ein Überblick über die Grundlagen und den aktuellen Stand der Forschung gegeben werden, da dieses Kapitel den zweiten Schwerpunkt dieser Arbeit darstellt. Neben Materialien, in denen hauptsächlich eine eindimensionale Wechselwirkung vorliegt, gibt es auch Materialien, in denen die verschiedenen Austauschwechselwirkungen bei magnetischen Ionen in zwei Dimensionen dominieren. Somit kann das Heisenbergmodell in zwei Dimensionen als Ausgangspunkt zur Beschreibung realer Materialien dienen. Der Fokus in diesem Abschnitt soll auf Modellen liegen, in denen die das magnetische Moment tragenden Ionen eine Quadratgitterstruktur bilden. Historisch motiviert wurde die Untersuchung durch die Entdeckung einer Klasse von Hochtemperatursupraleitern, der antiferromagnetisch geordneten zweidimensionalen Kuprate.

Zunächst sollen bekannte Resultate des Grundzustandes des reinen ferromagnetischen und antiferromagnetischen Quadratgitters beschrieben werden, welche als Grenzfälle des zu betrachtenden Systems dienen. Im Gegensatz zur Heisenberg-Kette gibt es keinen Ansatz, um das unfrustrierte Heisenberg-Quadratgitter im gesamten Temperaturbereich exakt zu lösen. Bekannt ist der Grundzustand des Ferromagneten auf dem Quadratgitter, der vollständig polarisierte Zustand, der wegen

$$\langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle = S^2 + S\delta_{i,j}$$

für beliebige  $S$  ferngeordnet ist.

Für den Antiferromagneten mit beliebigem  $S$  gibt es keinen rigorosen Beweis, ob der Grundzustand ferngeordnet ist. Dieser existiert nur für  $S \geq 3/2$  [119]. Zahlreiche Näherungsmethoden liefern jedoch endliche Werte der Untergittermagnetisierung auch für  $S = 1/2$  und  $S = 1$ . So ergeben sich für  $S = 1/2$  mit der Spinwellentheorie zweiter beziehungsweise dritter Ordnung  $m = 0.3034$  beziehungsweise  $m = 0.3069$  [120], mit der Coupled-Cluster-Methode (CCM) je nach Extrapolationsmethode  $m = 0.2785$  oder  $m = 0.31$  [121], eine Entwicklung um den Ising-Punkt liefert  $m = 0.307(1)$  [122].

Für  $S = 1$  finden sich Werte  $m = 0.8034$  beziehungsweise  $m = 0.80427$  mit der Spinwellentheorie zweiter beziehungsweise dritter Ordnung [120] sowie  $m = 0.8039(4)$  mit einer Entwicklung um den Ising-Punkt [122].

Wird zum ferromagnetischen Quadratgitter eine antiferromagnetische, frustrierende übernächste-Nachbar-Kopplung  $J_2$  hinzugefügt, erfolgt klassisch bei einer Kopplungsstärke  $J_2/|J_1| = 0.5$  ein Übergang erster Ordnung zwischen der ferromagnetischen Phase im Parameterbereich  $J_2/|J_1| < 0.5$ , in der alle Spins parallel ausgerichtet sind, und einem entarteten kollinearen Zustand für  $J_2/|J_1| > 0.5$ , in dem in eine Raumrichtung die Spins parallel, in die andere Richtung alternierend ausgerichtet sind. Dieser ist charakterisiert durch die klassischen Wellenvektoren  $\mathbf{Q}_1 = (\pi, 0)$  und  $\mathbf{Q}_2 = (0, \pi)$  [123, 124].

Direkt am Übergangspunkt ist der klassische Grundzustand zusätzlich zu den ferromagnetischen und kollinearen Zuständen auch mit den Spiralzuständen  $\mathbf{Q}_3 = (2\pi n/m, 0)$  und  $\mathbf{Q}_4 = (0, 2\pi n/m)$  mit ganzzahligen  $n, m$  entartet, die zwischen den beiden ersten Zuständen interpolieren.

Diese hochgradige Entartung des Grundzustandes führt im Quantenfall zu starken Fluktuationen in der Nähe von  $J_2/|J_1| = 0.5$ , da nur der vollständig polarisierte Zustand Eigenzustand bleibt, die Spiralzustände jedoch nicht.

Im quantenmechanischen  $S = 1/2$ -Quadratgitter führen diese Fluktuationen zu einer Verschiebung des quantenkritischen Punktes hin zu niedrigeren Werten sowie zu einem Wechsel der Ordnung des Übergangs. Numerische Resultate für diesen Wert sind  $J_2^c \approx 0.4$  für den Wechsel erster Ordnung vom ferromagnetischen zu einem Singulett-Zustand, berechnet aus der exakten Diagonalisierung von bis zu 32 Spins [125],  $J_2^c \approx 0.393$  mit der Berechnung der Energie aus bis  $N = \infty$  extrapolierten Daten der exakten Diagonalisierung von bis zu  $N = 40$  Spins sowie  $J_2^c \approx 0.394$  aus einer Berechnung mit der CCM [126].

Die Größenordnung der Werte für  $J_2^c$  könnte einen Hinweis liefern, dass der Übergang zu einem Zustand zweier gebundener Magnonen der Form  $|\varphi\rangle = \sum_{i,j} \varphi_{ij} S_i^- S_j^- |\text{FM}\rangle$  mit  $d$ -Wellen-Symmetrie erfolgt, dessen Energie exakt berechnet werden kann und der bei  $J_2^c = 0.408$  stabil wird [125]. Ein Zustand dieser Art tritt auch beim eindimensionalen Ferromagneten auf, wenn ein äußeres Magnetfeld nahe der Sättigung anliegt, vgl. Kapitel 4.

Konsequenz dieser Annahme ist, analog zum eindimensionalen Modell, dass der Tensor  $Q^{\alpha,\beta}(i, j) = \frac{1}{2} (S_i^\alpha S_j^\beta + S_i^\beta S_j^\alpha) - \frac{\delta_{\alpha,\beta}}{3} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j$  für diesen Zustand eine langreichweitige Ordnung besitzt und eine nematische Spinflüssigkeitsphase auftritt [125]. Die Analyse des exakten Spektrums bei  $J_2 = 0.4$  und  $N = 32$  zeigt, dass die energetisch niedrigsten Zustände der Sektoren mit ungeradem  $S$  ein

endliches Gap besitzen, diejenigen mit geradem  $S$  jedoch nicht. Dafür weisen sie eine Symmetrie auf, die derjenigen des Spektrums der Zwei-Magnonen-Instabilität nahe des Sättigungsfeldes entspricht. Dies liefert Hinweise darauf, dass der nematische Charakter des Grundzustandes auch beim feldfreien Fall an diesem Punkt erhalten bleibt [125].

Ebenfalls analog zum eindimensionalen Fall finden sich in der Nähe des Übergangspunktes  $J_2/|J_1| \approx 0.5$  in den Magnetisierungskurve sowohl Sprünge der Größenordnung  $\Delta S^z = 2$  als auch eine Modifikation des Sättigungsfeldes [127].

Andererseits findet sich bei den bis  $N \rightarrow \infty$  extrapolierten ED-Daten von Systemgrößen bis einschließlich  $N = 40$  eine endliche Untergittermagnetisierung bei  $J_2 \geq 0.44$ , was durch die CCM bestätigt wird [126]. Auch eine mean-field-Näherung im Rahmen der Schwinger-Boson-Theorie ergibt einen direkten Übergang erster Ordnung von der ferromagnetischen zur kollinearen Spinordnung [128].

Falls eine Zwischenphase überhaupt existiert, ist sie offensichtlich kleiner als der in [125] vorausgesagte Wert von  $J_2^{c,2} \approx 0.6$ . Diese Fragestellung muss jedoch im Rahmen dieser Arbeit unbeantwortet bleiben. Die verwendete Methode ist zur Beantwortung nicht geeignet, da multipolare Anregungen im Rahmen der Näherung vernachlässigt werden.

Ebenso wie im vorherigen Kapitel liegen die Materialien, die sich durch den zweidimensionalen Ferromagneten auf dem Quadratgitter beschreiben lassen, selbstverständlich in einer dreidimensionalen Struktur vor. Somit treten dreidimensionale Effekte wie eine magnetische Ordnung bei endlichen Temperaturen auf. Ursache hierfür sind schwache Kopplungen zwischen den magnetischen Ebenen, die jedoch mehrere Größenordnungen unterhalb der Stärke der Wechselwirkung innerhalb der Ebenen liegen [129]. Die Néel-Temperaturen sind deshalb, wie in der Zusammenfassung experimenteller Resultate in Tabelle 5.1 zu sehen, sehr klein. Oberhalb dieser Temperaturen sind diese Zwischenebenenkopplungen zu vernachlässigen und die Beschreibung mit einem zweidimensionalen Modell ist angemessen. Charakteristische Größen wie das Maximum der Suszeptibilität und der spezifischen Wärme liegen bei allen betrachteten Materialien oberhalb dieser Temperatur und können mit den in den folgenden Abschnitten erzielten Resultaten verglichen werden.

Eine wichtige Klasse von Materialien, die sich durch das zweidimensionale ferromagnetische  $J_1$ - $J_2$ -Modell auf dem Quadratgitter gut beschreiben lässt, sind die Vanadiumphosphate  $AA'VO(PO_4)_2$  mit  $AA' = Pb_2, SrZn, BaCd, BaZn$  und  $PbZn$ . Die magnetischen Ebenen bilden  $VO_5$ -Pyramiden und  $PO_4$ -Tetraeder, zwischen den Ebenen befinden sich komplexe  $AA'PO_4$ -Strukturen [130]. Das Vanadium liegt als Ion  $V^{4+}$  vor, die Elektronenkonfiguration der äußeren Schale ist somit  $3d^1$ , also gilt  $S = 1/2$ . Die Struktur der Zwischenebene beeinflusst in nicht-trivialer Weise die Geometrie der magnetischen Ebenen, was zu räumlich anisotropen Kopplungsverhältnissen führt. Thermodynamische Eigenschaften können aber mit hoher Genauigkeit unter Vernachlässigung der Anisotropie beschrieben werden, indem  $J_1$  und  $J_2$  als Mittelwerte der zwei anisotropen Kopplungen betrachtet werden [130]. Schematisch dargestellt ist die Struktur mit den Kopplungen in Abbildung 5.1. Dort ist zu erkennen, dass die  $V^{4+}$ -Ionen quadratarartige Spin-1/2-Gitter bilden. Wie auch bei der in Kapitel 4 beschriebenen Hybridisierung der

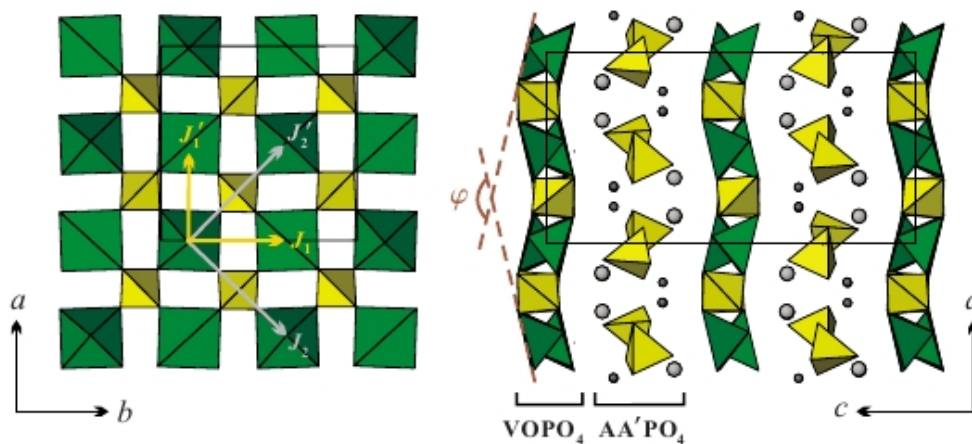


Abbildung 5.1: Kristallstruktur der Vanadiumphosphate  $AA'VO(PO_4)_2$  aus [130]. Die linke Skizze zeigt eine magnetischen Ebene bestehend aus  $VO_5$ -Pyramiden (grün) und  $PO_4$ -Tetraeder (gelb). Die Sauerstoffatome sind an den Spitzen der Pyramiden und Tetraeder lokalisiert, die  $V$ - und  $P$ -Atome innerhalb dieser Strukturen. Rechts ist die Stapelung der magnetischen und unmagnetischen Ebenen dargestellt.

Kupfer- mit den umgebenden Sauerstoffatomen wird beim Vanadium die  $3d$ -Entartung durch das Ligandenfeld aufgehoben [131]. Das besetzte  $d_{xy}$ -Orbital im Vanadium überlappt mit den  $p_x$ - und  $p_y$ -Orbitalen des Sauerstoffs. Die atomare Struktur bedingt jedoch, dass ein einfacher  $V-O-V$ -Superaustausch nicht möglich ist, die Austauschpfade müssen die  $PO_4$ -Tetraeder beinhalten [132]. Weiterhin ist die Bindung zwischen dem  $3d_{x^2-y^2}$ -Orbital des Kupfers und den  $p_{x,y}$ -Orbitalen des Sauerstoffs bei den eindimensionalen Systemen eine  $\sigma$ -Bindung, somit ist der Überlapp und der Bindungswinkel klar definiert. Bei Vanadium und Sauerstoff ist die Bindung jedoch  $\pi$ -artig, hier hängen die Stärke der Bindung, der Überlapp, von der relativen Orientierung der Atome zueinander ab.

Wie beim in Kapitel 4 beschriebenen einfachen  $Cu-O-Cu$ -Austausch verursachen die intra-atomare Coulomb-Abstoßung der Elektronen und die Hundsche Kopplung den dominierenden ferromagnetischen Beitrag zur nächsten-Nachbar-Wechselwirkung [133, 134]. Der dominierende Beitrag der frustrierenden Bindung  $J_2$  stammt aus zwei nichtäquivalenten Austauschpfaden  $V-O-(P)-O-V$  [135]. Die Stärke der Wechselwirkung wird bestimmt durch die Größe der Abstände  $V-O$  und  $O-O$ , also vom Überlapp der entsprechenden  $d_{xy}$  und  $p_x/p_y$  Orbitale und damit auch von der durch die nichtmagnetischen Zwischenebenen beeinflussten Geometrie der Systeme [134].

Einige experimentelle Resultate sind in den Tabellen 5.1, 5.2 und 5.3 aufgeführt. Die Bestimmung der Kopplungsstärken in Tabelle 5.1 geschah in den meisten Arbeiten durch das Anpassen der Messdaten für die Suszeptibilität an Ergebnisse der Hochtemperaturentwicklung bis einschließlich neunter Ordnung für das  $J_1$ - $J_2$ -Modell [22]. In [136] erfolgte die Anpassung lediglich an das Curie-Weiss-Gesetz, in der Tabelle mit (CW) markiert.

Die Bestimmung der Néel-Temperatur geschieht über die Bestimmung des Knicks in der Sus-



Material	$J_1$ (K)	$J_2$ (K)	$J_2/ J_1 $	$T_N$ (K)	publiziert in
$Pb_2VO(PO_4)_2$	-3.2	7.7	2.4	3.7	[136] (CW)
	-5.1	9.4	1.8	3.5	[137]
	-6.0	9.8	1.6	3.5	[138]
	-5.4	9.3	1.7	3.65 ... 3.933	[135]
$SrZnVO(PO_4)_2$	-4.6	6.1	1.3	2.6	[136] (CW)
	-8.25	8.93	1.08	2.7	[137]
	-7.53	8.63	1.15	2.65	[139]
$BaCdVO(PO_4)_2$	-3.6	3.2	0.9	1.0	[140]
$BaZnVO(PO_4)_2$	-4.99	9.26	1.86	3.8	[137]
$PbZnVO(PO_4)_2$	-5.2	10.0	1.9	3.9	[134]
$Na_{1.5}VOPO_4F_{0.5}$	-3.7	6.6	1.8	2.6	[129]

Tabelle 5.1: Kopplungsstärken und Néel-Temperaturen verschiedener Materialien

Material	$J_2/ J_1 $	$\chi_{max}$ (emu/mol)	$T(\chi_{max})$ (K)	$g$	publiziert in
$Pb_2VO(PO_4)_2$	2.4	0.017	8.5	1.96	[136]
	1.8	0.0175	8.92	1.96	[137]
	1.6	0.018	8.67	1.95	[138]
	1.7	1	1	1.95	[135]
$SrZnVO(PO_4)_2$	1.3	0.023	6.34	1.88	[136]
	1.08	0.025	6.27	1.99	[137]
	1.15	0.025	5.83	1.95	[139]
$BaCdVO(PO_4)_2$	0.9	0.0675	2.7	2.00	[140]
$BaZnVO(PO_4)_2$	1.86	0.0185	8.61	1.99	[137]
$PbZnVO(PO_4)_2$	1.9	0.017	8.8	1.87	[134]
$Na_{1.5}VOPO_4F_{0.5}$	1.8	0.027	5.7	1.95	[129]

Tabelle 5.2: Experimentell ermittelte Höhe und Position des Maximums der Suszeptibilität sowie der gyromagnetische Faktor verschiedener Materialien

Material	$J_2/ J_1 $	$C_{max}$ (J/mol K)	$T(C_{max})$ (K)	publiziert in
$Pb_2VO(PO_4)_2$	2.4			[136]
	1.8	3.64	4.48	[137]
	1.6			[138]
	1.7			[135]
$SrZnVO(PO_4)_2$	1.3			[136]
	1.08	3.35	3.4	[137]
	1.15			[139]
$BaCdVO(PO_4)_2$	0.9	2.74	1.5	[140]
$BaZnVO(PO_4)_2$	1.86	3.82	4.7	[137]
$PbZnVO(PO_4)_2$	1.9	3.4	4.96	[134]
$Na_{1.5}VOPO_4F_{0.5}$	1.8	3.6	4.0	[129]

Tabelle 5.3: Experimentell gemessene Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme

zeptibilität [141] oder eines Peaks in der spezifischen Wärme, welche charakteristisch für den Übergang von geordneter zur ungeordneter Phase sind.

Charakteristische Größen des Systems, die sich auch zum Vergleich mit theoretischen Vorhersagen anbieten, sind Position und Höhe des Maximums der spezifischen Wärme und der Suszeptibilität. Die Suszeptibilität als rein magnetische Größe kann direkt gemessen werden, bei der spezifischen Wärme überlagern sich magnetische und phononische Beiträge. Der magnetische Beitrag wird extrahiert, indem für Temperaturen  $T \gtrsim 20\text{K}$  die Messergebnisse an eine Summe aus Debye-Funktionen, die die verschiedenen atomaren Massen und interatomaren Bindungsstärken berücksichtigen, und einem Term  $\propto T^{-2}$ , der das Hochtemperaturverhalten des magnetischen Beitrages beschreibt, angepasst werden. Der durch die Debye-Funktionen beschriebene phononische Beitrag wird von den Messergebnissen abgezogen [137, 140].

Eine Schwierigkeit bei der Festlegung eines Spinmodells besteht darin, dass von der Gitterstruktur nicht zwangsläufig auf das zur Beschreibung adäquate Heisenbergmodell geschlossen werden kann. So wurden die zwei Verbindungen  $\text{Cu}X\text{LaNb}_2\text{O}_7$  mit  $X = \text{Cl}$  und  $\text{Br}$  als Kandidaten für weitere Materialien gehandelt, die durch das ferromagnetische frustrierte  $J_1$ - $J_2$ -Modell beschrieben werden können. Jedoch zeigen Berechnungen der Bandstruktur, dass trotz geschichteter Struktur Gitterstörungen in  $\text{CuClLaNb}_2\text{O}_7$  ein eindimensionales Spinmodell erzwingen könnten [130].

Im Rahmen des nächsten Kapitels soll ein Vergleich zwischen experimentellen Daten und theoretischen Vorhersagen stattfinden. Beispielsweise an der Gleichung (5.6) ist zu sehen, dass die Einheit der Suszeptibilität das Inverse der Einheit der Kopplungskonstanten ist. Da diese in Kelvin angegeben werden, ist ihre Einheit  $1/\text{K}$ . Die Umrechnung von experimentellen und theoretischen Daten geschieht durch [28]

$$\chi_{exp} = \frac{(g\mu_B)^2 N_A}{k_B} \chi_{theo}.$$

Der Faktor  $(g\mu_B)^2$  stammt aus dem Zeeman-Term. In Gleichung (3.2) wurde er mit der Feldstärke zusammengefasst und muss jetzt herausgerechnet werden. Auch die inverse Temperatur  $\beta$ , bisher immer als  $\beta = 1/T$  verwendet, muss wieder zu  $\beta = 1/k_B T$  skaliert werden, indem durch die Boltzmann-Konstante geteilt wird. Da die experimentellen Daten häufig pro Mol angegeben werden, die theoretischen Rechnungen aber die Suszeptibilität pro Teilchen bestimmen, müssen die berechneten Daten noch mit der Avogadro-Konstante  $N_A$  multipliziert werden. Weiterhin muss beachtet werden, dass die Suszeptibilität üblicherweise in *emu* (*ElectroMagnetic Units*), einer CGI-Einheit, angegeben wird. In diesem System lauten die entsprechenden Konstanten

$$\begin{aligned} \mu_B &= 9.27400968 \times 10^{-21} \frac{\text{cm}^{5/2} \text{g}^{1/2}}{\text{s}}, \\ N_A &= 6.02214129 \times 10^{23} \frac{1}{\text{mol}}, \\ k_B &= 1.3806588 \times 10^{-16} \frac{\text{cm}^2 \text{g}}{\text{s}^2 \text{K}}. \end{aligned}$$

---

<sup>1</sup>in der Größenordnung bestätigt (siehe Tabelle 5.2)

Mit diesen Werten folgt

$$\chi_{exp} = g^2 \times 0.374983 \frac{cm^3 K}{mol} \chi_{theo}. \quad (5.1)$$

Der gyromagnetische Faktor ist auf komplizierte Weise von der molekularen Struktur des Materials abhängig und muss ebenfalls experimentell bestimmt werden. Er liegt aber in der Regel nahe des Wertes für Elektronen,  $g \approx 2$ . Die aus dem Fit der Hochtemperaturentwicklung der Suszeptibilität an gemessene Daten gewonnenen Werte für  $g$  sind in Tabelle 5.2 aufgeführt.

Nach dieser Literaturübersicht erfolgt nun die theoretische Behandlung des beschriebenen Modells im Rahmen der im Kapitel 3 vorgestellten Greenfunktionsmethode. Die nachfolgenden Abschnitte des Kapitels 5 sind wie folgt strukturiert:

In Abschnitt 5.2 wird zunächst das allgemeine Gleichungssystem der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode (RGM) für das frustrierte Spin-1/2  $J_1$ - $J_2$ -Modell auf dem Quadratgitter sowohl zur Beschreibung des Grundzustandes als auch der thermodynamischen Eigenschaften spezifiziert. Eine Darstellung der Ergebnisse für den Grundzustand und ein Vergleich mit Daten der exakten Diagonalisierung endlicher Systeme erfolgt in Abschnitt 5.3. Im Abschnitt 5.4 werden die thermodynamischen Eigenschaften für Frustrationsstärken  $J_2/|J_1| < 0.4$  betrachtet, bei denen der ferromagnetische Grundzustand vorliegt. Obwohl der Grundzustand in diesem Parameterbereich unabhängig von  $J_2/|J_1|$  ist, kann ein deutlicher Einfluss auf das thermische Verhalten physikalischer Größen angenommen werden. Dies wurde für das eindimensionale Modell im vorherigen Kapitel gezeigt. In 5.5 wird der Einfluss der Temperatur auf die Systemeigenschaften im Parameterbereich betrachtet, in dem im Grundzustand kollineare Ordnung vorliegt. Unter Berücksichtigung der in Tabelle 5.1 für reale Materialien gemessenen Kopplungsstärken wird  $J_2/|J_1| > 0.9$  betrachtet.

Alle erzielten Resultate werden mit Daten der exakten Diagonalisierung und/oder der Hochtemperaturentwicklung verglichen.

Neben dem grundlegenden Interesse am Einfluss der Frustration auf die physikalischen Größen soll untersucht werden, wie sich experimentell zugängliche charakteristische Größen unter dem Einfluss einer frustrierenden Übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung verhalten. Diese sind, wie in den Tabellen 5.2 und 5.3 dargestellt, die Höhe und die Position der Maxima von Suszeptibilität und spezifischer Wärme. Ziel soll die Bereitstellung von Ergebnissen sein, die bei der Interpretation experimenteller Daten zur Identifizierung eines Spinmodells oder der Bestimmung der Frustration  $J_2/|J_1|$  hilfreich sind.

Weiterhin werden die mit der Greenfunktionsmethode erzielten Resultate mit verfügbaren experimentellen Daten verglichen. Für die Korrelationslänge geschieht dieser Vergleich theoretischer und experimenteller Daten, soweit dem Verfasser bekannt, erstmals.

Teile der dargestellten Resultate sind bereits in [65] und [63] veröffentlicht.

## 5.2 Die Gleichungen der rotationsinvarianten Greenfunktionsmethode für die Spinquantenzahl $S = \frac{1}{2}$

Die Momentenmatrix Gleichung (3.61) für das  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitter lautet für die Spinquantenzahl  $S = \frac{1}{2}$  und damit  $\lambda_{i,j} = 0$

$$M_{\mathbf{q}} = -8J_1 \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle \left(1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(1)}\right) - 8J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \left(1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)}\right), \quad (5.2)$$

mit

$$\gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} = \frac{(\cos q_x + \cos q_y)}{2}, \quad \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} = \cos q_x \cos q_y.$$

Die zugehörige Dispersion ergibt sich nach Gleichung (3.64) zu

$$\omega_{\mathbf{q}}^2 = 2 \sum_{i,j=1,2} J_i J_j \left(1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(i)}\right) \left(K_{i,j} + 8\alpha_{1,i-1} \langle S_{1,i-1}^- S_{0,0}^+ \rangle \left(1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(j)}\right)\right) \quad (5.3)$$

mit

$$\begin{aligned} K_{1,1} &= 1 + 4\alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle + 2\alpha_{2,0} \langle S_{2,0}^- S_{0,0}^+ \rangle - 10\alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle, \\ K_{2,2} &= 1 + 4\alpha_{2,0} \langle S_{2,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 2\alpha_{2,2} \langle S_{2,2}^- S_{0,0}^+ \rangle - 10\alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle, \\ K_{1,2} &= 4\alpha_{1,2} \langle S_{1,2}^- S_{0,0}^+ \rangle - 4\alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle, \\ K_{2,1} &= 4\alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 4\alpha_{1,2} \langle S_{1,2}^- S_{0,0}^+ \rangle - 8\alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle. \end{aligned}$$

Die Anwendung des Spektraltheorems (2.23) auf die Greensche Funktion (3.65),

$$G_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega) = \frac{M_{\mathbf{q}}}{\omega^2 - \omega_{\mathbf{q}}^2}, \quad (5.4)$$

liefert nach Gleichung (3.67) für Korrelationsfunktionen bei endlichen Temperaturen

$$\langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y C_{\mathbf{q}} \cos nq_x \cos mq_y + \sum_{\mathbf{Q}_i} C_{\mathbf{Q}_i} e^{i\mathbf{Q}_i(\mathbf{R}_{n,m} - \mathbf{R}_{0,0})} \quad (5.5)$$

mit

$$C_{\mathbf{q}} = \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} (1 + 2n(\omega_{\mathbf{q}}))$$

und Kondensattermen  $C_{\mathbf{Q}_i}$ , die eine mögliche Fernordnung beschreiben. Die Methode der Greenschen Funktionen erfüllt das Mermin-Wagner-Theorem [60], wie in den hierzu relevanten, in der Übersicht Abschnitt 3.1 erwähnten Arbeiten gezeigt wird. Daher gilt  $C_{\mathbf{Q}_i} = 0$  für  $T \neq 0$ .

Die Suszeptibilität  $\chi_0$  ergibt sich zu

$$\chi_0 = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{\chi_{\mathbf{q}}^{+-}(\omega)}{2} = \frac{-2J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle - 4J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle}{\Delta} \quad (5.6)$$

mit

$$\Delta = J_1^2 K_{1,1} + 2J_2^2 K_{2,2} + J_1 J_2 K_{1,2} + 2J_1 J_2 K_{2,1}. \quad (5.7)$$

Die Korrelationsfunktionen (5.5), die Summenregel  $\langle S_0^- S_0^+ \rangle = 1/2$  und die Forderung der Divergenz der Suszeptibilität  $\chi_{\mathbf{Q}_i}^{-1} = 0$ , falls Fernordnung vorliegt, reichen nicht aus, um das Gleichungssystem mit allen offenen Parametern zu lösen. Die Reduzierung der offenen Faktoren erfolgt allgemein über das Gleichsetzen bestimmter Vertexparameter  $\alpha_{n,m}$ . Das Vorgehen unterscheidet sich im Falle eines kleinen Parameters  $J_2 < 0.5$  von dem bei großen Werten  $J_2 \geq 0.9$ , daher werden beide Fälle getrennt betrachtet.

### 5.2.1 System im Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes

In diesem Parameterbereich gilt  $\mathbf{Q} = \mathbf{0}$ . Zunächst soll die Korrelationslänge mit beiden in Abschnitt 3.4 angegebenen Definitionen bestimmt werden.

Die Definition der Korrelationslänge nach Gleichung (3.72) führt bei der Berechnung zu Schwierigkeiten. Es gilt nahe  $\mathbf{q} = \mathbf{0}$

$$\begin{aligned} \omega_{\mathbf{q}}^2 \approx & \frac{\Delta}{2} (q_x^2 + q_y^2) + (J_1 + 2J_2) \left( J_1 \alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 2J_2^2 \alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right) (q_x^2 + q_y^2)^2 \\ & - \frac{\Delta}{24} (q_x^4 + q_y^4) - \frac{J_2}{2} (J_1 K_{2,1} + J_2 K_{2,2}) q_x^2 q_y^2. \end{aligned} \quad (5.8)$$

Die Terme  $\propto (q_x^4 + q_y^4)$  und  $\propto q_x^2 q_y^2$  lassen es nicht zu, dass eine Korrelationslänge nach

$$\chi_{\mathbf{q}} = \frac{\chi_0}{1 + \xi^2 (q_x^2 + q_y^2)}$$

definiert werden kann. Nach Gleichung (3.73) folgt

$$\xi^2 = \frac{2(J_1 + 2J_2) \left( J_1 \alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 2J_2^2 \alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right)}{\Delta}. \quad (5.9)$$

Diese Definition reproduziert bei  $J_2 = 0$  die beispielsweise in [62] verwendete Korrelationslänge.

Die Korrelationsfunktionen im ferromagnetischen Grundzustand lauten nach Gleichung (5.5)

$$\langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos nq_x \cos mq_y + C^{(0)}.$$

Analog zu den Betrachtungen des ferromagnetischen Grundzustandes im eindimensionalen Fall lässt sich, da der vollständig polarisierte Zustand der quantenmechanisch exakte Grundzustand ist, für die Korrelationsfunktionen der exakte Wert

$$\langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle = \frac{2}{3} S^2 + \frac{2}{3} S \delta_{n,0} \delta_{m,0} = \frac{1}{6} + \frac{1}{3} \delta_{n,0} \delta_{m,0}$$

bestimmen. Dies liefert

$$C_{\mathbf{q}}(T=0) = \frac{M_{\mathbf{q}}(T=0)}{2\omega_{\mathbf{q}}(T=0)} = \frac{1}{3}, \quad C^{(0)} = \frac{1}{6}.$$

Wegen

$$M_{\mathbf{q}}(T=0) = -\frac{4}{3} \left[ J_1 \left( 1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} \right) + J_2 \left( 1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} \right) \right]$$

muss, damit  $C_{\mathbf{q}}(T=0)$  das geforderte Resultat ergibt,

$$\omega_{\mathbf{q}}(T=0) = -2 \left[ J_1 \left( 1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(1)} \right) + J_2 \left( 1 - \gamma_{\mathbf{q}}^{(2)} \right) \right] \quad (5.10)$$

gelten. Dies liefert  $\alpha_{1,0} = \alpha_{1,1} = \frac{3}{2}$  sowie unter der Annahme, dass auch die weiteren Vertexparameter unabhängig von  $J_2/|J_1|$  sind,  $\alpha_{2,0} = \alpha_{1,2} = \alpha_{2,2} = \frac{3}{2}$ . Alle Vertexparameter sind somit im Grundzustand identisch. Hieraus folgt  $K_{i,j} = 0$  sowie  $\Delta = 0$  und damit die bei Fernordnung charakteristische Divergenz der Suszeptibilität und der Korrelationslänge bei  $T=0$ .

Weiterhin kann nach [142] die Spin-Stiffness  $\rho_S$  definiert werden. Sie ist ein Maß für die Stabilität des Grundzustandes gegen Fluktuation. Für  $S=1/2$  ist sie definiert durch

$$\omega_{\mathbf{q}} = \frac{\rho_S}{m} q^2 = 2\rho_S q^2$$

mit der Magnetisierung  $m=1/2$ . Die Dispersion nahe  $\mathbf{q}=\mathbf{0}$ , Gleichung (5.8), lautet unter Verwendung der berechneten Grundzustandsresultate

$$\omega_{\mathbf{q}}^2 = \frac{1}{4} (J_1 + 2J_2)^2 (q_x^2 + q_y^2)^2.$$

Somit lautet die Spin-Stiffness unter der Voraussetzung  $\rho_S > 0$ , die Forderung nach einer positiven Dispersion,

$$\rho_S = -\frac{1}{4} (J_1 + 2J_2). \quad (5.11)$$

Weiterhin können die Vertexparameter im Hochtemperaturlimes  $T \rightarrow \infty$  bestimmt werden. Hier gilt  $\alpha_{i,j} = 1$  [38, 39, 41, 63, 65]. Analytisch zu zeigen ist dies nur in den Grenzfällen  $J_1 = 0$  sowie  $J_2 = 0$  [39], indem in  $C_{\mathbf{q}} 1 + 2n(\omega_{\mathbf{q}}) \approx T/\omega$  gesetzt, die resultierende Gleichung für kleine Korrelationsfunktionen  $\langle S_{i,j}^-, S_0^+ \rangle$  entwickelt und das so erhaltene Gleichungssystem iterativ gelöst wird [38]. In diesem Limes ist die Methode exakt [39].

Somit sind die Vertexparameter sowohl in den Grenzfällen  $T=0$  und  $T \rightarrow \infty$  identisch. Dies legitimiert die Annahme, dass sie auch im Bereich endlicher Temperaturen nicht stark voneinander abweichen und somit gleichgesetzt werden können. Somit können die zu berechnenden Größen  $\langle S_{1,0}^-, S_{0,0}^+ \rangle$ ,  $\langle S_{2,0}^-, S_{0,0}^+ \rangle$ ,  $\langle S_{1,1}^-, S_{0,0}^+ \rangle$ ,  $\langle S_{1,2}^-, S_{0,0}^+ \rangle$ ,  $\langle S_{2,2}^-, S_{0,0}^+ \rangle$  und  $\alpha$  durch die selbstkonsistent zu lösenden Gleichungen 5.5 und der Summenregel  $\langle S_0^-, S_0^+ \rangle = 1/2$  bestimmt werden.

Im Falle endlicher Systeme ist der Zusatzterm für alle Temperaturen endlich und es folgt [49]

$$\chi_0 = \frac{1}{T} \sum_{n,m} \langle S_{n,m}^z S_0^z \rangle = \frac{1}{2T} \sum_{n,m} \langle S_{n,m}^-, S_0^+ \rangle = \frac{N}{2T} C^{(0)}$$

und damit

$$\frac{-2J_1\langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle - 4J_2\langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle}{\Delta} = \frac{N}{2T} C^{(0)}. \quad (5.12)$$

## 5.2.2 System im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes

Die bisher dargestellten Gleichungen bei kleinen  $J_2$  erfüllen die quadratische Gittersymmetrie  $\langle S_{n,m}^- S_{0,0}^+ \rangle = \langle S_{m,n}^- S_{0,0}^+ \rangle$ . Damit diese Symmetrie auch im kollinearen Grundzustand mit  $\mathbf{Q}_1 = (0, \pi)$  und  $\mathbf{Q}_2 = (\pi, 0)$  vorliegt, wird der Mittelwert beider Zustände betrachtet. Somit werden die Korrelationsfunktionen nach

$$\langle S_{n,m}^- S_{0,0}^+ \rangle = \frac{1}{2} \left( \langle S_{n,m}^- S_{0,0}^+ \rangle_{\mathbf{Q}_1} + \langle S_{n,m}^- S_{0,0}^+ \rangle_{\mathbf{Q}_2} \right)$$

berechnet [45].

Wie im vorherigen Abschnitt soll zunächst die Korrelationslänge berechnet werden. Dies erfolgt für  $\mathbf{Q}_1 = (0, \pi)$ , die Ergebnisse für den klassischen Ordnungsvektor  $\mathbf{Q}_2 = (\pi, 0)$  entsprechen diesen, wenn  $q_x$  und  $q_y$  vertauscht werden.

Zunächst ergibt sich nahe  $\mathbf{Q}_1$

$$\begin{aligned} M_{\mathbf{Q}_1+\mathbf{q}} &\approx -8J_1\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle - 16J_2\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \\ &\quad + \left( -2J_1\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 4J_2\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) q_x^2 + \left( 2J_1\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 4J_2\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) q_y^2, \\ \omega_{\mathbf{Q}_1+\mathbf{q}} &\approx \Delta^C + (A - B) q_x^2 + (-A - B) q_y^2 \end{aligned}$$

mit

$$\begin{aligned} A &= \frac{1}{2} J_1^2 \left( K_{1,1} + 16\alpha_{1,0}\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) + \frac{1}{2} J_1 J_2 \left( K_{1,2} + 16 \left( \alpha_{1,0}\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + \alpha_{1,1}\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) \right), \\ B &= J_2^2 \left( K_{2,2} + 32\alpha_{1,1}\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) + J_1 J_2 \left( K_{2,1} + 8 \left( \alpha_{1,0}\langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + \alpha_{1,1}\langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle \right) \right). \end{aligned}$$

Hieraus folgt, nach Gleichung (3.72), aus der Definition

$$\chi_{\mathbf{Q}_1+\mathbf{q}} = \frac{\chi_{\mathbf{Q}_1}}{1 + \xi_x^2 q_x^2 + \xi_y^2 q_y^2}$$

für die Korrelationslängen

$$\xi_x^2 = \frac{A - B}{\Delta^C}, \quad \xi_y^2 = -\frac{A + B}{\Delta^C}.$$

Eine Definition nach Gleichung (3.73) in der Form

$$\chi_{\mathbf{Q}_1+\mathbf{q}} = \chi_{\mathbf{Q}_1} \left( 1 - \xi_x^2 q_x^2 - \xi_y^2 q_y^2 \right)$$

liefert

$$\xi_x^2 = \frac{-J_1 \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 2J_2 \langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle}{4J_1 \langle S_{1,0}^- S_{0,0}^+ \rangle + 8J_2 \langle S_{1,1}^- S_{0,0}^+ \rangle} + \frac{A - B}{\Delta^C}, \quad \xi_y^2 = \frac{1}{4} - \frac{A + B}{\Delta^C}.$$

Beide klassischen kollinearen Zustände sind entartet, die Korrelationslängen sind experimentell nicht zu unterscheiden. Die tatsächliche Korrelationslänge ist analog zu den Korrelationsfunktionen die Überlagerung beider Richtungen. Dadurch ergibt sich aus der ersten Variante mit der Bildung des Mittelwertes eine Korrelationslänge

$$\xi^2 = \frac{1}{2} (\xi_x^2 + \xi_y^2) = -\frac{B}{\Delta^C}. \quad (5.13)$$

Bei der zweiten Variante kann etwas konsequenter argumentiert werden, dass die Suszeptibilität und damit die Greensche Funktion analog zu den Korrelationsfunktion die quadratische Symmetrie erhalten muss, was durch die Mittelwertbildung

$$\chi_{\mathbf{Q}+\mathbf{q}} = \frac{1}{2} (\chi_{\mathbf{Q}_1+\mathbf{q}} + \chi_{\mathbf{Q}_2+\mathbf{q}})$$

geschieht [63]. Dies führt bei den Korrelationslängen ebenfalls mit

$$\xi^2 = \frac{1}{2} (\xi_x^2 + \xi_y^2) = \frac{J_2 C_{1,1}}{2J_1 C_{1,0} + 4J_2 C_{1,1}} - \frac{B}{\Delta^C} \quad (5.14)$$

zur Mittelwertbildung.

Im Folgenden soll das Gleichungssystem für den Grundzustand unter Berücksichtigung der quadratischen Symmetrie der Korrelationsfunktionen und eines möglichen Kondensatterms betrachtet werden. Die Korrelationsfunktionen lauten, da aufgrund der quadratischen Symmetrie die zwei Kondensatterme  $C_{\mathbf{Q}_1}^{(0)}$  und  $C_{\mathbf{Q}_2}^{(0)}$  identisch sind,

$$\begin{aligned} \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos q_x, \\ \langle S_{2,0}^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos 2q_x + C^{(0)}, \\ \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos q_x \cos q_y - C^{(0)}, \\ \langle S_{1,2}^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos q_x \cos 2q_y, \\ \langle S_{2,2}^- S_0^+ \rangle &= \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} \cos 2q_x \cos 2q_y + C^{(0)}. \end{aligned}$$

Die Summenregel wird

$$\langle S_0^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{2} = \frac{1}{\pi^2} \int_0^\pi dq_x \int_0^\pi dq_y \frac{M_{\mathbf{q}}}{2\omega_{\mathbf{q}}} + C^{(0)}.$$



Die Forderung nach Fernordnung und die damit verbundene Divergenz in der Suszeptibilität  $\chi_{\mathbf{Q}_1}$  und  $\chi_{\mathbf{Q}_2}$  führt zu der für beide  $\mathbf{Q}_i$  identischen Bedingung

$$\begin{aligned} \Delta^C = 0 = & 2J_1^2 \left( K_{1,1} + 8\alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle \right) + 4J_2^2 \left( K_{2,2} + 16\alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right) \\ & + 2J_1 J_2 \left( K_{1,2} + 2K_{2,1} + 16 \left( \alpha_{1,0} \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + \alpha_{1,1} \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right) \right). \end{aligned}$$

Da der quantenmechanische kollineare Zustand eine komplexe Linearkombination aus verschiedenen  $N$ -fachen Produktzuständen bezüglich der Eigenfunktionen der Quantisierungsrichtung ist, ist dieser für große Systeme nicht exakt bekannt. Es gibt im Gegensatz zum ferromagnetischen Fall keine exakte Lösung der Grundzustandseigenschaften. Die Gleichungen müssen numerisch ausgewertet werden.

Werden analog zum vorherigen Abschnitt alle Vertexparameter gleichgesetzt, reichen die sechs angegebenen Gleichungen zur selbstkonsistenten Lösung des Systems aus. In Abschnitt 5.3 wird jedoch gezeigt, dass dieses Vorgehen zu einer ungeordneten Phase führt, die im Vergleich zu allen verfügbaren theoretischen Vorhersagen und experimentellen Aussagen wesentlich zu groß ist.

Die Überschätzung von Phasen ohne Fernordnung ist ein bekanntes Problem der Methode [45, 52, 141]. In vorherigen Arbeiten wurde gezeigt, dass bei antiferromagnetischen Systemen die Resultate der Greenfunktionsmethode verbessert werden können, wenn an Stelle von nur einem Vertexparameter ein zweiter berücksichtigt wird [39, 41, 44, 62]. Hierfür wird eine zusätzliche Gleichung benötigt, um eine selbstkonsistente Lösung zu erzielen.

Um dies zu erreichen, wird wie in [39, 41, 44–46, 62, 141] eine physikalische Größe an Ergebnisse angepasst, die von einer anderen Methode erzielt wurden. Die Wahl fiel auf den mit der CCM [126] berechneten Ordnungsparameter bei  $T = 0$ . Die Methode hat sich als sehr effizient zur Bestimmung von Grundzustandseigenschaften erwiesen, da eine systematische Erweiterung der verwendeten Näherungsschemata und somit eine Extrapolation möglich ist.<sup>2</sup>

Mit der zusätzlichen Gleichung

$$m^{RGM}(T = 0) = m^{CCM}(T = 0)$$

wird die Unterscheidung

$$\alpha_{1,1} \equiv \alpha_1, \quad \alpha_{n,m} \equiv \alpha_2 \quad \forall (n, m) \neq (1, 1)$$

möglich. Der Vertexparameter  $\alpha_{1,1}$  wird von den anderen unterschieden, da im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes die Korrelationsfunktion  $\langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle$  zur dominierenden Kopplung gehört.

Wird das System bei endlichen Temperaturen betrachtet, ist die Verwendung von Resultaten, die mit anderen Methoden ermittelt wurden, nicht mehr sinnvoll. So sind, da mehr als der niedrigste Eigenvektor der Hamiltonmatrix berechnet werden muss, die zugänglichen Systemgrößen

<sup>2</sup>Die Näherung besteht in einer Beschränkung auf  $n$  Spinflips bei  $m$  durch nächste-Nachbar-Wechselwirkungen verbundenen Gitterplätzen (Cluster). Diese Parameter können systematisch vergrößert werden. Die Genauigkeit der Extrapolation  $n, m \rightarrow \infty$  wird jedoch durch den zum Teil spekulativen Charakter des Extrapolationsschemas eingeschränkt.

der exakten Diagonalisierung auf 22 [64] reduziert, wodurch, wie in Abschnitt 5.4 gezeigt, finite-size Effekte auftreten. Die CCM ist für endliche Temperaturen nicht anwendbar, die sehr genaue Quanten-Monte-Carlo-Methode leidet am für frustrierte Systeme charakteristischen Vorzeichenproblem [14].

Das in zahlreichen Arbeiten wie [39, 41, 46, 62, 141] gewählte Vorgehen besteht nun darin, den Quotienten

$$r_\alpha(T) = \frac{\alpha_2(T) - \alpha_2(\infty)}{\alpha_1(T) - \alpha_1(\infty)} = \frac{\alpha_2(T) - 1}{\alpha_1(T) - 1} \stackrel{!}{=} \frac{\alpha_2(0) - 1}{\alpha_1(0) - 1} = r_\alpha(0) \quad (5.15)$$

als temperaturunabhängig anzunehmen. Dieses Vorgehen wird in Abschnitt 5.5 gewählt und im Folgenden als Variante (a) bezeichnet. Es zeigt sich jedoch, dass bei einer Frustration  $J_2 \lesssim 1$  im Limes tiefer Temperaturen die Ergebnisse der Grundzustandsberechnungen nicht erreicht werden, da, von hohen Temperaturen kommend, das nichtlineare Gleichungssystem zu einer mit dem Grundzustand nicht verträglichen Lösung konvergiert.

Zur Vermeidung dieser Problematik wird bei der Betrachtung der kollinearen Phase außerdem ein Ansatz gewählt, bei dem Quotienten  $\alpha_2(T)/\alpha_1(T)$  zwischen Grundzustand und  $T = \infty$  durch

$$\frac{\alpha_2(T)}{\alpha_1(T)} = 1 + \left( \frac{\alpha_2(0)}{\alpha_1(0)} - 1 \right) e^{-\gamma T} \quad (5.16)$$

exponentiell extrapoliert wird. Die konkrete Wahl eines kleinen  $0 \leq \gamma \leq 0.01$  hat keinen deutlichen Einfluss auf die physikalischen Werte, so stimmen die Ergebnisse für  $\chi$  in diesem Bereich nahezu überein [63]. Die Festlegung  $\gamma = 0.005$  liefert die stabilsten numerischen Resultate bei tiefen Temperaturen. Diese Wahl der Gleichung wird Variante (b) genannt.

### 5.3 Resultate für den Grundzustand

In diesem Abschnitt werden die Grundzustandsergebnisse des frustrierten ferromagnetischen Quadratgitters der RGM mit einem Vertexparameter  $\alpha_{i,j} \equiv \alpha$  mit denen mit festgelegter Magnetisierung sowie zwei verschiedenen Vertexparametern gezeigt und verglichen.

Im Inset von Abbildung 5.2 ist der Ordnungsparameter dargestellt. Ohne zusätzlichen Input verschwindet sie bei  $J_2 = 1.58$ , somit sagt die Methode eine zu große ungeordnete Phase voraus. Da in Abschnitt 5.5 unter anderem die theoretischen Vorhersagen mit experimentellen Resultaten von Materialien im Bereich  $J_2 \approx 1$  verglichen werden sollen, wird Untergittermagnetisierung an die Ergebnisse der Coupled-Cluster-Methode [126], die gestrichelte Linie im Inset von Abbildung 5.2, angepasst, so dass im System die richtige Grundzustandsphase vorliegt. In einer aktuellen Publikation, in der das Phasendiagramm im gesamten Parameterbereich mit der RGM berechnet wurde, werden die Ergebnisse bestätigt. Allerdings wurde dort im Bereich  $0.433 \leq J_2/|J_1| \leq 0.458$  ein Abschnitt gefunden, in dem die Magnetisierung kontinuierlich auf Null absinkt und nicht per Sprung, wie hier angenommen wird [143].

Die Korrelationsfunktionen, die als offene Parameter in das selbstkonsistente Gleichungssystem

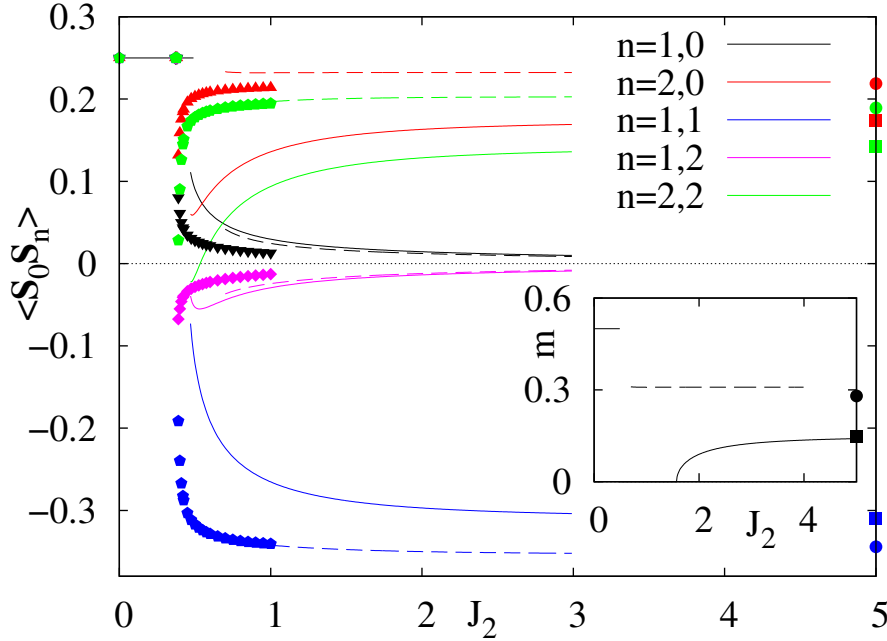


Abbildung 5.2: Korrelationsfunktionen im Grundzustand des frustrierten ferromagnetischen Quadratgitters ohne zusätzliche äußere Informationen (durchgezogene Linien) und mit festgelegter Magnetisierung (gestrichelte Linien), die Ergebnisse des Limes  $J_2 \rightarrow \infty$ , der Antiferromagnet auf dem Quadratgitter, werden durch die Punkte (unter Berücksichtigung der Magnetisierung) beziehungsweise Quadrate (ohne Input) repräsentiert. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der exakten Diagonalisierung für die Systemgröße  $N = 36$  dargestellt (Symbole). Der Inset zeigt die als Input verwendete Magnetisierung, berechnet mit der Coupled-Cluster-Methode [126] (gestrichelte Linie) und die sich aus der RGM mit einem Vertexparameter ergebenden Magnetisierung (durchgezogene Linie).

eingehen, sind in Abbildung 5.2 dargestellt. In beiden Varianten der Greenfunktionsmethode zeigen sie einen qualitativ ähnlichen Verlauf, nahe des Phasenübergangs ist der Einfluss der Größe der Frustration stark, für  $J_2 \gtrsim 2$  sind sie näherungsweise konstant und entsprechen den Werten des Limes  $J_2 \rightarrow \infty$ , des reinen Antiferromagneten auf dem Quadratgitter.  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,0} \rangle$  und  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,2} \rangle$  verschwinden in diesem Limes erwartungsgemäß.

Insbesondere nahe des Phasenübergangs zeigen sich starke Unterschiede zwischen den zwei Varianten. Zum Vergleich sind auch die Ergebnisse der exakten Diagonalisierung für die entsprechenden Korrelationsfunktionen gezeigt. Da nur der Grundzustand betrachtet wird, muss nicht die gesamte Hamiltonmatrix diagonalisiert werden, wodurch die verwendete Systemgröße zu  $N = 36$  gewählt werden kann. Durch das vergleichsweise große  $N$  sind die finite-size Effekte gering. So ist der Unterschied der Energien zwischen  $N = 36$  und  $N = 40$  höchstens 1% [126].

In Abbildung 5.2 ist zu sehen, dass die Variante der Greenfunktionsmethode, in der die Magnetisierung festgelegt ist und somit ein zweiter Vertexparameter verwendet werden kann, deutlich besser mit den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung übereinstimmt.

Insbesondere bei festgelegter Magnetisierung zeigt die Greenfunktionsmethode analog zur exakten Diagonalisierung Sprünge in den Korrelationsfunktionen beim Quantenphasenübergang zur ferromagnetischen Phase, welche auf einen Übergang erster Ordnung hinweisen. Falls eine

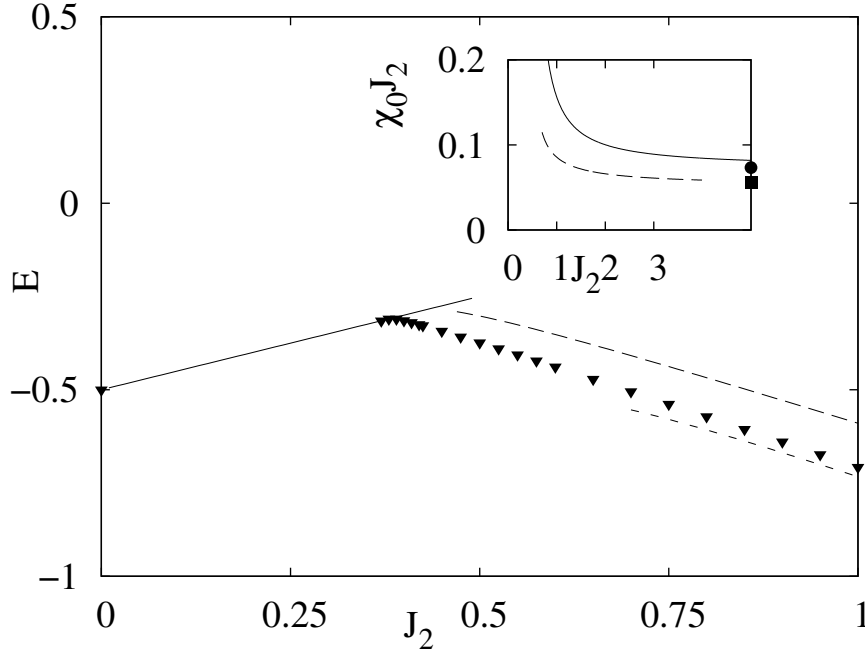


Abbildung 5.3: Energie des frustrierten Ferromagneten auf dem Quadratgitter. Die durchgezogene Linie zeigt die Energie des ferromagnetischen Grundzustandes sowie die Energie ohne (langgestrichelte Linie) und mit festgelegter Magnetisierung (kurzgestrichelte Linie). Zum Vergleich ist die Energie aus der exakten Diagonalisierung mit  $N = 36$  (Dreiecke) dargestellt. Der Inset zeigt die Suszeptibilität  $\chi_0$ , berechnet ohne (durchgezogene Linie) und mit festgelegter Magnetisierung (gestrichelte Linie) sowie die entsprechenden Ergebnisse im Grenzfall  $J_2 \rightarrow \infty$ .

weitere (nematische) Phase bei  $J_2 > J_2^c$  im System auftritt, ist der Übergang zur kollinearen Phase aufgrund des kontinuierlichen Verlaufs der  $\langle \mathbf{S}_{i,j} \mathbf{S}_{0,0} \rangle$  von zweiter Ordnung.

Die Energie ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Da diese direkt mit den Korrelationsfunktionen zusammenhängt, zeigt sich auch hier ein qualitativ identisches Verhalten zwischen den beiden RGM-Varianten. Jedoch stimmen die Daten aus der Greenfunktionsmethode, in der die mit der CCM berechnete Magnetisierung als Input einging, quantitativ besser mit den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung für  $N = 36$  überein.

Ein Kriterium zur Bestimmung der kritischen Frustration, bei der der Phasenübergang zwischen der ferromagnetischen und der möglichen ungeordneten bzw. der kollinearen Phase auftritt, ist die Bestimmung des Punktes, bei dem die entsprechenden Energien identisch sind. Eine Extrapolation an eine Potenzreihe bis zur quadratischen Ordnung liefert für die RGM mit einem Vertexparameter einen Wert von  $J_2^c \approx 0.44$  für das *level-crossing* [65]. Für die zweite Variante ist eine Vorhersage nicht möglich, da der zu extrapolierende Bereich groß und das Verhalten der Energie mit  $J_2$  nicht bekannt ist. Eine grobe Abschätzung liefert einen Wert, der etwas kleiner ist als der aus den Daten der exakten Diagonalisierung ermittelte. Dieser aus der Extrapolation für den thermodynamischen Limes erhaltene Wert lautet  $J_2^c = 0.393$  [126], bei den dargestellten Daten für  $N = 36$  gilt  $0.38 < J_2^c < 0.39$ .  $J_2^c$  wächst also leicht mit zunehmender Systemgröße.

Ebenfalls in Abbildung 5.3 gezeigt ist die Suszeptibilität  $\chi_0 = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{1}{2} \chi^{+-}(\mathbf{q}, \omega)$ , mul-

$\chi_{\perp}$	Methode	publiziert in
0.10996	Greenfunktionsmethode mit einem Vertexparameter	
0.08435	Greenfunktionsmethode mit festgelegter Magnetisierung $m(e^{(1)})$	
0.07756	Greenfunktionsmethode mit festgelegter Magnetisierung $m(e^{(2)})$	
0.06550	modifizierte Spinwellentheorie	[144]
0.0669(7)	Greenfunktions-Monte-Carlo-Simulation	[145]
0.056106	Spinwellentheorie zweiter Ordnung	[120]
0.06291	Spinwellentheorie dritter Ordnung	[120]
0.0700	Coupled-Cluster-Methode	[146]
0.0659(10)	Entwicklung um den Ising-Punkt	[122]

Tabelle 5.4: Suszeptibilität  $\chi_{\perp} = \frac{3}{2}\chi_0$  des Antiferromagneten auf dem Quadratgitter im Vergleich mit den Ergebnissen anderer Methoden.

tipuliert mit  $J_2$ . Bei beiden Varianten der RGM divergiert  $\chi_0$  im Grenzfall  $J_2 \rightarrow J_2^c$ . Dies ist zu erwarten, da diese Größe im gesamten Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes divergiert. Auch hier ist der Einfluss der Quantenfluktuationen nahe des Übergangspunktes am größten, die Suszeptibilität ist stark von  $J_2$  abhängig. Für  $J_2 \gtrsim 3$  fällt sie nur noch proportional zu  $J_2$ , die Werte stimmen bereits gut mit denen des Grenzfalls  $J_2 \rightarrow \infty$  überein.

Die Suszeptibilität des Antiferromagneten auf dem Quadratgitter ist bereits vielfach mit verschiedenen anderen Methoden untersucht worden, einige Ergebnisse sind in Tabelle 5.4 zusammengestellt.

Die Extrapolation der Daten der Coupled-Cluster-Methode für verschiedene LSUB-n-Näherungsstufen<sup>3</sup> erfolgt in zwei verschiedenen Varianten,

$$e^{(1)} = a_0 + \frac{a_1}{n^{1/2}} + \frac{a_2}{n^{3/2}}, \quad e^{(2)} = b_0 + \frac{b_1}{n} + \frac{b_2}{n^2},$$

mit den Ergebnissen  $m(e^1) = 0.280319$  und  $m(e^2) = 0.310242$ . Dieselben Extrapolationsschemata werden auch für die als Input verwendeten Daten verwendet.

Eine Auswahl an Literaturergebnissen für die Suszeptibilität  $\chi_{\perp} = \frac{3}{2}\chi_0$  ist in Tabelle 5.4 angegeben. Die Berechnung der Suszeptibilität senkrecht zur Achse der Magnetisierung tritt in der Literatur häufig auf. Die hier und beispielsweise in [16, 144] verwendete Definition liefert die über alle Raumrichtung gemittelte Suszeptibilität

$$\chi_0 = \frac{1}{3}(\chi_{\parallel} + 2\chi_{\perp}).$$

Sie ist im Grundzustand gültig, wenn zuerst die Feldstärke und dann die Temperatur zu Null gesetzt wird, also Rotationssymmetrie vorliegt. Damit eine gültige Definition auch im umgekehrten Fall möglich ist, wird oft die Suszeptibilität  $\chi_{\perp}$  angegeben. Bei  $T = 0$  gilt dann  $\chi_{\parallel} = 0$  und [147]

$$\chi_0 = \frac{2}{3}\chi_{\perp}.$$

<sup>3</sup>Eine Darstellung der Methode erfolgt hier nicht, für Details siehe [25–27].

Als Input für das Gleichungssystem werden die Ergebnisse aus der Variante  $e^1$  benutzt. Das Ergebnis der Suszeptibilität mit der Magnetisierung aus  $e^2$  liegt zwar, wie in Tabelle 5.4 zu sehen, näher an den Ergebnissen anderer Methoden, doch sind die numerischen Resultate mit Variante  $e^1$  über einen breiteren Parameterbereich stabiler.

Zum Abschluss des Kapitels soll noch erwähnt werden, dass bei der numerischen Lösung des Gleichungssystems bei festgelegter Magnetisierung die gewünschte Genauigkeit von  $10^{-7}$  nicht erreicht werden kann, der Fehler liegt hier im Bereich  $10^{-4}$ . Da jedoch keine abgeleiteten Größen wie die spezifische Wärme betrachtet werden, ist diese Genauigkeit ausreichend.

## 5.4 Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei ferromagnetischem Grundzustand

Im Folgenden wird  $J_1 = -1$  gesetzt. Die Lösung des Gleichungssystems erfolgt mit dem Broydn-Verfahren mit einer Genauigkeit von  $10^{-8}$  [107], die im thermodynamischen Limes benötigte numerische Integration der Momente erfolgt per Gauss-Legendre-Integration mit  $300 \times 300$  Stützstellen. Der Temperaturbereich wird von  $T = 5$  abfallend mit der Schrittweite  $\Delta T = 0.001$  gerastert.

### 5.4.1 Korrelationsfunktionen

In Abbildung 5.4 sind die nächste-Nachbar- und übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen für  $J_2 = 0.1$  und  $J_2 = 0.35$ , Werte nahe des reinen ferromagnetischen Quadratgitters und nahe des Übergangspunktes  $J_2^c$ , dargestellt, berechnet mit der Greenfunktionsmethode für die Systemgrößen  $N = 16, 20, 64$  und  $400$  und im thermodynamischen Limes. Zum Vergleich sind die Ergebnisse der exakten Diagonalisierung von Systemen mit  $N = 16$  und  $20$  Gitterplätzen sowie der [3,3]-Padé-Approximation der Daten der Hochtemperaturentwicklung (HTE) bis zur sechsten Ordnung [23] aufgeführt.

Beim Vergleich der Resultate der RGM für verschiedene Systemgrößen fällt auf, dass für  $N \geq 64$  bei wachsendem  $N$  sich die Kurven systematisch dem Resultat des thermodynamischen Limes annähern. Der Bereich bei mittleren Temperaturen, bei denen Abweichungen auftreten, wird kontinuierlich kleiner. Die Kurven für  $N = 16$  verlaufen qualitativ analog zu den Kurven  $N \geq 64$ , zeigen jedoch eine Abweichung am Ende des dargestellten Temperaturbereichs, bei der die anderen Kurven bereits zusammenfallen. Bei  $N = 20$  verlaufen insbesondere bei Kopplungsstärken, die nahe des Phasenübergangs liegen, die Korrelationsfunktionen unsystematisch im Vergleich zu anderen Systemgrößen, deutlich zu sehen bei  $J_2 = 0.35$ .

Eine mögliche Ursache hierfür sind die verwendeten periodischen Randbedingungen, aufgrund

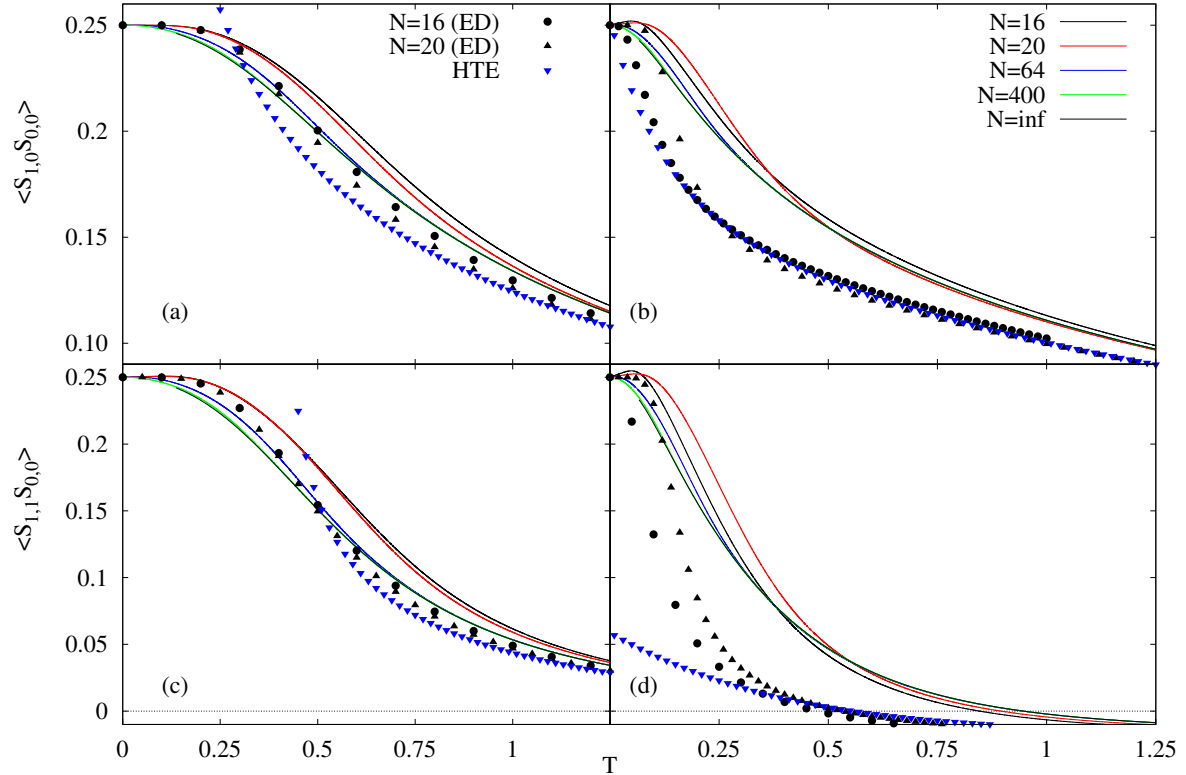


Abbildung 5.4: Nächste-Nachbar- ((a) und (b)) und übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen ((c) und (d)) für  $J_2 = 0.1$  ((a) und (c)) sowie  $J_2 = 0.35$  ((b) und (d)) berechnet mit der Greenfunktionsmethode für  $N = 16, 20, 64, 400$  und  $\infty$  sowie durch exakte Diagonalisierung (schwarz) von Systemen mit  $N = 16$  (Kreise) und 20 Gitterplätzen (Dreiecke) und der [3,3]-Padé-Approximation der Daten der Hochtemperaturentwicklung (blau) [23].

derer nicht alle in der Greenschen Funktion Gleichung (5.4) auftauchenden Korrelationsfunktionen unabhängig sind. So muss bei  $N = 20$  beispielsweise  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{2,0} \rangle = \langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{2,2} \rangle$  gelten, was die Lösung des Gleichungssystems beeinflusst<sup>4</sup>. Da die Korrelationsfunktion  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{2,2} \rangle$  nur in Termen proportional zu  $J_2$  oder  $J_2^2$  auftaucht, erklärt diese Tatsache auch, warum die Abweichung nur bei großen  $J_2$  auftaucht.

Trotz der erwähnten Schwierigkeiten für  $N = 16$  und 20 werden die Daten in den folgenden Darstellungen mit aufgeführt, zum einen aus informativen Gründen und um Vergleiche mit Resultaten der exakten Diagonalisierung durchzuführen, die aufgrund der enormen Größe der Hamiltonmatrix nur bis  $N = 20$  möglich ist.

Der Vergleich mit diesen Daten liefert eine qualitative Übereinstimmung im Temperaturverlauf, bei sehr niedrigen und hohen Temperaturen stimmen alle Daten überein. Die Temperatur,

<sup>4</sup>Anzumerken ist, dass die Greenfunktionsmethode für  $N = 16$  die Periodizität der Korrelationsfunktion nicht reproduziert.

ab der die Kurven zusammenfallen, wächst mit wachsendem  $J_2$ , ebenso wie die Größe der Abweichung zwischen den Daten der Greenfunktionsmethode und der exakten Diagonalisierung. Somit sind aufgrund der geringen Systemausdehnung deutliche finite-size-Effekte zu sehen. Die HTE liefert insbesondere bei einer  $J_2$ -Werten nahe des Übergangspunktes eine bessere quantitative Beschreibung für hohe Temperaturen. So ist für  $J_2 = 0.35$  die Temperatur, bei der die übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktion negativ wird, bei der exakten Diagonalisierung und der Hochtemperaturentwicklung mit  $T^* \approx 0.5$  nur etwa halb so groß wie bei der Greenfunktionsmethode. Andererseits zeigen die Daten der exakten Diagonalisierung in diesem Temperaturbereich noch starke finite-size-Effekte, so dass dieser Punkt im thermodynamischen Limes zu höheren Temperaturen verschoben wird. Auch ist möglicherweise  $T^*$  zu klein, um noch von der HTE korrekt beschrieben werden zu können.

Alle drei Methoden zeigen übereinstimmend, dass die Korrelationsfunktionen mit wachsendem  $J_2$  schneller im Temperaturverlauf abklingen, vgl. auch [65]. Dieses Verhalten steht in Verbindung zur Verringerung der Korrelationslänge mit wachsender Stärke der übernächsten-Nachbar-Wechselwirkung, vgl. hierzu auch Abschnitt 5.4.4.

Ebenfalls interessant ist die Frage, wie sich die Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_{\mathbf{R}} \rangle$  mit dem Abstand  $|\mathbf{R}|$  entwickeln. Im Rahmen der Greenfunktionsmethode wurde von Suzuki et. al. [43] für  $J_2 = 0$  im Grenzfall großer Abstände  $\mathbf{R} \rightarrow \infty$  der Ausdruck

$$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_{\mathbf{R}} \rangle \approx -\frac{T}{J_1} \sqrt{\frac{\xi}{2\pi |\mathbf{R}|}} e^{-|\mathbf{R}|/\xi}$$

bestimmt, der in der funktionalen Abhängigkeit von  $|\mathbf{R}|$  dem der Ornstein-Zernike-Theorie entspricht. Die modifizierte Spinwellentheorie [16] liefert in diesem Limes ebenfalls ein Ornstein-Zernike-artiges Verhalten mit

$$\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_{\mathbf{R}} \rangle \approx \frac{T^2}{4\pi J_1^2 S^2} \frac{\xi}{|\mathbf{R}|} e^{-|\mathbf{R}|/\xi}.$$

In Abbildung 5.4 ist zu erkennen, dass für  $J_2 = 0.35$  die übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktion bei  $T \approx 0.95$  negativ wird. Dieses liefert einen Hinweis darauf, dass bei endlichen Werten von  $J_2$  das Ornstein-Zernike-Verhalten der Korrelationsfunktionen zusammenbrechen kann. Untersuchungen hierzu und der damit verbundenen Schwierigkeiten bei der Definition der Korrelationslänge finden im Kapitel 5.4.4 über die Korrelationslänge statt.

## 5.4.2 Spezifische Wärmekapazität

Eine weitere interessante Größe ist die spezifische Wärme. Dargestellt ist sie in Abbildung 5.5 für  $N = 16, 20, 64, 400$  und für den thermodynamischen Limes, bestimmt aus den Ergebnissen der RGM. Zum Vergleich sind die Daten der exakten Diagonalisierung für  $N = 16$  und  $20$  sowie die der Hochtemperaturentwicklung [23, 24] für die Frustrationswerte  $J_2 = 0.1$  und  $J_2 = 0.35$



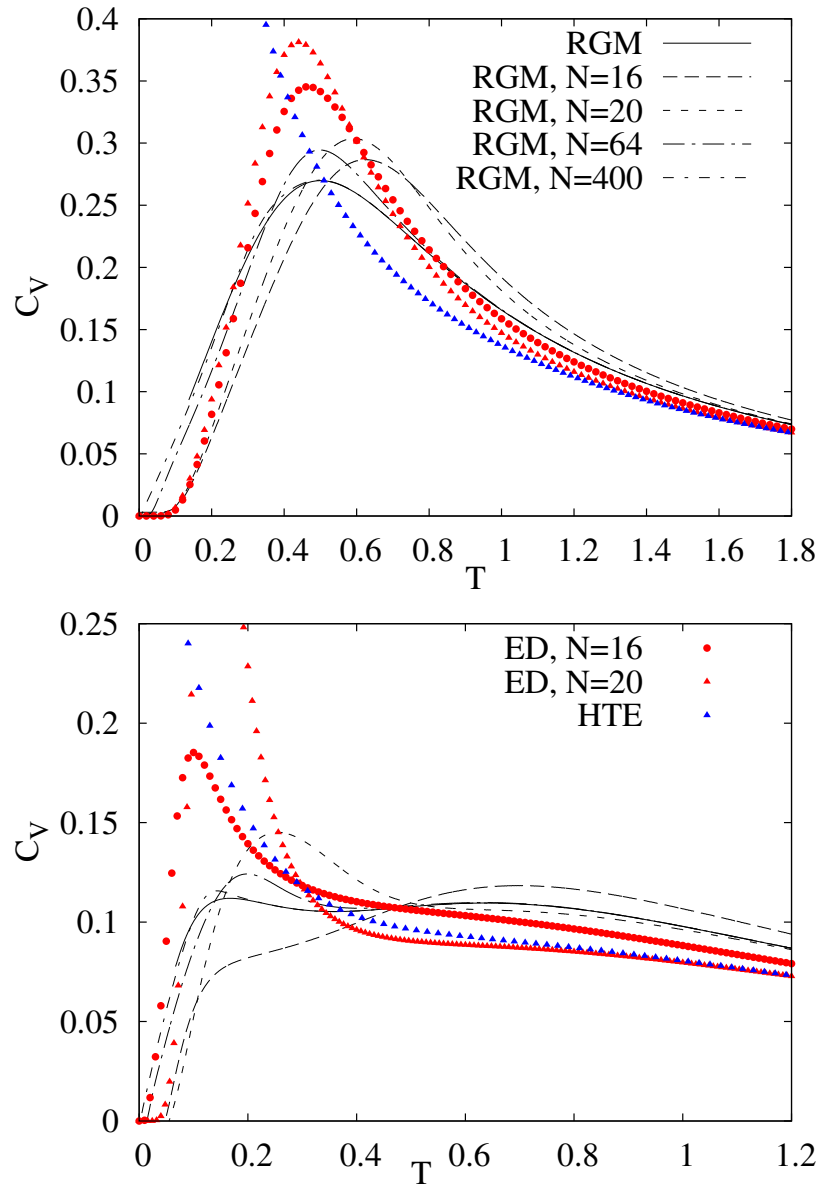


Abbildung 5.5: Spezifische Wärme für  $J_2 = 0.1$  (oben) und  $J_2 = 0.35$  (unten) berechnet mit der Greenfunktionsmethode für  $N = 16, 20, 64, 400$  und  $\infty$  (schwarz) sowie durch exakte Diagonalisierung von Systemen (schwarz) mit  $N = 16$  (Kreise) und 20 Gitterplätzen (Dreiecke) und der [5,5]-Padé-Approximation der Daten der Hochtemperaturentwicklung (blau) [23, 24].

gezeigt.

Bei schwacher Frustration gibt es eine gute qualitative Übereinstimmung der Kurven der RGM und der exakten Diagonalisierung. Wie bei den Korrelationsfunktionen stimmen bei tiefen ( $T \lesssim 0.15$ ) und bei hohen ( $T \gtrsim 1.8$ ) Temperaturen die Daten der exakten Diagonalisierung und der

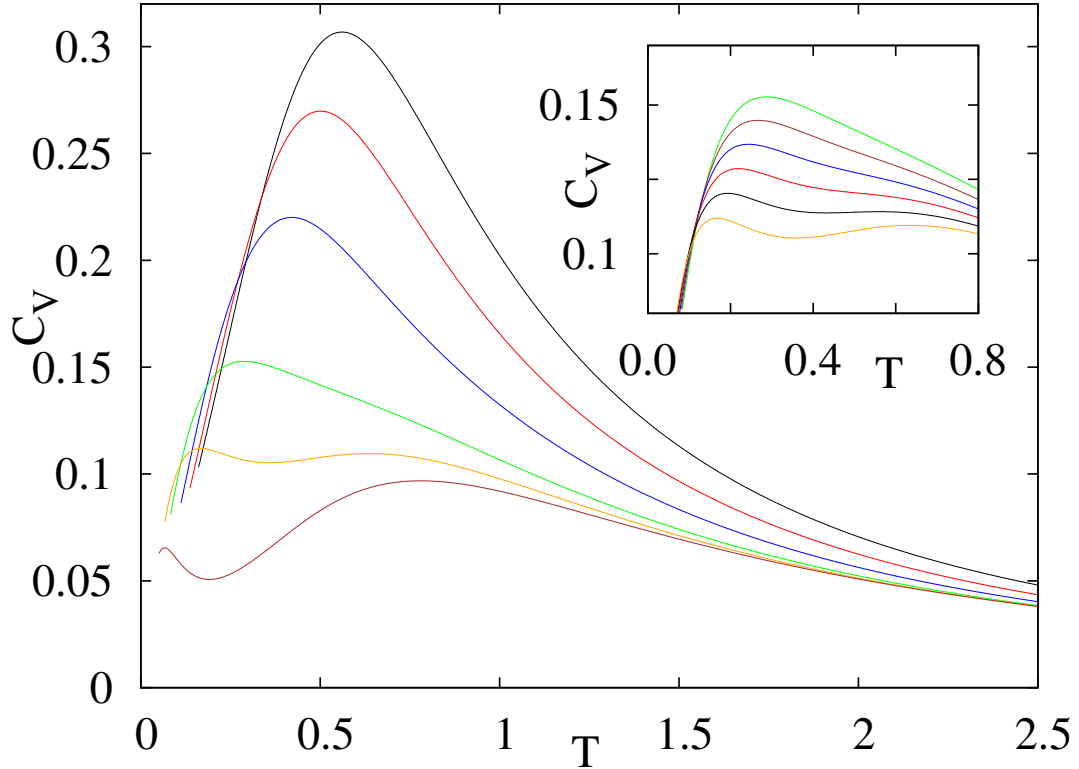


Abbildung 5.6: Spezifische Wärme der Greenfunktionsmethode im thermodynamischen Limes für  $J_2 = 0.0, 0.1, 0.2, 0.3, 0.35$  und  $0.4$  (von oben nach unten). Der Inset zeigt  $C_V$  für  $J_2 = 0.3, 0.31, 0.32, 0.33, 0.34$  und  $0.35$  (von oben nach unten).

Greenfunktionsmethode für  $N = 16$  und  $20$  überein. Die Maxima, die sich aus der exakten Diagonalisierung ergeben, sind höher und liegen bei tieferen Temperaturen als die vergleichbaren Maxima der RGM. Beide Methoden sagen übereinstimmend vorher, dass sich beim Wechsel von  $N = 16$  auf  $N = 20$  das Maximum erhöht und zu tieferen Temperaturen verschiebt. Bei den Resultaten der RGM setzt sich diese Verschiebung der Position des Maximums auch bei einer weiteren Erhöhung der Systemgröße fort, die Höhe wird jedoch wieder geringer. Dieses unsystematische Verhalten hat möglicherweise wiederum die Ursache in den periodischen Randbedingungen.

Die [5,5]-Padé-Approximation der Daten der HTE stimmt bei  $T \gtrsim 1.2$  mit denen der exakten Diagonalisierung für  $N = 20$  überein, ein Maß dafür, ab welchem  $T$  die finite-size-Effekte keine Rolle mehr spielen. Diese Temperatur ist wesentlich höher als im eindimensionalen Fall, da die Systemausdehnung entsprechend kleiner und damit die finite-size-Effekte entsprechend größer sind. Die Hochtemperaturentwicklung liefert im Gegensatz zum eindimensionalen Fall kein Maximum. Dieses liegt bei Temperaturen, die zu tief sind, um von ihr korrekt beschrieben zu werden.

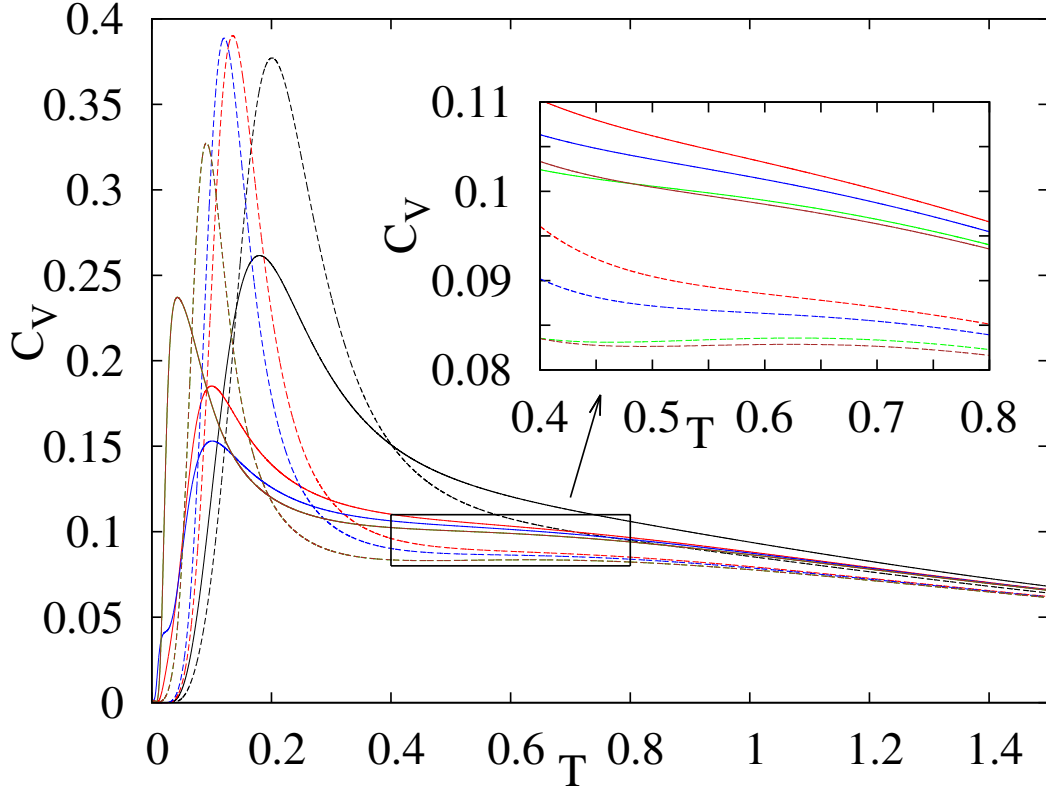


Abbildung 5.7: Spezifische Wärme aus der exakten Diagonalisierung für  $J_2 = 0.3$  (schwarz),  $0.35$  (rot),  $0.36$  (blau),  $0.38$  (grün) und  $0.4$  (braun) für  $N = 16$  (durchgezogen) und  $N = 20$  (gestrichelt). Der Inset ist die Vergrößerung des markierten Bereiches.

Nahe des Übergangspunktes existieren deutliche, auch qualitative Unterschiede zwischen den Daten der RGM und der exakten Diagonalisierung. Die Greenfunktionsmethode sagt die Existenz eines breiten Maximums bei  $T \approx 0.7$  voraus, außerdem entwickelt sich mit wachsendem  $N$  ein zusätzliches Maximum bei  $T \approx 0.2$ . Bei den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung tritt das breite Maximum nicht auf. Hier existiert ein Maximum im Bereich  $T \approx 0.15$ , welches viel stärker ausgeprägt ist als bei der RGM.

Zur weiteren Analyse ist die spezifische Wärme für verschiedene Werte von  $J_2$  in Abbildung 5.6 dargestellt. Für  $J_2 = 0$  liegt der typische Verlauf eines Ferromagneten mit einem breiten Maximum bei  $T = 0.561$  vor. Mit wachsender frustrierender Kopplungsstärke verschieben sich die Höhe und die Position des Maximums zu niedrigeren Werten. Es ist zu sehen, dass sich für  $J_2 \gtrsim 0.34$  die beschriebene Doppelmaximumstruktur ausbildet. Im Gegensatz zum eindimensionalen Fall ist es nicht das Tieftemperaturmaximum welches hinzukommt, sondern das bei mittleren Temperaturen. Dieses Verhalten zeigt, dass nahe des kritischen Punktes die tief liegenden Energieniveaus dicht zusammenrücken und so den Phasenübergang andeuten [65].

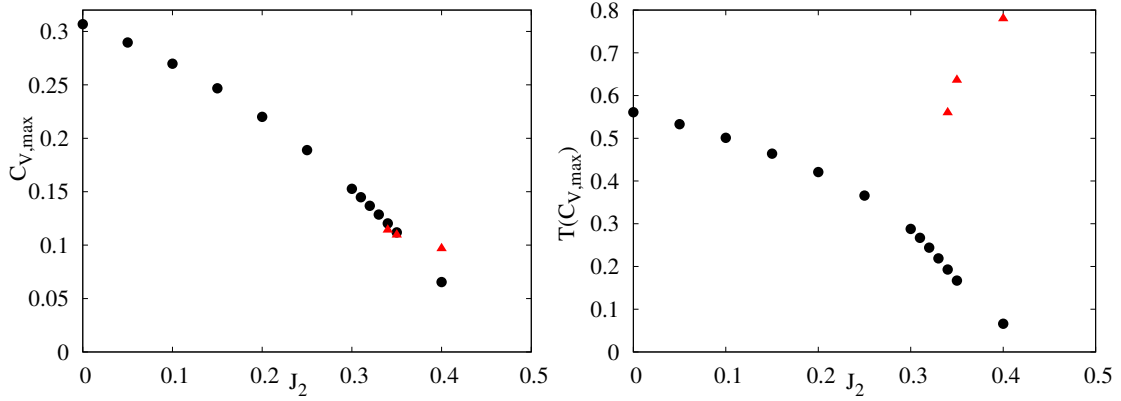


Abbildung 5.8: Höhe (links) und Position (rechts) des Maximums der spezifischen Wärme. Die Daten des zusätzlichen Maximums bei mittleren Temperaturen sind in den roten Symbolen dargestellt.

Die Bestätigung der Doppelmaximumstruktur durch die exakte Diagonalisierung ist hier aufgrund der geringen räumlichen Ausdehnung der durch die Methode zugänglichen Systemgröße komplizierter als im eindimensionalen Fall. Dies macht eine Extrapolation des Maximums in den thermodynamischen Limes wie in [64, 104] unmöglich. Die Daten für  $N = 16$  und  $20$  sind in Abbildung 5.7 dargestellt. Für  $J_2 \leq 0.36$  ist keine Doppelmaximumstruktur erkennbar, jedoch für  $J_2 \geq 0.38$  bildet sie sich für  $N = 20$  aus. Da die Kurven für  $J_2 = 0.38$  und  $0.4$  nahezu übereinstimmen, kann vermutet werden, dass diese Kurven bereits zur kollinearen beziehungsweise zur Zwischenphase gehören. Diese Vermutung ergibt sich, da das  $J_2^c$ , welches sich aus dem *level-crossing* der Energien ergibt, mit abnehmender Systemgröße kleiner wird [126], vgl. hierzu Abschnitt 5.3. Somit kann die Doppelmaximumstruktur nicht verifiziert werden.

Zum Abschluss dieses Abschnitts wird in Abbildung 5.8 die Höhe  $C_{V,max}$  und die Position  $T(C_{V,max})$  der spezifischen Wärme dargestellt. Diese Daten sind interessant, um aus experimentellen Messungen eine Abschätzung der Größenordnung von  $J_2$  vorzunehmen.

Fazit:

Es wurde gefunden, dass die Höhe und die Position des Maximums der spezifischen Wärme mit wachsendem Verhältnis  $J_2/|J_1|$  kleiner werden. Mit der RGM konnte eine Doppelmaximumstruktur für  $J_2/|J_1| \gtrsim 0.34$  nachgewiesen werden.

### 5.4.3 Suszeptibilität

Die uniforme statische Suszeptibilität  $\chi_0 = \lim_{\mathbf{q} \rightarrow \mathbf{0}} \lim_{\omega \rightarrow 0} \frac{1}{2} \chi^{+-}(\mathbf{q}, \omega)$  ist in Abbildung 5.9 dargestellt. Aufgeführt sind die Daten der RGM für  $N = 16, 20, 64, 400$  und  $\infty$ , der exakten

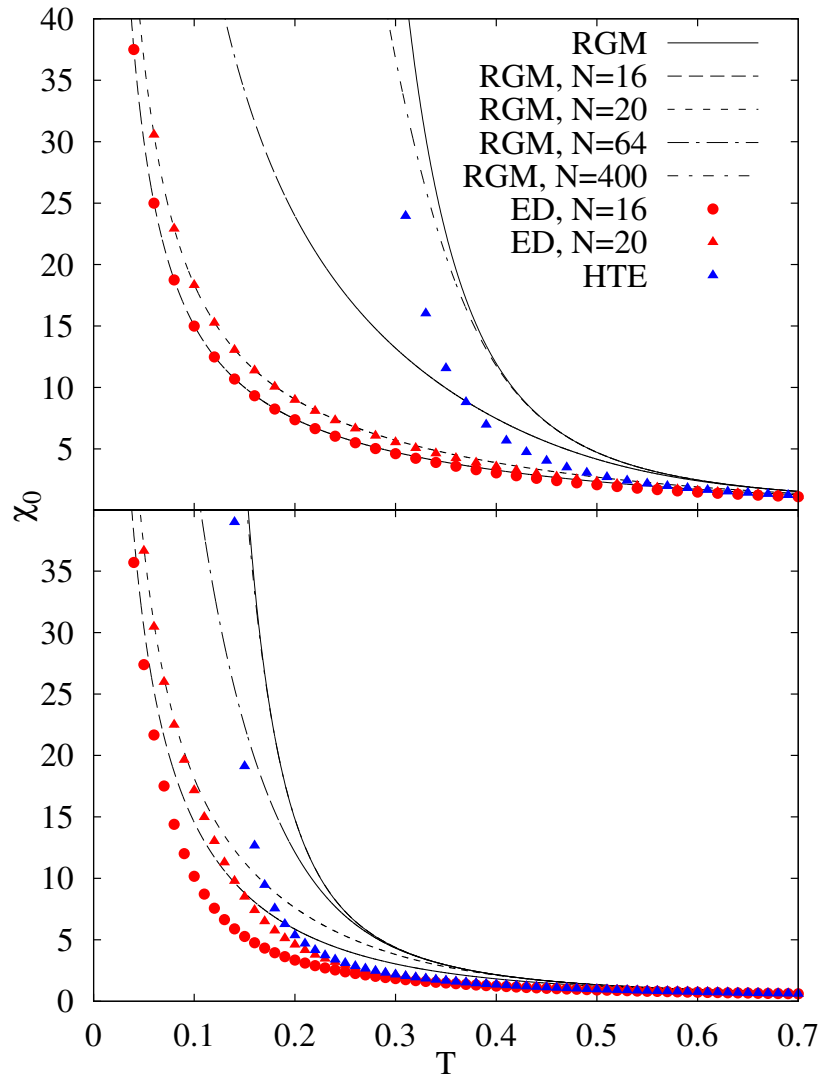


Abbildung 5.9: Suszeptibilität für  $J_2 = 0.1$  (oben) und  $J_2 = 0.35$  (unten) berechnet mit der Greenfunktionsmethode für  $N = 16, 20, 64, 400$  und  $\infty$  (schwarz) sowie durch exakte Diagonalisierung (rot) von Systemen mit  $N = 16$  (Kreise) und 20 Gitterplätzen (Dreiecke) und der [5,5]-Padé-Approximation der Daten der exakten Hochtemperaturentwicklung (blau) [23, 24].

Diagonalisierung von Systemen mit  $N = 16$  und 20 Gitterplätzen und der exakten Hochtemperaturentwicklung.

Die Kurven der RGM für verschiedene Systemgrößen entwickeln sich systematisch zum thermodynamischen Limes hin. Weiterhin kann konstatiert werden, dass die Suszeptibilität starken finite-size Effekten unterworfen ist. Der Temperaturbereich, in dem sie relevant sind, wird mit wachsendem  $J_2$  kleiner. Auch verringert sich der Unterschied zwischen den Kurven verschiedener

Systemgrößen. Bei schwacher Frustration ergibt sich eine exzellente Übereinstimmung zwischen den Ergebnissen der exakten Diagonalisierung und der RGM bei  $N = 16$  und  $20$ . Bei wachsendem Frustrationsparameter zeigt sich, dass sich bei mittleren Temperaturen  $T \approx 0.3$  Abweichungen ergeben, wohingegen bei sehr tiefen ( $T \lesssim 0.05$ ) und hohen Temperaturen ( $T \gtrsim 0.5$ ) die Übereinstimmung immer noch sehr hoch ist.

Der Vergleich der [5,5]-Padé-Approximation der Daten der HTE zeigt, dass diese und die der exakten Diagonalisierung bis zu Temperaturen übereinstimmen, die mit wachsendem  $J_2$  niedriger werden, ebenfalls ein Hinweis auf sich im Temperaturverlauf reduzierende finite-size-Effekte. Die Vorhersagen der RGM fallen mit denen der HTE bei Temperaturen zusammen, die vergleichbar sind mit denen von RGM und exakter Diagonalisierung. Diese können als Grenze aufgefasst werden, bis zu der die HTE-Resultate vertrauenswürdig sind.

Alle drei Methoden sagen übereinstimmend vorher, dass die Suszeptibilität mit wachsendem  $J_2$  im Temperaturverlauf schneller abfällt. Dies gilt besonders im Limes  $T \rightarrow 0$ , in der RGM und exakte Diagonalisierung übereinstimmend ein kritisches Verhalten vorhersagen. Die HTE liefert in diesem Bereich keine gültigen Resultate. Die auftretende Divergenz signalisiert den Phasenübergang der ungeordneten Phase bei  $T \neq 0$  hin zum ferromagnetischen Grundzustand. Daher soll im Folgenden untersucht werden, nach welchen Gesetzmäßigkeiten sich die Suszeptibilität bei tiefen Temperaturen verhält.

In der Literatur sind bereits einige Untersuchungen durchgeführt worden, jedoch nur für den unfrustrierten Ferromagneten auf dem Quadratgitter. Es wurde übereinstimmend gefunden, dass die Suszeptibilität des ferromagnetischen Quadratgitters für  $T \rightarrow 0$  exponentiell divergiert. In der modifizierten Spinwellentheorie<sup>5</sup> [16] ergibt sich für ein ferromagnetisches  $J_1 < 0$

$$\chi_0 = \frac{y}{T^l} \exp\left(-\frac{4\pi J_1 x}{T}\right) (1 + O(T)) \quad \text{mit } l = 0, \quad y = -\frac{1}{3\pi J_1 S}, \quad x = S^2.$$

Berechnungen mit einer Greenfunktionsmethode zweiter Ordnung liefert für  $S = 1/2$  die Werte  $l = 1$  und  $x = 1/8$  [150] beziehungsweise für beliebige  $S$  die Werte  $l = 1$ ,  $y = 2S/3$  und  $x = S^2/2$  [43]. Die modifizierte Spinwellentheorie in Kombination mit einer one-loop-Renormierungsgruppentheorie liefert  $l = 0$ ,  $y = -1/3\pi J_1 S \kappa(S)$  und  $x = S^2 \kappa(S)$  mit einem vom Spin  $S$  abhängigen Renormierungsfaktor  $\kappa(S)$  [148], bei einem two-loop-Renormierungsansatz ändert sich mit  $l = -2$ ,  $y \approx -0.0048/3J_1^3 S^3$  und  $x = S^2$  [149] die funktionale Abhängigkeit des Vorfaktors von  $T$ . Eine Monte-Carlo-Simulation für  $S = 1/2$  liefert  $y \approx 0.027$  einen Exponenten  $x \approx 4.5/2\pi$  unter der Annahme  $l = 0$  [151].

Folgendes Vorgehen wird gewählt, um die  $J_2$ -Abhängigkeit insbesondere des Koeffizienten  $b$

---

<sup>5</sup>Wie im eindimensionalen Fall ist in [16, 148, 149] die Suszeptibilität so gewählt, dass sie vier Mal so groß ist wie die in dieser Arbeit definierte. Da hier nur die funktionale Abhängigkeit des Vorfaktors von  $T$  sowie der Ausdruck im Exponent betrachtet werden soll, ist dieses hier weniger relevant.

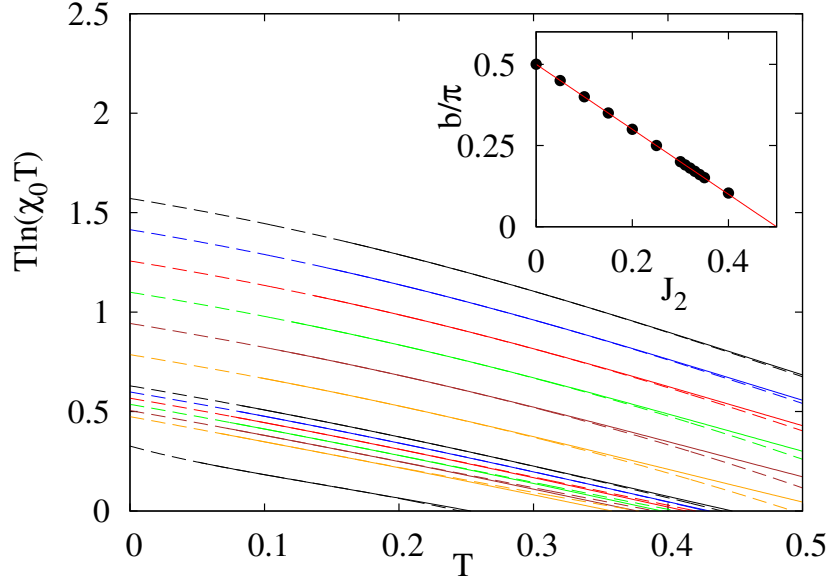


Abbildung 5.10: Numerische Daten im thermodynamischen Limes für  $T \ln(T\chi_0)$  in Abhängigkeit von  $T$  für  $J_2 = 0.0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.20, 0.25, 0.30, 0.31, 0.32, 0.33, 0.34, 0.35$  und  $0.40$  (durchgezogene Linien, von oben nach unten) sowie die Ergebnisse der Anpassung an das angenommene Tieftemperaturverhalten Gleichung (5.17) (gestrichelte Linie). Der Inset zeigt die Ergebnisse für den Exponenten  $b$  und die Kurve  $b/\pi = (1 - 2J_2)/2$ .

in der Exponentialfunktion zu bestimmen [65]. Dazu wird ein Tieftemperaturverhalten gemäß

$$\begin{aligned}\chi_0 &\approx \left(\frac{a_1}{T} + a_2 + a_3 T\right) \exp\left(\frac{b}{T} + c + dT\right) \\ &\approx \left(\frac{\alpha_1}{T} + \alpha_2 + \alpha_3 T\right) \exp\left(\frac{b}{T}\right)\end{aligned}$$

mit

$$\alpha_1 = a_1 \exp(c), \quad \alpha_2 = (a_1 d + a_2) \exp(c), \quad \alpha_3 = \left(\frac{1}{2} a_1 d^2 + a_2 d + a_3\right) \exp(c)$$

angenommen. Die numerischen Daten der Suszeptibilität im thermodynamischen Limes werden zwischen  $T_0$  und  $T_0 + T_{cut}$  an die Gleichung

$$T \ln(T\chi_0) \approx T \ln(\alpha_1 + \alpha_2 T + \alpha_3 T^2) + b \quad (5.17)$$

mit den offenen Parametern  $\alpha_1, \alpha_2, \alpha_3$  und  $b$  angepasst.  $T_0$  ist dabei wiederum die niedrigste Temperatur, bei der Lösungen gefunden wurden, beispielsweise  $T_0 = 0.161$  bei  $J_2 = 0$  und  $T_0 = 0.067$  bei  $J_2 = 0.35$ . Für  $T_{cut}$  wird 0.05 gewählt.

Für  $J_2 = 0$  ergeben sich aus dem Fit die Werte  $\alpha_1 = 0.3284$  und  $b/\pi = 0.5002$ . Insbesondere der Wert des Exponenten stimmt exzellent mit den analytischen Vorhersagen für die Greenfunktionsmethode aus [43, 150],  $b = \pi/2$ , überein. Auch für den Vorfaktor  $\alpha_1$  ergibt sich nur eine leichte Abweichung von 0.0016 vom vorhergesagten Ergebnis  $\alpha_1 = 1/3$ . Somit ist das

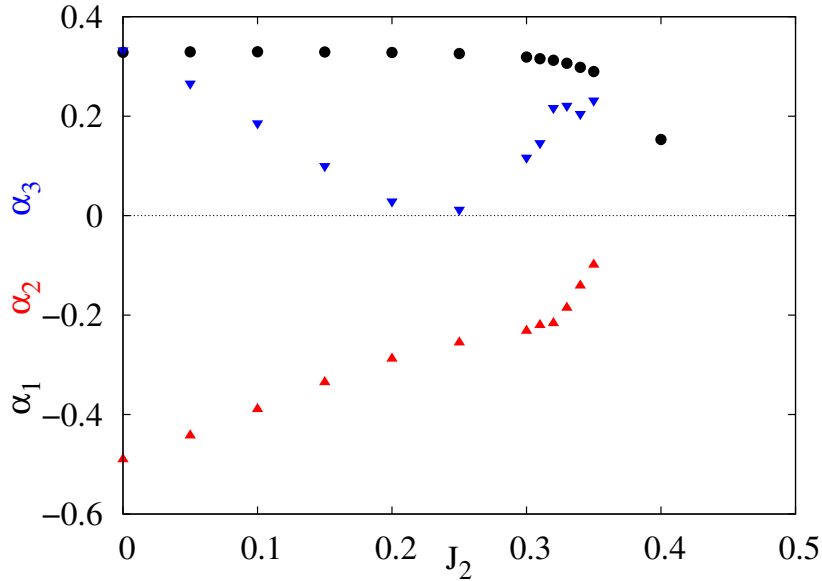


Abbildung 5.11: Ergebnisse für  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  und  $\alpha_3$  der Anpassung der numerischen Daten für  $\chi_0$  an Gleichung (5.17). Die Daten für  $J_2 = 0.4$  von  $\alpha_2$  und  $\alpha_3$  sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt.

gewählte Vorgehen geeignet, das Tieftemperaturverhalten zu analysieren und wird daher auch für  $J_2 > 0$  im zu untersuchenden Parameterbereich angewendet.

Die Ergebnisse der Anpassung für Datensätze zwischen  $J_2 = 0$  und  $J_2 = 0.4$  sind in Abbildung 5.10 dargestellt, der Inset zeigt die Ergebnisse für  $b/\pi$ . Der Exponent lässt sich exzellent durch die Gleichung

$$b = \frac{\pi}{2} (1 - 2J_2)$$

beschreiben.

Die Ergebnisse für  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  und  $\alpha_3$  werden in Abbildung 5.11 gezeigt. Für die Koeffizienten, insbesondere  $\alpha_2$  und  $\alpha_3$  lassen sich keine einfachen analytischen Ausdrücke finden. Zum einen liegt dies an der Extrapolation, da der Ansatz mit drei Termen als Vorfaktor eine Einschränkung darstellt. Zum anderen sind die Koeffizienten Funktionen der Koeffizienten  $a_{1,2,3}$ ,  $\exp(c)$  und  $d$ , die ihrerseits eine eigene Abhängigkeit von  $J_2$  aufweisen können.

Eine Abschätzung des Verlaufes zeigt, dass  $\alpha_1$  beim Übergangspunkt  $J_2^c$  verschwinden könnte, was analog zum eindimensionalen Fall einen Wechsel im Tieftemperaturverhalten zur Folge hat [65].

Es kann konstatiert werden, dass sich die Suszeptibilität der ferromagnetischen Phase im Tieftemperaturlimit im Rahmen der verwendeten Greenfunktionsmethode durch

$$\chi_0 = \left( \frac{\alpha_1}{T} + \alpha_2 + \alpha_3 T \right) \exp \left( \frac{\pi (1 - 2J_2)}{2T} \right) \quad (5.18)$$



mit den in Abbildung 5.11 dargestellten Koeffizienten beschreiben lässt.

Es ist zu bemerken, dass das Ergebnis für den Term im Exponenten in Übereinstimmung mit allgemeineren Prinzipien steht. Aus Rechnungen für das nichtlineare  $\sigma$ -Modell [149, 152] und im Rahmen der modifizierten Spinwellentheorie [16] wurde gefunden, dass die exponentielle Divergenz  $\chi_0 \propto e^{A/T}$  der Suszeptibilität des ferromagnetischen Quadratgitters bestimmt wird durch die Spin-Stiffness  $\rho_S$ , es gilt  $A = 4\pi\rho_S$ . Die Verwendung der Spin-Stiffness Gleichung (5.11) liefert ein Ergebnis mit der verallgemeinerten funktionalen Abhängigkeit in  $J_1$  und  $J_2$ , welches doppelt so groß ist wie das in Gleichung (5.18) bestimmte, aber in Übereinstimmung mit dem bereits beschriebenen Resultat der modifizierten Spinwellentheorie für  $J_2 = 0$  steht.

Eine mögliche Ursache hierfür könnte die Vernachlässigung von Korrelationsfunktionen sein, die zwei- und mehr Magnonen-Anregungen beschreiben, also der mean-field-Charakter der verwendeten Greenfunktionsmethode. Hier liegt auch die Ursache in den ebenfalls schon bei der Übersicht der Ergebnisse der verschiedenen Methoden für  $J_2 = 0$  erwähnten Abweichungen bei der Temperaturabhängigkeit des Vorfaktors. In [149] wird diskutiert, dass eine mean-field-Näherung nicht das korrekte Temperaturverhalten des Vorfaktors beschreiben kann.

Fazit:

Gezeigt wurde, dass die Suszeptibilität mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  im Temperaturverlauf schneller abklingt. Im Limes  $T \rightarrow 0$  signalisiert eine exponentielle Divergenz gemäß

$$\chi_0 = \frac{\alpha_1}{T} \exp\left(-\frac{\pi(J_1 + 2J_2)}{2T}\right)$$

den Übergang in den ferromagnetischen Grundzustand.

#### 5.4.4 Korrelationslänge

Die Korrelationslänge nach Gleichung (5.9) im thermodynamischen Limes für  $J_2 = 0.1$  und  $J_2 = 0.35$  sind in Abbildung 5.12 dargestellt. Daten für endliche Systeme sind nicht dargestellt, da  $\xi$  bei einer quadratischen Zelle nur über eine Länge  $\sqrt{N/2}$  sinnvoll definiert ist. Bei  $\xi = 30$  müsste das System bereits 1800 Gitterplätze besitzen.

Eine weitere Definition der Korrelationslänge ist über den exponentiellen Abfall der Korrelationen nach Gleichung (5.22) möglich. Hierzu werden bei festen Temperaturen die Ergebnisse der Korrelationsfunktion  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_{\mathbf{R}} \rangle$  für  $|\mathbf{R}| \geq 10$  ( $|\mathbf{R}| \geq 20$  bei  $T = 0.15$  und  $J_2 = 0.1$ ) an die Gleichung angepasst, wobei der Vorfaktor und der Exponent offene Parameter sind. Die verwendeten Daten und die extrapolierten Kurven sind in Abbildung 5.13 dargestellt. Die auf diesem Wege ermittelten Werte für  $\xi$  sind als Datenpunkte in Abbildung (5.12) eingetragen.

Die so ermittelte Korrelationslänge stimmt gut mit der nach Gleichung (5.9) berechneten über-

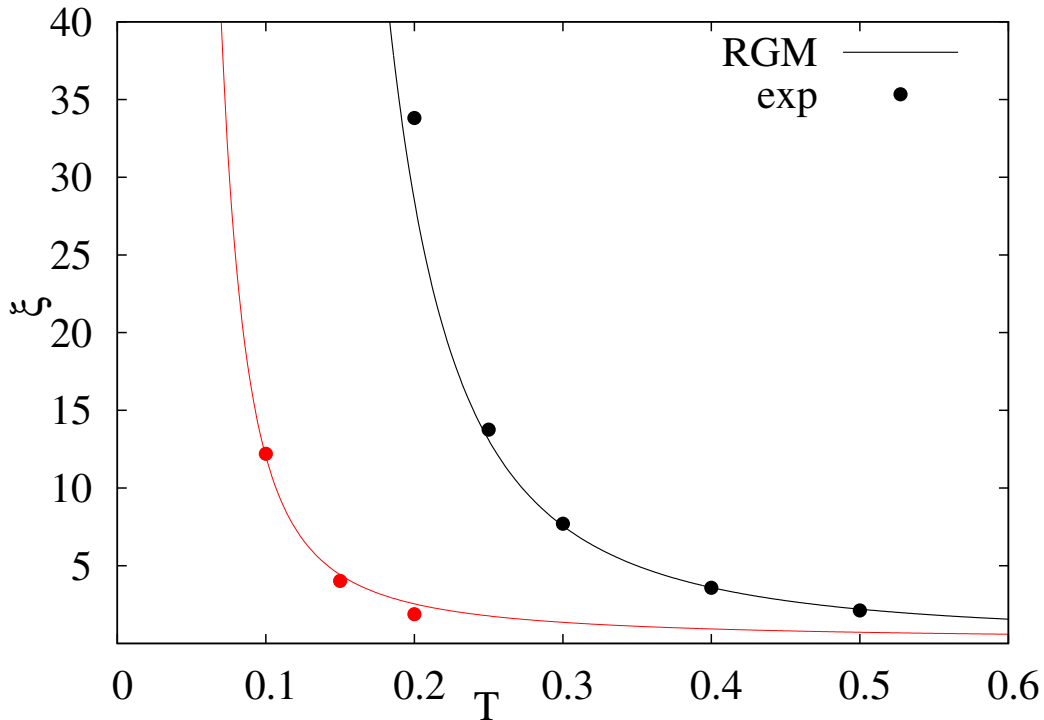


Abbildung 5.12: Korrelationslänge  $\xi$  des thermodynamischen Limes, berechnet mit der Greenfunktionsmethode, für  $J_2 = 0.1$  (schwarz) und  $J_2 = 0.35$  (rot). Die Punkte zeigen die aus dem exponentiellen Abfall der Korrelationsfunktionen ermittelte Korrelationslänge, vgl. hierzu Abbildung 5.13.

ein. Weiterhin fällt auf, dass im Rahmen der Greenfunktionsmethode insbesondere bei schwacher Frustration und niedrigen Temperaturen die strenge Forderung  $|\mathbf{R}| \gg \xi$  für die Gültigkeit des Ornstein-Zernike-Verhaltens etwas weicher formuliert werden kann, da auch im Bereich  $|\mathbf{R}| \approx \xi$  deutlich das exponentielle Abklingen sichtbar ist. Im Parameterbereich nahe des Phasenüberganges und hoher Temperaturen sorgt  $J_2$  bei geringen Gitterabständen für deutliche Abweichungen vom angenommenen Verhalten, die Werte für die Korrelationsfunktionen streuen und werden zum Teil negativ. Bei großen Gitterabständen werden sie zu klein, um ein exponentielles Abklingverhalten reproduzieren zu können, wie in Abbildung 5.13 am Beispiel  $J_2 = 0.25$  und  $T = 0.8$  zu erkennen ist.

Sowohl die extrapolierten Daten als auch die aus Definition (5.9) zeigen, dass mit wachsender Kopplungskonstante  $J_2$  die Korrelationslänge wie die Suszeptibilität im Temperaturverlauf schneller abklingt. Beide Varianten zeigen die charakteristische Divergenz im Limes  $T \rightarrow 0$  auf, die einen Übergang zu einer geordneten Phase indiziert, hier die ferromagnetisch geordnete. Dieses kritische Verhalten soll im Folgenden auf den Einfluss von  $J_2$  untersucht werden. Für den reinen Ferromagneten auf dem Quadratgitter,  $J_2 = 0$ , wurden bereits mit verschiedenen Methoden analytische Ausdrücke gefunden. So ergibt sich mit der modifizierten Spinwellentheorie [16]

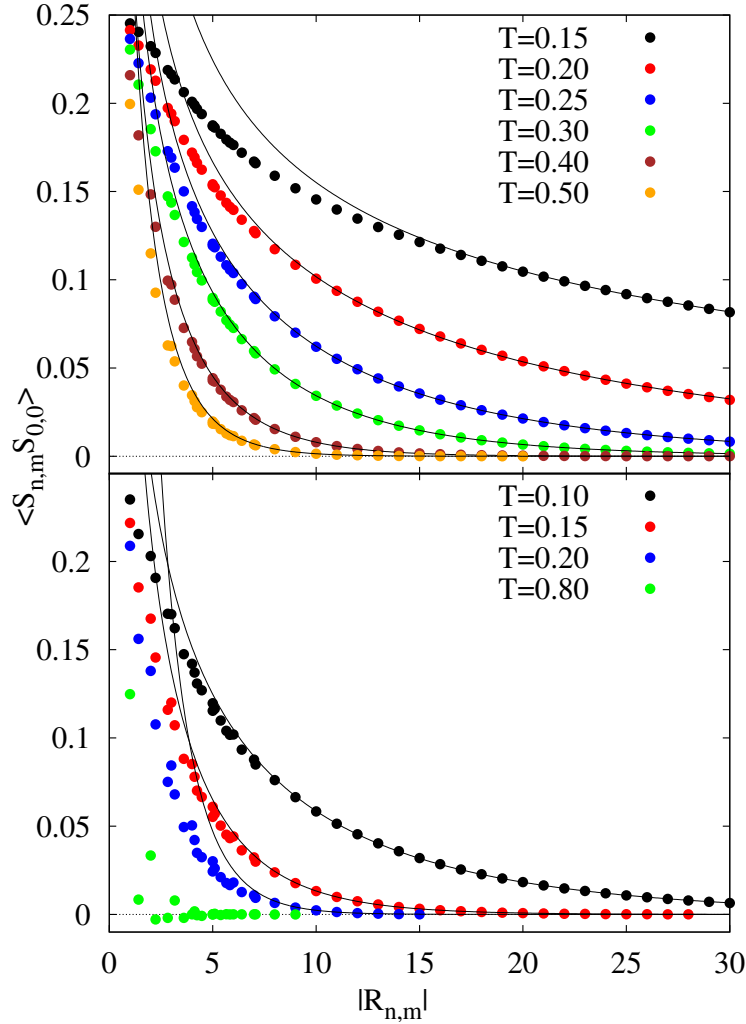


Abbildung 5.13: Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_0 \mathbf{S}_R \rangle$ , dargestellt über  $|\mathbf{R}|$ , für  $J_2 = 0.1$  (oben) und  $J_2 = 0.35$  (unten) bei verschiedenen festen Temperaturen (Punkte). Die Linien zeigen die Ergebnisse des exponentiellen Fits, siehe Text.

mit ferromagnetischem  $J_1 < 0$

$$\xi \approx \left( \frac{a}{T} \right)^{1/2} \exp \left( -\frac{2\pi J_1 b}{T} \right) \quad \text{mit } a = -J_1 S, \quad b = S^2.$$

Mit der RGM ergibt sich ein fast identischer Ausdruck, wobei der Exponent  $b = S^2/2$  nur halb so groß ist [43]. Renormierungsansätze ergeben bei one-loop-Berechnungen in Kombination mit der modifizierten Spinwellentheorie  $a = -J_1 S \kappa(S)/4$  und  $b = S^2 \kappa(S)$  mit einem vom Spin  $S$  abhängigen Renormierungsfaktor  $\kappa(S)$  [148]. Bei two-loop-Theorien ergibt sich mit  $a = -0.067 T^2 / J_1 S^3$  und  $b = S^2$  [149] für den Vorfaktor eine andere funktionale Abhängigkeit von  $T$ . Eine Monte-Carlo-Simulation für  $S = 1/2$  liefert einen Vorfaktor  $a = 0.13$  und einen

Exponenten  $b = 0.127(3)$  [153].

Im Folgenden soll eine mögliche Abhängigkeit insbesondere des Exponenten der Korrelationslänge von  $J_2$  untersucht werden. Dazu wird ein Tieftemperaturverhalten in Analogie zur Suszeptibilität  $\chi_0$  gemäß

$$\begin{aligned}\xi &\approx \sqrt{\left(\frac{b_1}{T} + b_2 + b_3 T\right)} \exp\left(\frac{\beta}{T} + \gamma + \delta T\right) \\ &\approx \left(\frac{\beta_1}{\sqrt{T}} + \beta_2 \sqrt{T} + \beta_3 T^{3/2}\right) \exp\left(\frac{\beta}{T}\right)\end{aligned}$$

mit

$$\beta_1 = \sqrt{b_1} \exp(\gamma), \quad \beta_2 = \left(\sqrt{b_1} \delta + \frac{1}{2} \frac{b_2}{\sqrt{b_1}}\right) \exp(\gamma)$$

angenommen.  $\beta_3$  wird nicht näher definiert, da die relevanten Koeffizienten über den verwendeten Ansatz hinausgehen.

Die numerischen Daten der Korrelationslänge werden im Bereich  $T_0$  bis  $T_0 + T_{cut}$  an die Gleichung

$$T \ln(\xi \sqrt{T}) = T \ln(\beta_1 + \beta_2 T + \beta_3 T^2) + b \quad (5.19)$$

angepasst. Wie in [65] wird in Analogie zu  $\chi_0$  der Wert von  $T_{cut}$  zu  $T_{cut} = 0.05$  gewählt. Auf diese Weise werden die analytischen Ergebnisse für  $J_2 = 0$  am besten reproduziert. Auch hier ist  $T_0$  die niedrigste Temperatur, bei der das Gleichungssystem numerisch gelöst werden kann.

Für  $J_2 = 0$  ergibt das beschriebene Vorgehen  $\beta/\pi = 0.2499$  und  $\beta_1 = 0.7098$  eine sehr gute Übereinstimmung mit den analytischen Ergebnissen  $\beta/\pi = 0.25$  und  $\beta_1 = \sqrt{0.5} = 0.7071$  aus [43]. Somit ist das Verfahren geeignet, das Tieftemperaturverhalten zu untersuchen. Es wird im Folgenden auch auf Werte  $J_2 > 0$  im zu untersuchenden Parameterbereich angewendet.

Das Verhalten von  $T \ln(\xi \sqrt{T})$  über  $T$  von  $J_2 = 0$  bis  $J_2 = 0.4$  ist in Abbildung 5.14 dargestellt. Ebenfalls gezeigt sind die Ergebnisse des Exponenten  $\beta/\pi$  über  $J_2$ , die sich exzellent durch

$$\beta = \frac{\pi}{4} (1 - 2J_2)$$

beschreiben lassen.

Die resultierenden Werte für  $\beta_1$ ,  $\beta_2$  und  $\beta_3$  sind in Abbildung 5.15 dargestellt. Wie bei der Suszeptibilität lassen sich aufgrund der Einschränkung des Ansatzes und der komplizierten Abhängigkeit insbesondere der  $\beta_{2,3}$  von den  $b_i$ ,  $\gamma$  und  $\delta$  keine offensichtlichen einfachen analytischen Ausdrücke finden.

Wiederum kann abgeschätzt werden, dass der Koeffizient  $\beta_1$  bei  $J_2 = J_2^c$  verschwinden könnte und so beim Phasenübergangspunkt ein Wechsel der Temperaturabhängigkeit im Vorfaktor der

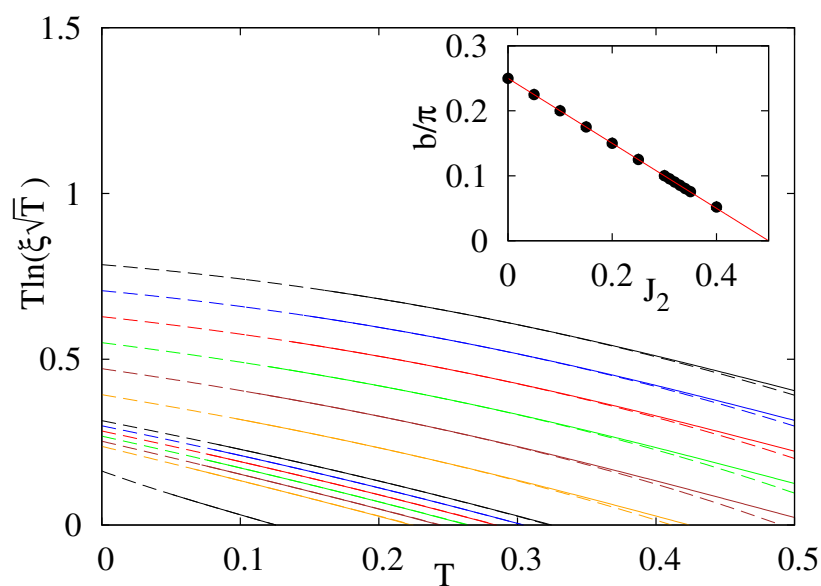


Abbildung 5.14: Numerische Daten im thermodynamischen Limes für  $T \ln(\xi\sqrt{T})$  in Abhängigkeit von  $T$  für  $J_2 = 0.0, 0.05, 0.1, 0.15, 0.20, 0.25, 0.30, 0.31, 0.32, 0.33, 0.34, 0.35$  und  $0.40$  (durchgezogene Linien, von oben nach unten) sowie die Ergebnisse der Anpassung an das angenommene Tieftemperaturverhalten Gleichung (5.19) (gestrichelte Linie). Der Inset zeigt die Ergebnisse für den Exponenten  $b$  und die Kurve  $b/\pi = (1 - 2J_2)/4$ .

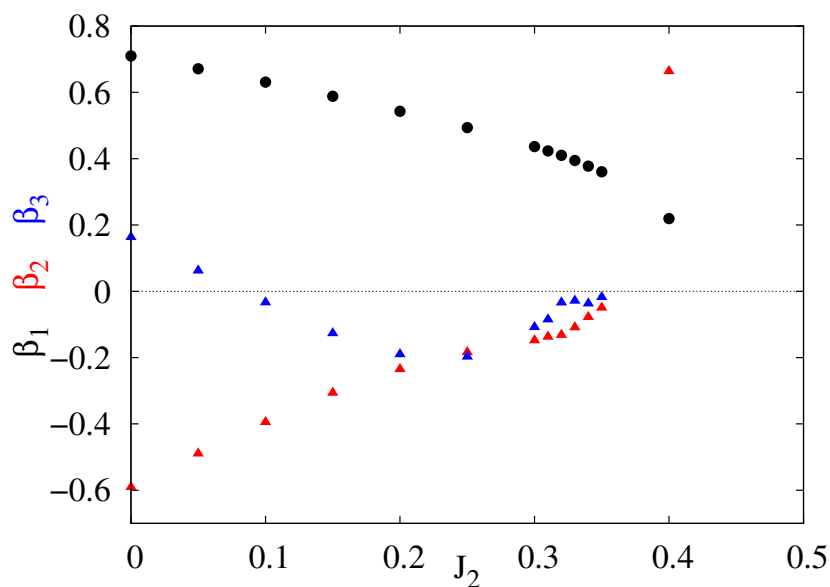


Abbildung 5.15: Ergebnisse für  $\beta_1, \beta_2$  und  $\beta_3$  der Anpassung der numerischen Daten für  $\xi$  an Gleichung (5.19). Der Datenpunkt für  $J_2 = 0.4$  von  $\beta_3$  ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt.

Exponentialfunktion auftreten kann.

Somit lässt sich das Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge beschreiben durch

$$\xi = \left( \frac{\beta_1}{\sqrt{T}} + \beta_2\sqrt{T} + \beta_3T^{3/2} \right) \exp \left( \frac{\pi(1-2J_2)}{4T} \right)$$

mit den in Abbildung 5.15 dargestellten Parametern. Es zeigt sich, dass die Relation  $\chi_0 \propto \xi^2$  [16, 149] mit einem temperaturabhängigen Proportionalitätsfaktor erfüllt ist.

Auch hier ist anzumerken, dass das Ergebnis für den Exponenten in Übereinstimmung mit allgemeineren Prinzipien steht. So wurde für das antiferromagnetische Quadratgitter aus Untersuchungen des nichtlinearen  $\sigma$ -Modells [12, 154] und aus einer mean-field-Näherung der Schwinger-Boson-Formulierung des Heisenberg-Modells [155] sowie für das ferromagnetische Analogon ebenfalls aus dem nichtlinearen  $\sigma$ -Modell [149, 152] übereinstimmend gefunden, dass auch hier die exponentielle Divergenz bestimmt wird durch die Spin-Stiffness  $\rho_S$ . Es gilt  $\xi \propto e^{2\pi\rho_S/T}$ . Experimentelle Daten für  $\text{Sr}_2\text{CuO}_2\text{Cl}_2$  [156] und  $\text{La}_2\text{CuO}_4$  [12] zeigen in etwa diesen Verlauf. Wie bei der Suszeptibilität ist die Erweiterung dieser Gleichung für das System mit einem Frustrationsparameter  $J_2/|J_1| \leq 0.4$  möglich, der Exponent ist halb so groß wie mittels Renormierungsgruppentheorie berechnet. Wie unter anderem bei der modifizierten Spinwellentheorie [16] führt der mean-field-Charakter der Greenfunktionsmethode zu einer inkorrekten Temperaturabhängigkeit des Vorfaktors [149].

Fazit:

Als Fazit kann gezogen werden, dass die Korrelationen mit wachsender Temperatur zu klein werden, um ein exponentielles Abklingen über dem Abstand nachzuweisen. Die Korrelationslänge fällt mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  im Temperaturverlauf schneller ab. Im Limes  $T \rightarrow 0$  divergiert sie exponentiell gemäß

$$\xi = \frac{\beta_1}{\sqrt{T}} \exp \left( -\frac{\pi(J_1 + 2J_2)}{4T} \right)$$

und deutet damit den Übergang in den ferromagnetischen Grundzustand an.

## 5.5 Thermodynamik des $J_1$ - $J_2$ -Modells bei kollinearem Grundzustand

Im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes wird  $J_1 = -1$  gesetzt. Zur Lösung des Gleichungssystems wird wie bei  $J_2 < J_2^c$  das Broydn-Verfahren mit einer Genauigkeit von  $10^{-8}$  [107] verwendet. Auch die numerische Integration der Momente erfolgt analog per Gauss-Legendre-Integration mit  $300 \times 300$  Stützstellen. Der Temperaturbereich wird wiederum von  $T = 5$  abfal-

lend mit der Schrittweite  $\Delta T = 0.001$  gerastert.

Die Darstellung erfolgt hauptsächlich mit der auf  $J_C = \sqrt{J_1^2 + J_2^2}$  normierten Temperatur  $T/J_C$ . Die gewählte Skalierung soll eine bessere Vergleichbarkeit mit experimentellen Daten gewährleisten, da diese häufig ebenfalls in dieser Skalierung dargestellt werden [139, 140]. So sind theoretische und experimentelle Daten nur durch den Faktor  $J_1$  ineinander überführbar, vgl. Abbildung 5.20.

Da in diesem Abschnitt die Ergebnisse der Greenfunktionsmethode nur im thermodynamischen Limes betrachtet werden und aufgrund der im Abschnitt 5.4 diskutierten starken finite-size-Effekte [124] werden die Ergebnisse nur mit denen der Hochtemperaturentwicklung verglichen.

### 5.5.1 Korrelationsfunktionen

Die Korrelationsfunktionen  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,0} \rangle$  und  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,1} \rangle$  für die in Abschnitt 5.2 beschriebenen Varianten (a) und (b), bei denen zwei Vertexparameter bei endlichen Temperaturen unterschieden werden, sind in Abbildung 5.16 dargestellt.

Bei hohen Temperaturen  $T/J_C \gtrsim 4$  fallen die Kurven beider Vorgehensweisen zusammen. Im Tieftemperaturverhalten gibt es für  $J_2 \lesssim 1$  Abweichungen. Anhand der in Abbildung 5.16 eingetragenen Ergebnisse für die Korrelationsfunktionen im Grundzustand wird deutlich, dass in diesem Parameterbereich mit der Variante (a) der Limes  $T \rightarrow 0$  nicht korrekt beschrieben wird. Der exponentielle Ansatz aus Variante (b) erreicht hier das in Abschnitt 5.3 berechnete Grundzustandsergebnis.

Zum Vergleich sind auch die Ergebnisse der HTE in der [3,3]-Padé-Approximation dargestellt. Die Ergebnisse fallen mit denen der Greenfunktionsmethode bei Temperaturen zusammen, die ebenfalls von der Größenordnung  $T/J_C \approx 4$  sind.

Alle dargestellten Daten sagen übereinstimmend aus, dass mit wachsendem Frustrationsparameter die nächste-Nachbar-Korrelationsfunktion kleiner wird. Dieses ist zu erwarten, da sie im Grenzfall  $J_2 \rightarrow \infty$  verschwindet. Außerdem zeigen alle Varianten für  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,0} \rangle$  ein Maximum, dessen Position und Höhe von  $J_2$  abhängig ist. Dieses verschiebt sich mit wachsendem  $J_2$  zu höheren Temperaturen  $T/J_C$  und wird kleiner. Dabei ist die Position bei beiden Varianten der Greenfunktionsmethode nahezu identisch, das Standardvorgehen (a) liefert leicht kleinere Maxima. Die HTE sagt insbesondere für  $J_2 \lesssim 1$  eine deutlich geringere Höhe voraus, die Position ist vergleichbar mit der aus den RGM-Resultaten. Die Temperaturen, bei der die Maxima auftreten, sind jedoch niedrig, so dass die Gültigkeit der HTE bereits nicht mehr gegeben sein dürfte.

Auch bei der übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktion  $\langle \mathbf{S}_{1,1} \mathbf{S}_{0,0} \rangle$  tritt bei  $J_2 \lesssim 1$  der Fall auf, dass die Standardvariante (a) den korrekten Grundzustandswert nicht reproduziert. Beide Varianten fallen bei niedrigeren Temperaturen zusammen als bei  $\langle \mathbf{S}_{1,0} \mathbf{S}_{0,0} \rangle$ , etwa in der Größenordnung  $T/J_C \approx 2$ . Der quantitative Unterschied des Kurvenverlaufs der zwei Varianten der Greenfunktionsmethode ist aber gering.

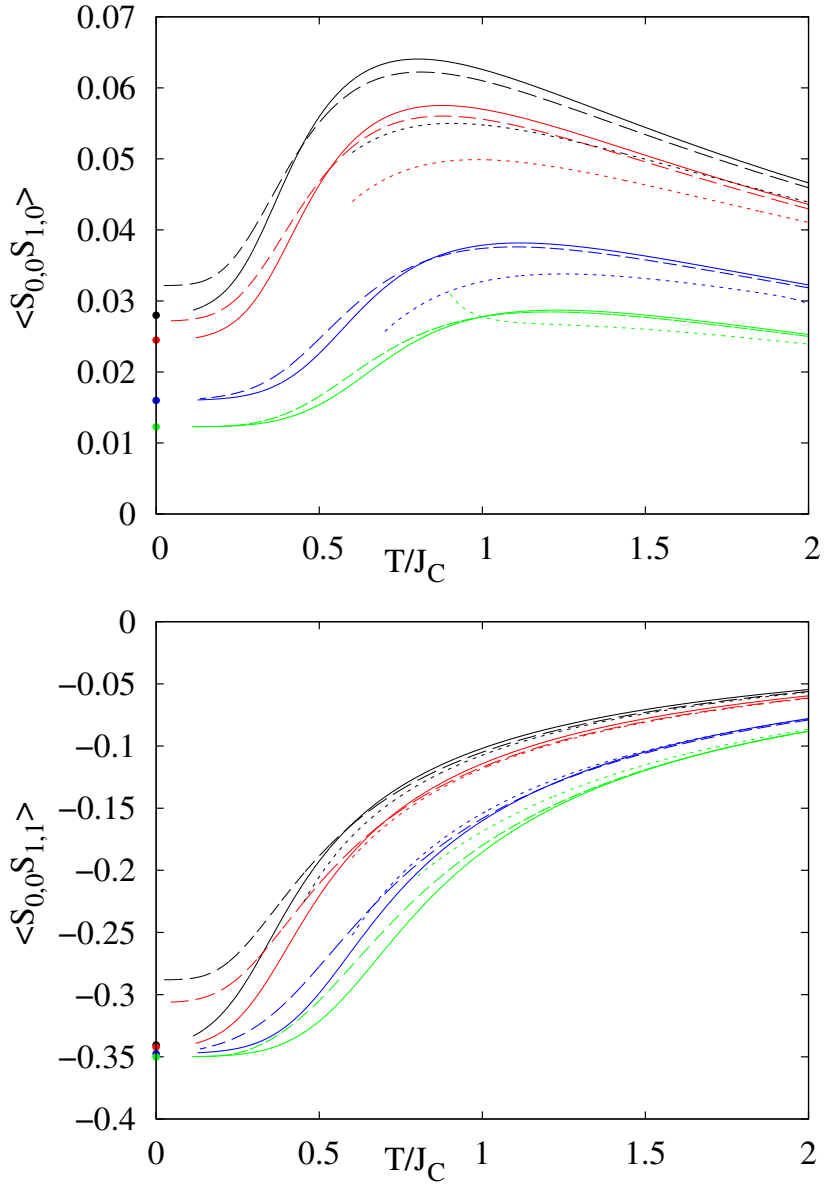


Abbildung 5.16: Nächste (oben) und übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktionen (unten) für  $J_2 = 0.9$  (schwarz), 1.0 (rot), 1.5 (blau) und 2.0 (grün) berechnet mit der Greenfunktionsmethode unter Verwendung von Gleichung (5.16) (durchgezogen) und Gleichung (5.15) (langgestrichelt), dargestellt über  $T/J_C$ . Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Hochtemperaturentwicklung sechster Ordnung in der [3,3]-Padé-Approximation (gepunktet) gezeigt [23].

Die Kurven der HTE stimmen etwa bei derselben Größenordnung der Temperatur,  $T/J_C \gtrsim 2$ , mit denen der Greenfunktionsmethode überein. Die im Vergleich mit der nächsten-Nachbar-Korrelationsfunktion geringen Abweichungen bei  $T/J_C \gtrsim 1$  sind der Tatsache geschuldet, dass dieser Korrelationsfunktion ein eigener Vertexparameter zugeordnet ist.



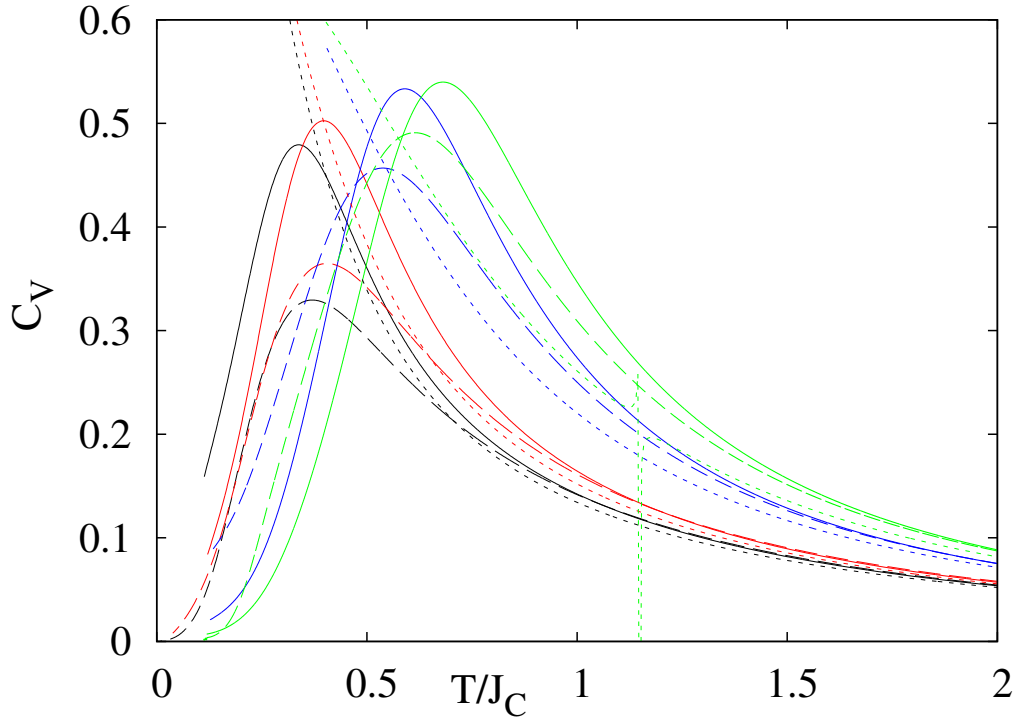


Abbildung 5.17: Spezifische Wärme des  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitters aus der Greenfunktionsmethode unter Verwendung der Standardvariante Gleichung (5.15) (langgestrichelt) und des Exponentialansatzes Gleichung (5.16) (durchgezogen) für  $J_2 = 0.9$  (schwarz), 1.0 (rot), 1.5 (blau) und 2.0 (grün), dargestellt über  $T/J_C$ . Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Hochtemperaturentwicklung zehnter Ordnung in der [5,5]-Padé-Approximation (gepunktet) gezeigt [23, 24].

Allen betrachteten Varianten ist gemein, dass die übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktion im Temperaturverlauf mit wachsendem  $J_2$  langsamer abklingt.

### 5.5.2 Spezifische Wärme

Auch bei der spezifischen Wärme, dargestellt in Abbildung 5.17, stimmen die Ergebnisse des Vorgehens bei (a) mit denen bei (b) qualitativ überein. Da die übernächste-Nachbar-Korrelationsfunktion  $\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{1,1} \rangle$  den dominierenden Beitrag zur Energie und damit zur spezifischen Wärme liefert, fallen wie im vorherigen Abschnitt gezeigt die zwei Varianten der Greenfunktionsmethode und die ebenfalls dargestellten Resultate der HTE bei Temperaturen um  $T/J_C \approx 2$  zusammen. Beide Varianten der Greenfunktionsmethode zeigen das aufgrund des beschränkten Spektrums erwartete Maximum, welches mit wachsender übernächster-Nachbar-Kopplung steigt und sich zu höheren Temperaturen  $T/J_C$  verschiebt. Der exponentielle Ansatz sagt ein deutlich höheres

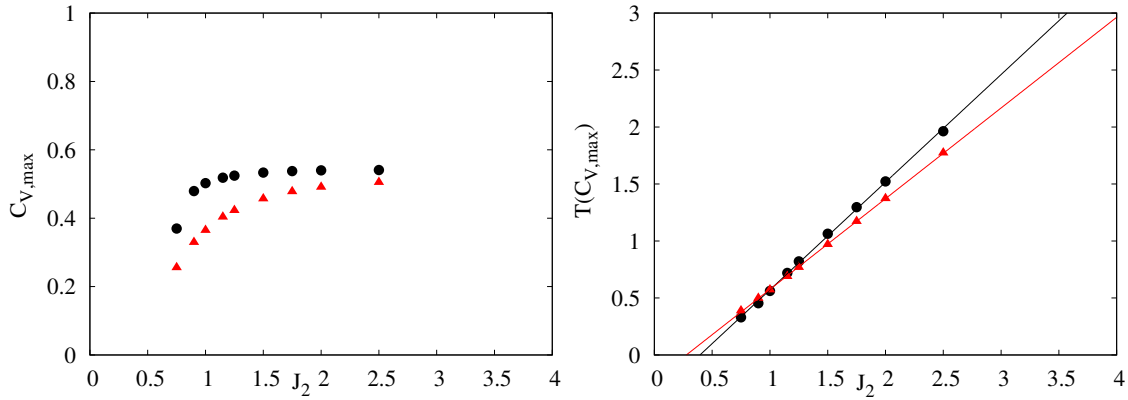


Abbildung 5.18: Höhe und die Position des Maximums der spezifischen Wärme des  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitters aus der Greenfunktionsmethode, berechnet mit dem exponentiellen Ansatz (schwarz) und der Standardvariante (rot). Dargestellt sind außerdem die Ergebnisse des Fits von Gleichung (5.20).

Maximum voraus als bei der Standardvariante, bei  $J_2 > 1.5$  tritt es auch bei einer etwas höheren Temperatur auf.

Die [5,5]-Padé-Approximation der HTE zehnter Ordnung kann das Maximum bei keinem betrachteten Wert von  $J_2$  reproduzieren. Die Temperatur, bei der es auftritt, ist hierfür zu niedrig. Die bei  $T \approx 1.1$  auftretende Spitze bei  $J_2 = 2$  ist ein Artefakt der Padé-Approximation und hat keine physikalische Bedeutung.

Das Maximum der spezifischen Wärme ist eine experimentell direkt zu bestimmende Größe. Informationen über Höhe und die Position können Hinweise liefern, die bei der Bestimmung des Verhältnisses  $J_2/|J_1|$  helfen. Daher sind diese Werte in Abbildung 5.18 dargestellt. Zur genauen Festlegung des Frustrationsverhältnisses ist dieses Vorgehen jedoch nicht gut geeignet, da nach der Messung der spezifischen Wärme, wie in der Kapiteleinleitung beschrieben, zunächst der phononische Beitrag herausgerechnet werden muss, was eine zusätzliche Fehlerquelle einschließt. Für die Höhe der spezifischen Wärme lässt sich keine offensichtliche Abhängigkeit von  $J_2$  finden. Die Abhängigkeit der Position  $T(C_{V,max})$  von  $J_2$  kann durch die lineare Funktion

$$T(C_{V,max}) = a(J_2 - J_2^c) \quad (5.20)$$

beschrieben werden. Der lineare Fit liefert  $a = 0.945117$  und  $J_2^c = 0.396328$  für den exponentiellen Ansatz sowie  $a = 0.795056$  und  $J_2^c = 0.27473$  für den Standardansatz für das Temperaturverhalten der Vertexparameter.

Der exponentielle Ansatz liefert einen realistischen Wert für den Phasenübergang. Es muss jedoch beachtet werden, dass bei der verwendeten Greenfunktionsmethode zweiter Ordnung keine Korrelationsfunktionen berücksichtigt werden, die Multimagnonen-Anregungen beschreiben. Diese sind, wie in der Einleitung beschrieben, möglicherweise relevant nahe des Übergangspunktes. Somit müssen die Ergebnisse der RGM nahe  $J_2^c$  mit anderen Methoden überprüft werden.

Fazit:

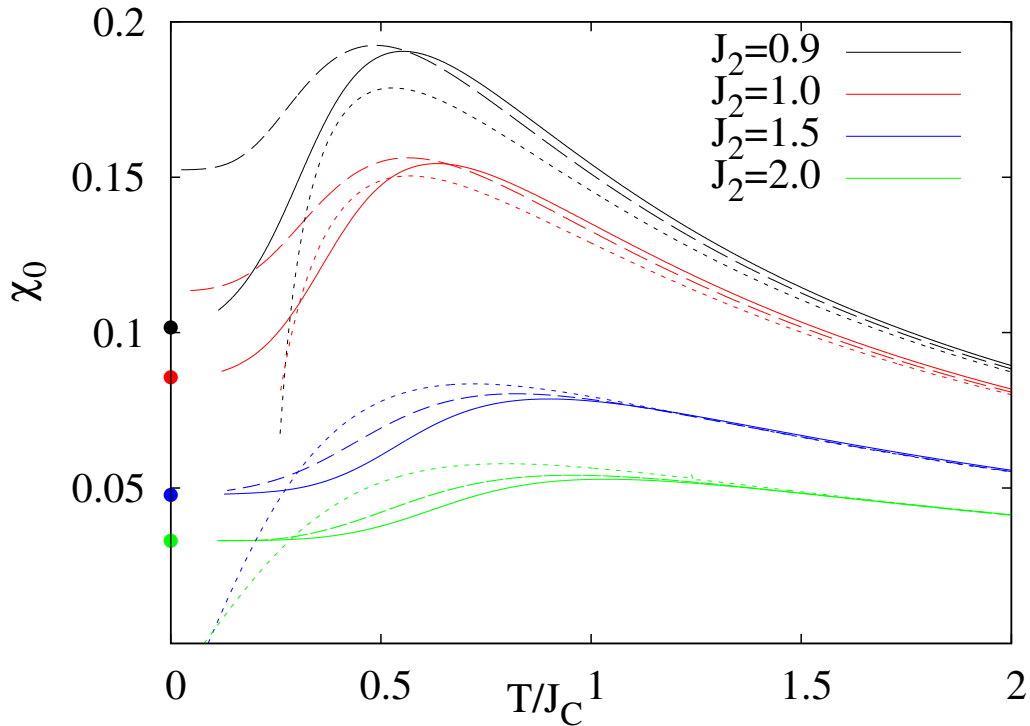


Abbildung 5.19: Suszeptibilität des  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitters, berechnet mit der Greenfunktionsmethode unter Verwendung der Standardvariante Gleichung (5.16) (durchgezogen) und des Exponentialansatzes Gleichung (5.15) (langgestrichelt) für  $J_2 = 0.9$  (schwarz),  $1.0$  (rot),  $1.5$  (blau) und  $2.0$  (grün), dargestellt über  $T/J_C$ . Zum Vergleich sind die Ergebnisse der Hochtemperaturentwicklung zehnter Ordnung in der  $[5,5]$ -Padé-Approximation (gepunktet) gezeigt [23, 24]. Die Punkte zeigen die Grundzustandsergebnisse für die den Farben entsprechenden Werte von  $J_2$ .

Es konnte gezeigt werden, dass die spezifische Wärme ein einzelnes, breites Maximum besitzt. Dieses steigt mit wachsendem  $J_2$  bis zu einem Wert  $J_2/|J_1| \approx 2$  und bleibt dann nahezu konstant. Die Position  $T(C_{V,max})$  verschiebt sich linear in  $J_2/|J_1|$  zu höheren Temperaturen.

### 5.5.3 Suszeptibilität

In Abbildung 5.19 ist die Suszeptibilität  $\chi_0$  für  $J_2 = 0.9, 1.0, 1.5$  und  $2.0$  dargestellt. Bei beiden verwendeten Varianten der RGM besitzt sie einen endlichen Wert bei  $T = 0$ , steigt dann bis zu einem Maximum an und verschwindet bei  $T \rightarrow \infty$ . Wie bei den Korrelationsfunktionen tritt hier der Fall auf, dass bei  $J_2 < 1$  die Standardvariante das erwartete Grundzustandsergebnis nicht reproduziert. Das Maximum der Variante (b) ist auf derselben Höhe wie bei der Standardvariante (a), die Position ist bei höheren Temperaturen  $T/J_C$ .

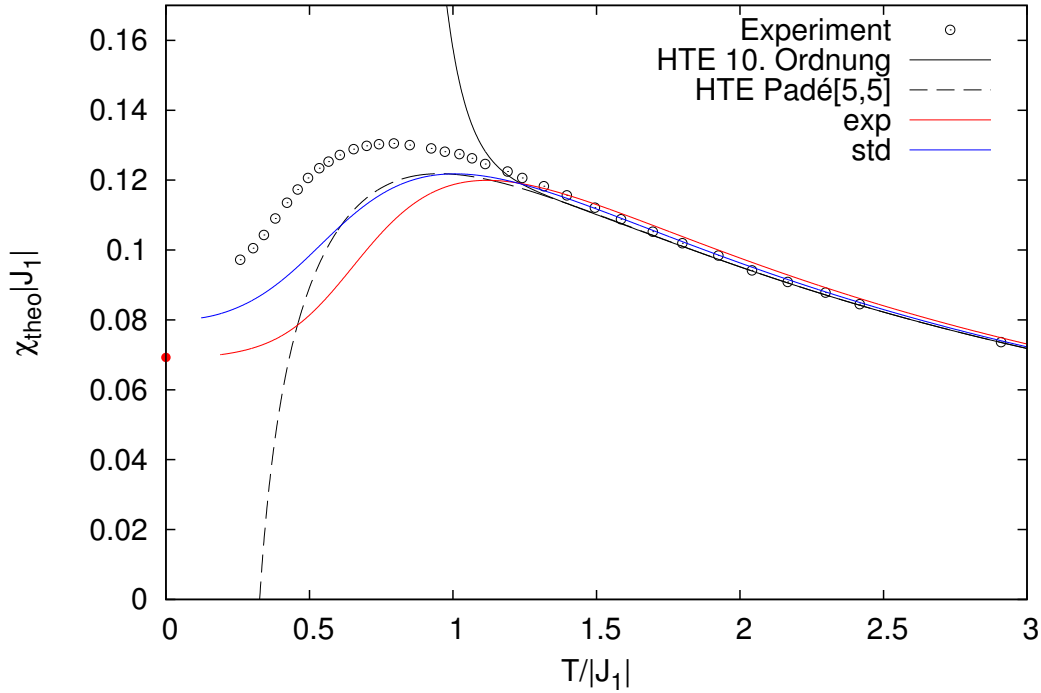


Abbildung 5.20: Vergleich der experimentellen Messung an  $SrZnVO(PO_4)_2$  von  $\chi|J_1|$  über  $T/|J_1|$  (Symbole, [139]), umgerechnet auf die theoretischen Ergebnisse nach Gleichung (5.1), mit den Ergebnissen der Greenfunktionsmethode mit dem Ansatz (a) (blau), dem Ansatz (b) (rot) sowie der Hochtemperaturentwicklung zehnter Ordnung (durchgezogene Linie) und die [5,5]-Padé-Approximation dieser Daten (gestrichelte Linie) [23, 24, 28].

Ebenfalls dargestellt ist die [5-5]-Padé-Approximation der HTE zehnter Ordnung, die ebenfalls ein Maximum aufweist. Dieses ist niedriger und tritt bei tieferen Temperaturen auf als bei den Kurven der RGM. Bei  $J_2 > 1.5$  fallen alle drei Kurven bereits bei Temperaturen der Größenordnung  $T/J_C \approx 1.5$ , bei kleineren  $J_2$  mit  $T/J_C \approx 4$  wesentlich später. Jedoch muss wiederum beachtet werden, dass der Gültigkeitsbereich der HTE durch die niedrigen Temperaturen unterschritten sein kann.

Die Suszeptibilität ist eine wichtige Größe, weil sie experimentell einfach zugänglich ist. Da sie eine rein magnetische Größe ist, die Phononen im Gegensatz zur spezifischen Wärme also nur einen vernachlässigbar winzigen Beitrag liefern, können die Messwerte direkt mit den theoretischen Vorhersagen verglichen werden. Ein Vergleich zwischen experimentellen Ergebnissen und theoretischen Rechnungen ist exemplarisch für das Material  $SrZnVO(PO_4)_2$  mit  $J_1 = -7.53$  und  $J_2 = 8.63$  in Abbildung 5.20 gezeigt.

Bei Temperaturen  $T/J_C > 1.5$  reproduzieren die beiden Datensätze der RGM und die [5,5]-Padé-Approximation der HTE die experimentellen Resultate. Für kleinere Temperaturen sind die theoretischen Ergebnisse etwas niedriger als die experimentellen. Beim weiteren Vergleich

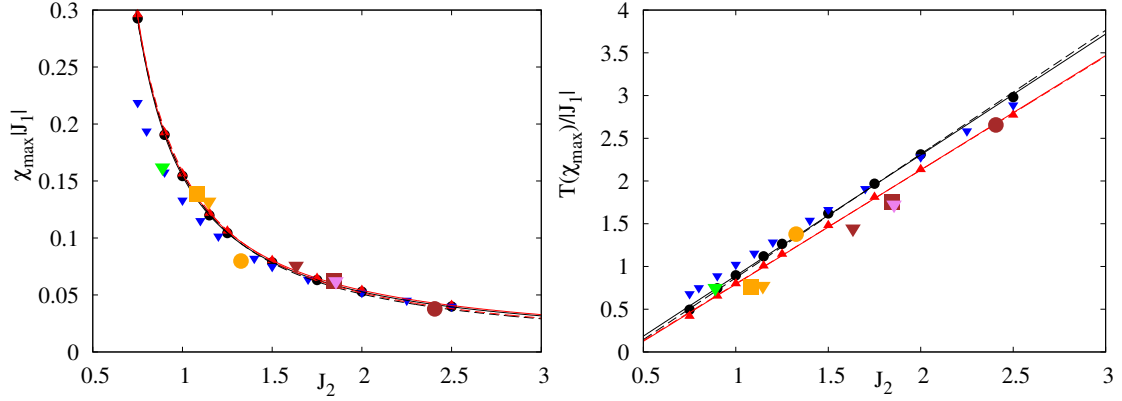


Abbildung 5.21: Höhe und Position des Maximums der Suszeptibilität des  $J_1$ - $J_2$ -Quadratgitters aus der Greenfunktionsmethode, berechnet mit dem exponentiellen Ansatz (schwarz) und der Standardvariante (rot). Außerdem dargestellt sind die Ergebnisse des Fits von Gleichung (5.21) (durchgezogene Linie) sowie die Ergebnisse mit der Festlegung  $J_2 = 0.4$  (gestrichelte Linie). Ebenfalls gezeigt sind die Daten der exakten Diagonalisierung für  $N = 16$  (blaue Dreiecke) und experimentelle Daten für  $BaCdVO(PO_4)_2$  (grün; [140]),  $Pb_2VO(PO_4)_2$  (braun; [136] Kreis, [137] Quadrat, [138] Dreieck),  $SrZnVO(PO_4)_2$  (orange; [136] Kreis, [137] Quadrat, [139] Dreieck)  $BaZnVO(PO_4)_2$  (violett; [137]),  $PbZnVO(PO_4)_2$  (gelb; [134]) und  $Na_{1,5}VOPO_4F_{0.5}$  (magenta; [129])

zeigt sich, dass der Standardansatz (a) ein Maximum ergibt, welches näher an den experimentellen Daten liegt als der exponentielle Ansatz (b). Die Höhe und Position des Maximums aus der Padé-Approximation entsprechen etwa denen des Standardansatzes.

Eine Ursache der Abweichung könnte sein, dass die Bestimmung der Kopplungskonstanten aus experimentellen Daten nur näherungsweise möglich ist. So sind in verschiedenen Arbeiten unterschiedliche Kopplungskonstanten für das selbe Material bestimmt worden, vgl. Tabelle 5.3.

Position und Höhe des Maximums sind Hilfsmittel, um das Verhältnis  $J_2/|J_1|$  aus experimentellen Resultaten zu ermitteln. Für verschiedene Frustrationsverhältnisse sind diese Daten in Abbildung (5.21) dargestellt. Wie schon in [63] gezeigt, kann die Abhängigkeit dieser Größen von  $J_2$  in der Form

$$\chi_{max} = a(J_2 - J_2^c)^\alpha \quad T(\chi_{max}) = b(J_2 - J_2^c) \quad (5.21)$$

beschrieben werden. Für den exponentiellen Ansatz liefert der Fit

$$\chi_{max} = 0.0817(J_2 - 0.465)^{-1.018} \quad T(\chi_{max}) = 1.414(J_2 - 0.369) ,$$

für den Standardansatz folgt

$$\chi_{max} = 0.0826(J_2 - 0.472)^{-0.997} \quad T(\chi_{max}) = 1.337(J_2 - 0.407) ,$$

Beide Fits ergeben für  $\chi_{max}$  und  $T(\chi_{max})$  ein unterschiedliches  $J_2^c$ . Diese Diskrepanz ist möglicherweise auf die Approximation des funktionalen Zusammenhangs durch die Ansätze zurückzuführen. In [63] wurde deshalb  $J_2^c = 0.4$  festgelegt. Dies liefert

$$\chi_{max} = 0.0871(J_2 - 0.4)^{-1.147} \quad T(\chi_{max}) = 1.447(J_2 - 0.4)$$

für die exponentielle und

$$\chi_{max} = 0.0887 (J_2 - 0.4)^{-1.140} \quad T(\chi_{max}) = 1.330 (J_2 - 0.4)$$

für die Standardvariante.

Ebenfalls in Abbildung (5.21) zu sehen sind Daten für die Höhe und die Position des Maximums der exakten Diagonalisierung für  $N = 16$ . Deutlich wird, dass für  $J_2 < 1.5$  das Maximum der ED-Daten kleiner ist als bei den Resultaten der Greenschen Funktionen, der Unterschied wird mit wachsendem  $J_2$  kleiner. Die Temperaturen, bei denen das Maximum auftritt, sind in diesem Bereich etwas höher als bei der RGM.

In [124] sind für diese Größen die Daten der exakten Diagonalisierung für  $N = 16$  und 20 abgebildet. Hier zeigt sich, dass das Maximum nahe des Übergangs zur ferromagnetischen Phase für  $N = 20$  höher ist als für  $N = 16$ . Außerdem ist die Position für  $N = 20$  kleiner als für  $N = 16$ , der Unterschied wird mit wachsendem  $J_2$  größer. Somit ist der Unterschied zwischen exakter Diagonalisierung und RGM zum Teil den finite-size Effekten zuzuschreiben.

Die dargestellten Resultate experimenteller Messungen liegen alle im Bereich der berechneten Kurven. Wie schon in Tabelle 5.3 zu sehen, können die aus verschiedenen Experimenten gewonnenen Ergebnisse für  $J_1$  und  $J_2$  für identische Materialien voneinander abweichen. Somit können die Abweichungen zwischen den experimentellen Daten und den theoretischen Kurven zum Teil einer ungenauen Bestimmung der Kopplungskonstanten zugeschrieben werden.

Fazit:

In diesem Abschnitt wurde deutlich gemacht, dass die Höhe des Maximums der Suszeptibilität mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  kleiner wird und sich die Position zu höheren Temperaturen verschiebt. Das Verhalten dieser Größen lässt sich durch die einfachen Potenzgesetze

$$\chi_{max} = a (J_2 - J_2^c)^\alpha \quad T(\chi_{max}) = b (J_2 - J_2^c)$$

beschreiben.

## 5.5.4 Korrelationslänge

In Abbildung 5.22 sind die Korrelationslängen für verschiedene  $J_2$  dargestellt, angewandt wurde die Definition (5.14). Beide Varianten (a) und (b) der RGM zeigen eine Divergenz für  $T \rightarrow 0$ , die charakteristisch für den Phasenübergang zu einer geordneten Phase ist. Bei wachsender übernächster-Nachbar-Wechselwirkung  $J_2$  wird bei beiden der steile Anstieg bei tiefen Temperaturen zu höheren Werten  $T/J_C$  verschoben.

Ebenfalls in Abbildung 5.22 dargestellt ist der Vergleich der Definitionen aus Gleichung (5.14) und Gleichung (5.13). Es zeigt sich, dass bei tiefen Temperaturen der Unterschied vernachlässig-

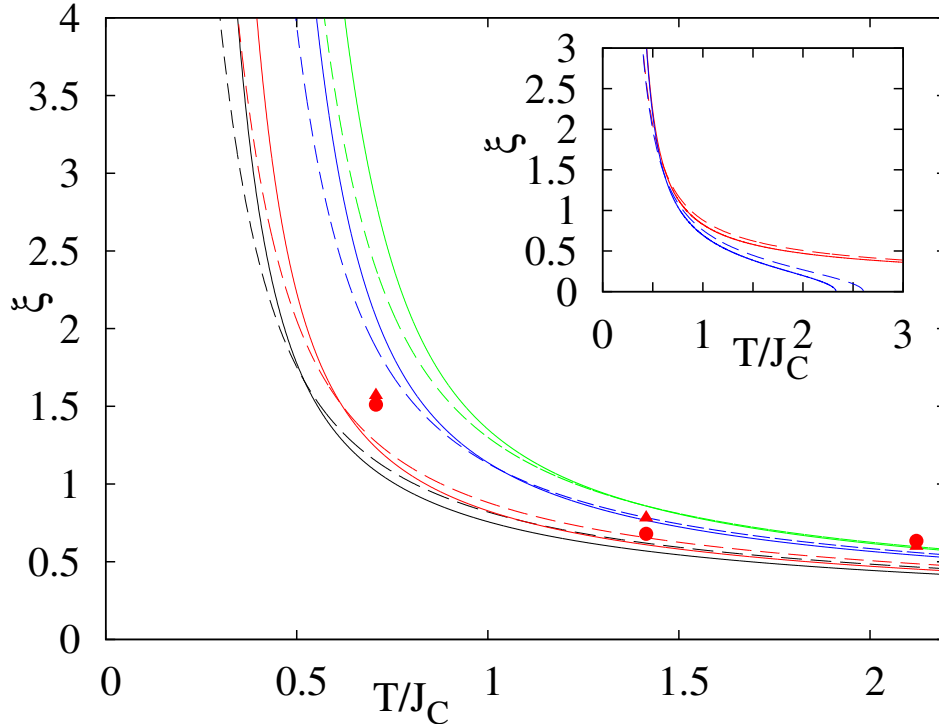


Abbildung 5.22: Korrelationslänge  $\xi$  nach Gleichung (5.14) für  $J_2 = 0.9$  (schwarz),  $1.0$  (rot),  $1.5$  (blau) und  $2.0$  (grün) unter Verwendung des exponentiellen (durchgezogen) und des Standardansatzes (gestrichelt). Außerdem gezeigt ist für  $J_2 = 1$  die Korrelationslänge, die sich aus dem angenommenen Ornstein-Zernike-Verhalten der Korrelationsfunktionen mit dem exponentiellen Ansatz (Kreise) und dem Standardansatz (Dreiecke) ergibt (Details hierzu im Text zu Abbildung 5.23). Der Inset zeigt den Vergleich der Korrelationslängen nach Gleichung (5.14) (rot) und nach Gleichung (5.13) (blau) für  $J_2 = 1.0$ .

bar ist, da der für  $T \rightarrow 0$  divergierende Term  $\propto 1/\Delta^C$  der dominierende ist. Bei wachsenden Temperaturen ist die Korrelationslänge nach der Standarddefinition Gleichung (5.13) niedriger als die verwendete, bis sie bei einer von  $J_2$  abhängenden Temperatur verschwindet.  $\xi^2$  wird hier negativ, die Korrelationslänge somit imaginär. Der zusätzliche Term in Gleichung (5.14) sorgt dafür, dass  $\xi^2$  positiv bleibt und die Korrelationslänge das physikalisch sinnvolle Verhalten  $\xi \rightarrow 0$  bei  $T \rightarrow \infty$  aufweist.

Als Nächstes soll der Zusammenhang der Korrelationslänge mit dem exponentiellen Abfall der Korrelationsfunktionen untersucht werden, welche wie in Abschnitt 3.4 beschrieben eng vernüpft sind. Für den reinen Antiferromagneten auf dem Quadratgitter liegt im Fall  $|\mathbf{R}_{n,m}|/\xi \gg 1$  ein Ornstein-Zernike-artiges Verhalten der Korrelationsfunktionen mit

$$\langle \mathbf{S}_{n,m} \mathbf{S}_0 \rangle \propto \frac{e^{|\mathbf{R}_{n,m}|/\xi}}{\sqrt{|\mathbf{R}_{n,m}|}} \quad (5.22)$$

vor [157].

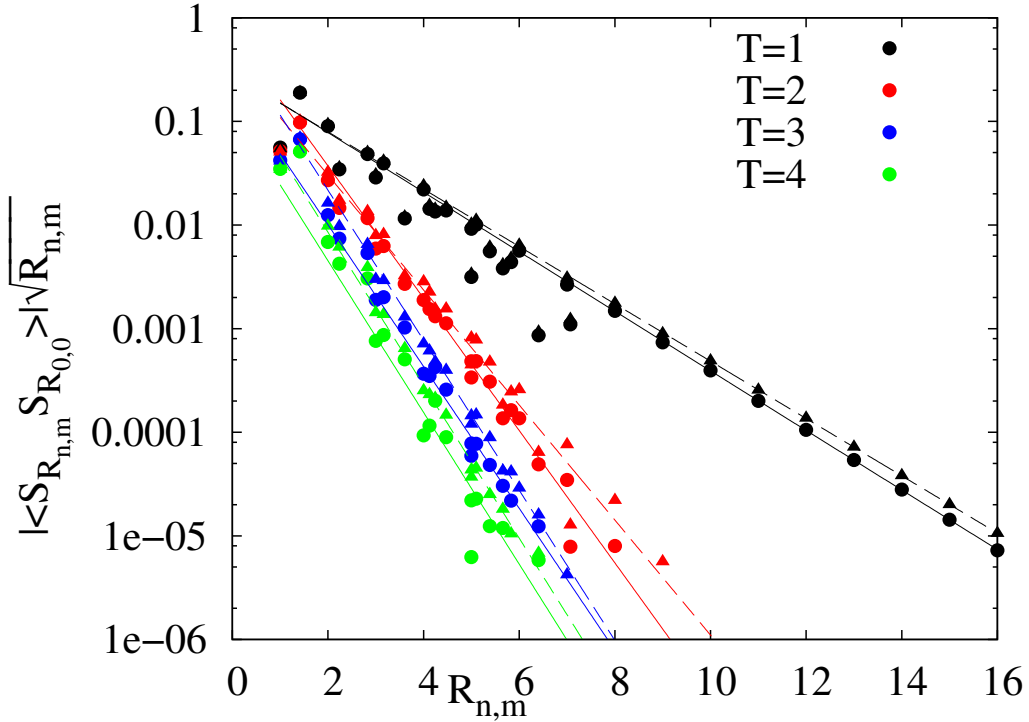


Abbildung 5.23: Darstellung der Korrelationsfunktion  $|\langle \mathbf{S}_{0,0} \mathbf{S}_{n,m} \rangle| \sqrt{R_{n,m}}$  über  $R_{n,m}$  für  $J_2 = 1$  bei  $T = 1$  (schwarz),  $T = 2$  (rot),  $T = 3$  (blau) und  $T = 4$  (grün), berechnet mit dem exponentiellen (Kreise) und dem Standardansatz (Dreiecke). Die Linien zeigen die grobe Anpassung der Daten an das Ornstein-Zernike-Verhalten Gleichung (5.22).

Um die Gültigkeit dieses Verhaltens auch für das betrachtete Modell zu überprüfen, ist in Abbildung 5.23 für das Beispiel  $J_2 = 1$  die Korrelationsfunktion  $|\langle \mathbf{S}_{n,m} \mathbf{S}_{0,0} \rangle| \sqrt{R_{n,m}}$  über  $R_{n,m}$  für  $T = 1, 2, 3$  und  $4$  dargestellt. Um Fehler aus numerischen Ungenauigkeiten zu vermeiden, wurden nur diejenigen mit  $\langle \mathbf{S}_{n,m} \mathbf{S}_{0,0} \rangle > 10^{-6}$  verwendet. In der gewählten logarithmischen Darstellung muss, wenn die Korrelationsfunktionen dem Ornstein-Zernike-Verhalten Gleichung (5.22) gehorchen, bei großen Abständen  $R_{n,m}$  ein lineares Abklingen sichtbar sein. Es lässt sich feststellen, dass oberhalb dieser Grenze dies nur für  $T = 1$  geschieht. Eine grobe Extrapolation an das angenommene Verhalten liefert Korrelationslängen, die in etwa denen über die Gleichungen (5.14) und (5.13) berechneten entsprechen, siehe Abbildung 5.22.

Das Verhalten der Korrelationsfunktionen, die offensichtlich nicht exponentiell abfallen, kann eine Erklärung für das in Abbildung 5.22 gezeigte Scheitern der Standarddefinition der Korrelationslänge Gleichung (5.13) liefern. Die durch das Entkopplungsschema benutzte Näherung in der Greenfunktionsmethode sowie die Beschränkung der numerischen Genauigkeit könnte dafür sorgen, dass diejenigen Korrelationsfunktionen bei  $R_{n,m} \gg \xi$  bereits zu klein sind, um das asymptotische Verhalten nach Ornstein-Zernike zu reproduzieren.



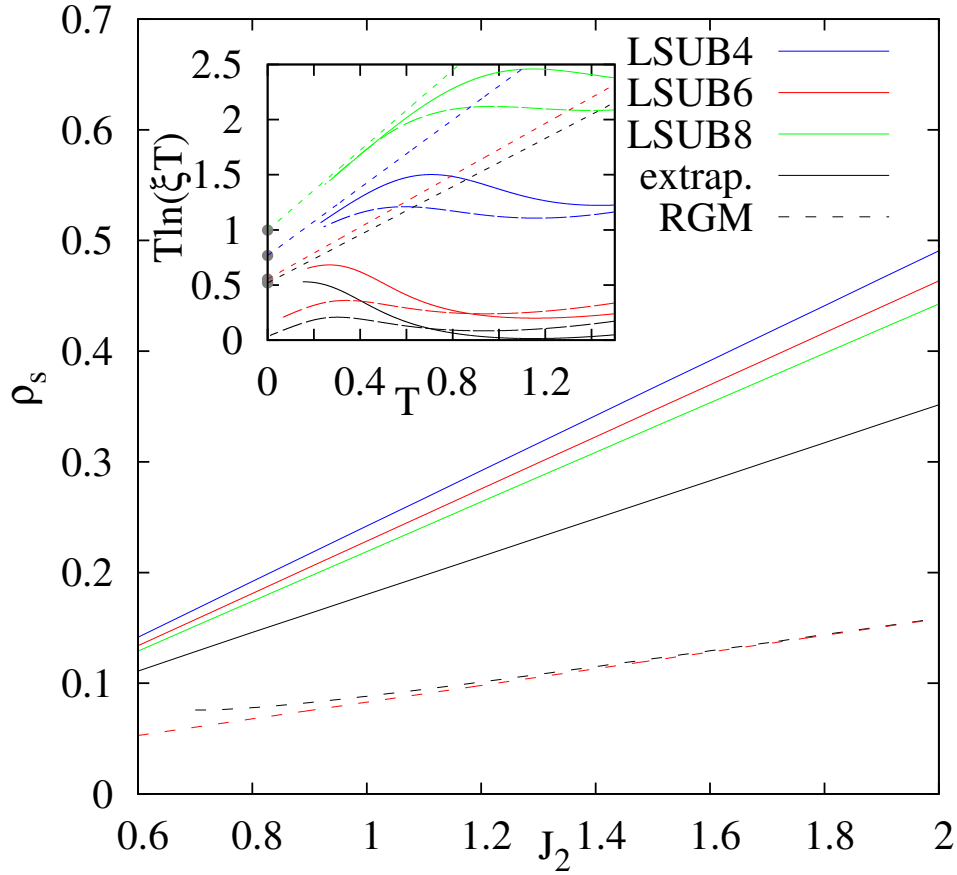


Abbildung 5.24: Ergebnisse der verschiedenen *LSUB-n* Näherungsstufen der Coupled-Cluster-Methode für die Spin-Stiffness  $\rho_s$  sowie deren Extrapolation. Weiterhin gezeigt ist  $\rho_s(T=0)$ , definiert über den exponentiellen Anstieg der Korrelationslänge Gleichung (5.23) im Rahmen der Greenfunktionsmethode (schwarz gestrichelte Linie) und dessen Anpassung an ein lineares Verhalten für große  $J_2$  (rot gestrichelte Linie). Das kleine Bild zeigt  $T \ln(\xi T)$  über  $T$  für  $J_2 = 0.9$  (schwarz),  $1.0$  (rot),  $1.5$  (grün) und  $2.0$  (blau) mit Variante (a) (langgestrichelte Linie), Variante (b) (durchgezogene Linie) sowie die entsprechenden Ergebnisse der ersten Ordnung der Tieftemperaturentwicklung Gleichung (5.23) (kurzgestrichelte Linie).

Wie bereits in Abschnitt 5.4.4 ausgeführt, lässt sich die exponentielle Divergenz der Korrelationslänge für den Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes und des reinen antiferromagnetischen Quadratgitters beschreiben durch  $\xi \propto e^{2\pi\rho_s/T}$ . Dort wurde gezeigt, dass sich dieses Verhalten auch im System mit kleinem Parameter  $J_2/|J_1|$  mit einer entsprechenden Spin-Stiffness nachweisen lässt. Somit liegt die Annahme nahe, dass sich das Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge auch im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes ebenfalls mit dieser Gleichung beschreiben lässt. Um diese Fragestellung zu untersuchen, wurde die Spin-Stiffness mit der Coupled-Cluster-Methode berechnet. Die verschiedenen Näherungsstufen und eine Extrapolation der Ergebnisse für einen unendlich großen Cluster unter Berücksichtigung unendlich vieler Spinflips (der exakte Fall) sind in Abbildung 5.24 dargestellt. Die Spin-Stiffness

des  $J_1$ - $J_2$ -Modells, berechnet mit der Coupled-Cluster-Methode, ist linear in  $J_2$  und kann durch

$$\rho_S = 0.172J_2 + 0.008$$

beschrieben werden. Das Ergebnis für  $\rho_S/J_2$  für  $J_2 \rightarrow \infty$  ist vergleichbar mit dem Ergebnis einer Monte-Carlo-Simulation  $\rho_S = 0.199(2)$  [157]<sup>6</sup>.

### Tieftemperaturentwicklung der Korrelationslänge bei kollinearem Grundzustand

Neben der numerischen Auswertung der Gleichungen der RGM ist im Grenzfall  $T \rightarrow 0$  auch eine analytische Tieftemperaturentwicklung möglich. Zur Berechnung des Tieftemperaturverhaltens der Korrelationslänge wird der Ausdruck für die Korrelationsfunktionen

$$\langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{4\pi^2} \int_{-\pi}^{\pi} dq_x \int_{-\pi}^{\pi} dq_y \frac{M_{\mathbf{q}} \cos nq_x \cos mq_y}{2\omega_{\mathbf{q}}} (1 + 2n(\omega_{\mathbf{q}}))$$

einer Tieftemperaturentwicklung unterzogen. Hier sind nur die langwelligen Anregungen relevant. Wie bei der Berechnung der Korrelationslänge argumentiert, sollte auch die Dispersionsrelation die quadratische Symmetrie erhalten. Daher wird im Bereich  $\mathbf{q}' \approx \mathbf{q} + \mathbf{Q}_{1,2}$

$$\omega_{\mathbf{q}'}^2 \approx \frac{\omega_{\mathbf{q}+\mathbf{Q}_1}^2 + \omega_{\mathbf{q}+\mathbf{Q}_2}^2}{2} = \Delta^C - B(q_x^2 + q_y^2)$$

verwendet, bei dem Moment  $M_{\mathbf{q}}$  ist nur der ebenfalls mit  $\mathbf{Q}_1$  und  $\mathbf{Q}_2$  symmetrisierte konstante Anteil

$$M_{\mathbf{q}} \cos nq_x \cos mq_y \approx -\frac{(-1)^n + (-1)^m}{2} \left( 8J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 16J_2 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle \right)$$

relevant. Die Berücksichtigung der nächsten Ordnung in  $M_{\mathbf{q}}$  sowie der Beitrag um  $\mathbf{q} \approx \mathbf{0}$  liefert Terme  $\propto T^3$ , welche zur Berechnung des Tieftemperaturverhaltens der Energie und der spezifischen Wärme wichtig ist, für die niedrigste Ordnung der Korrelationslänge in  $T$  aber keine Rolle spielt. Die Ausdrücke werden in die Korrelationsfunktion eingesetzt und der Übergang zu Polarkoordinaten wird ausgeführt. Da aufgrund der tiefen Temperaturen die Exponentialfunktion der Bose-Verteilung nur bei kleinen Werten von  $q$  zum Integral beiträgt, kann das Integrationsgebiet ins Unendliche ausgedehnt werden. Hierbei muss beachtet werden, dass bei der Entwicklung der Kosinus-Funktionen um  $\mathbf{Q}_1 = (0, \pi)$ , analog für  $\mathbf{Q}_2 = (\pi, 0)$ , zunächst eine Variablentransformation  $q'_y = \pi + q_y$  vollzogen und dann um  $(q_x, q'_y) = (0, 0)$  entwickelt wird. Diese Transformation ändert das Integrationsgebiet zu

$$\int_{-\pi}^{\pi} dq_x \int_{-\pi}^{\pi} dq_y f(\cos(q_x), \cos(q'_y)) \rightarrow \int_{-\pi}^{\pi} dq_x \int_0^{2\pi} dq'_y f(\cos(q_x), \cos(q'_y)) .$$

Durch die Entwicklung der Kosinus-Funktionen geht die Periodizität verloren, wodurch der Beitrag für negative  $q'_y$  fehlt. Aufgrund der Symmetrie des Kosinus entspricht damit der korrekte

<sup>6</sup>Es ist anzumerken, dass die Coupled-Cluster-Methode für das reine antiferromagnetische Quadratgitter einen Wert von  $\rho_S = 0.1812$  liefert [26]. Ursache der Abweichung könnte sein, dass die Annahme linearen Verhaltens nicht exakt erfüllt ist.

Wert des Integrals dem doppelten Wert des hier berechneten. Also folgt

$$\begin{aligned} \langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle &= \langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle (T=0) + \Theta(T^3) \\ &- \frac{(-1)^n + (-1)^m}{2} \frac{(8J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 16J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle)}{\pi \sqrt{\Delta^C}} \int_0^\infty \frac{dq q}{\sqrt{1 - \frac{B}{\Delta^C} q^2}} \frac{1}{e^{\frac{\sqrt{\Delta^C} \sqrt{1 - \frac{B}{\Delta^C} q^2}}{T}} - 1}} \end{aligned}$$

und mit dem Integral

$$\int_0^\infty \frac{dq q}{\sqrt{1 - \frac{B}{\Delta^C} q^2}} \frac{1}{e^{\frac{\sqrt{\Delta^C} \sqrt{1 - \frac{B}{\Delta^C} q^2}}{T}} - 1}} = \frac{T \Delta^C}{\sqrt{\Delta^C} B} \ln \left( 1 - e^{-\sqrt{\Delta^C}/T} \right)$$

schließlich

$$\begin{aligned} \langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle &= \langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle (T=0) + \Theta(T^3) \\ &- \frac{(-1)^n + (-1)^m}{2} \frac{(8J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 16J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle) T}{\pi B} \ln \left( 1 - e^{-\sqrt{\Delta^C}/T} \right). \end{aligned}$$

Aus dem Vergleich mit der Grundzustandsgleichung für die Korrelationsfunktionen mit der korrekten quadratischen Symmetrie,

$$\langle S_{n,m}^- S_0^+ \rangle = \frac{1}{4\pi^2} \int_0^{2\pi} dq_x \int_{-\pi}^{\pi} dq_y \frac{M_{\mathbf{q}} \cos nq_x \cos mq_y}{\omega_{\mathbf{q}}} + \frac{(-1)^n + (-1)^m}{2} C,$$

folgt die Identifikation

$$C = - \frac{(8J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 16J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle) T}{\pi B} \ln \left( 1 - e^{-\sqrt{\Delta^C}/T} \right),$$

also die Beschreibung des Tieftemperaturverhaltens des Kondensatterms. Da, wie *a posteriori* gezeigt wird,  $\Delta^C$  bei tiefen Temperaturen exponentiell und damit schneller als  $T^2$  kleiner wird, lässt sich der Logarithmus mit  $\ln \left( 1 - e^{-\sqrt{\Delta^C}/T} \right) \approx \ln \left( \sqrt{\Delta^C}/T \right)$  nähern. Daraus folgt die Behauptung

$$\Delta^C = T^2 \exp \left( - \frac{\pi B C}{8 \left( J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 2J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right) T} \right).$$

Das Tieftemperaturverhalten der Korrelationslänge ist bei tiefen Temperaturen bei beiden Varianten (5.13) und (5.14) gegeben durch

$$\xi = \frac{\sqrt{-B}}{T} e^{2\pi\rho_S/T} \quad \text{mit } \rho_S = \frac{BC}{16 \left( J_1 \langle S_{1,0}^- S_0^+ \rangle + 2J_2 \langle S_{1,1}^- S_0^+ \rangle \right)}. \quad (5.23)$$

Hier wurde die Spin-Stiffness  $\rho_S$  über den Exponenten in (5.23) definiert. Die Temperaturabhängigkeit des Vorfaktors und des Exponenten entspricht derjenigen, die für die RGM ebenso

wie für die modifizierte Spinwellentheorie im reinem antiferromagnetischen Quadratgitter auftritt [39, 144].

Das so erzielte Ergebnis für  $\rho_S$  ist zusammen mit den Näherungsergebnissen und deren Extrapolation der Coupled-Cluster-Methode in Abbildung 5.24 gezeigt. Die mit der RGM ermittelte Spin-Stiffness kann für  $J_2 \gtrsim 2$  ebenfalls durch ein lineares Gesetz beschrieben werden, hier gilt

$$\rho_S = 0.075J_2 + 0.008.$$

Für kleinere Werte von  $J_2$  ist der Einfluss von  $J_1$  auf  $\rho_S$  jedoch sichtbar.

Im Grenzfall  $J_2 \rightarrow \infty$  unterscheidet sich das  $\rho_S/J_2$  der CCM und der RGM um den Faktor 2.3. Dies entspricht etwa dem Faktor 2, der bereits in Abschnitt 5.4.4 beim Vergleich zwischen RGM und modifizierter Spinwellentheorie auftauchte.

Zur Kontrolle des Tieftemperaturverhaltens nach Gleichung (5.23) ist in Abbildung 5.24 ebenfalls  $T \ln(\xi T)$  in Abhängigkeit der Temperatur für verschiedene Parameter  $J_2$  darstellt, außerdem sind die entsprechenden Geraden  $\frac{T}{2} \ln(B(T=0)) + 2\pi\rho_S(T=0)$ , die erste Ordnung der Tieftemperaturentwicklung, eingezeichnet. Wie bereits bei der Suszeptibilität im vorherigen Abschnitt diskutiert, reproduziert die Methode unter Verwendung von Variante (a) für die zwei Vertexparameter für  $J_2 \leq 1.3$  nicht das erwartete Grundzustandsergebnis. Der Vergleich mit dem berechneten Tieftemperaturverhalten zeigt, dass mit wachsendem  $J_2$  der Temperaturbereich wächst, in dem das lineare Verhalten sichtbar ist. So lässt sich für  $J_2 = 2$  die Korrelationslänge bis  $T \approx 0.4$  durch Gleichung (5.23) beschreiben, bei  $J_2 = 0.9$  liegt dieser Temperaturbereich bereits deutlich unterhalb der mit den numerischen Rechnungen erreichbaren niedrigsten Temperatur.

Nun sollen die theoretischen Daten mit experimentellen Resultaten verglichen werden. Ein solcher Vergleich findet, soweit dem Autor bekannt, erstmals statt. Verwendet werden Messwerte an  $SrZnVO(PO_4)_2$  mit  $J_2/|J_1| = 1.15$  [139],  $Pb_2VO(PO_4)_2$  mit  $J_2/|J_1| = 1.6$  [138] und  $BaCdVO(PO_4)_2$  mit  $J_2/|J_1| = 0.9$  [140] mit den in Tabelle 5.1 angegebenen Parametern.<sup>7</sup>

Wie beim System mit kleinem  $J_2$  ist auch hier die Korrelationslänge von den konkreten Werten von  $J_1$  und  $J_2$  unabhängig, die Temperatur skaliert mit  $T/|J_1|$ . Die Messergebnisse für die Korrelationslänge in Abhängigkeit der Temperatur sind im oberen Teil von Abbildung 5.25 dargestellt. Zum Vergleich sind die theoretischen Resultate der Greenfunktionsmethode, zum einen mit der Standardgleichung (5.15), zum anderen mit dem exponentiellen Ansatz Gleichung (5.16) für die Vertexparameter gezeigt. Interessanterweise lässt sich feststellen, dass die Ergebnisse der Standardvariante die experimentellen Daten besser beschreiben, obwohl diese an der beschriebenen Inkonsistenz bei tiefen Temperaturen leiden.

Der nahezu lineare Verlauf der Spin-Stiffness mit  $J_2$  motiviert die Darstellung der experimentellen und theoretischen Daten im unteren Teil von Abbildung 5.25 in Abhängigkeit von  $J_2/T$  [63]. Den Ergebnissen der Coupled-Cluster-Methode und der Greenfunktionsmethode für  $\rho_S$

<sup>7</sup>In [63] wurde die Korrelationslänge mit dem in [139] angegebenen Wert von  $J_2/|J_1| = 1.8$  dargestellt. Es zeigt sich jedoch, dass aus den in Tabelle 5.1 angegebenen Werten  $J_2/|J_1| = 1.6$  folgt, wodurch die mit der RGM berechnete Korrelationslänge besser zu den experimentellen Resultaten passt.

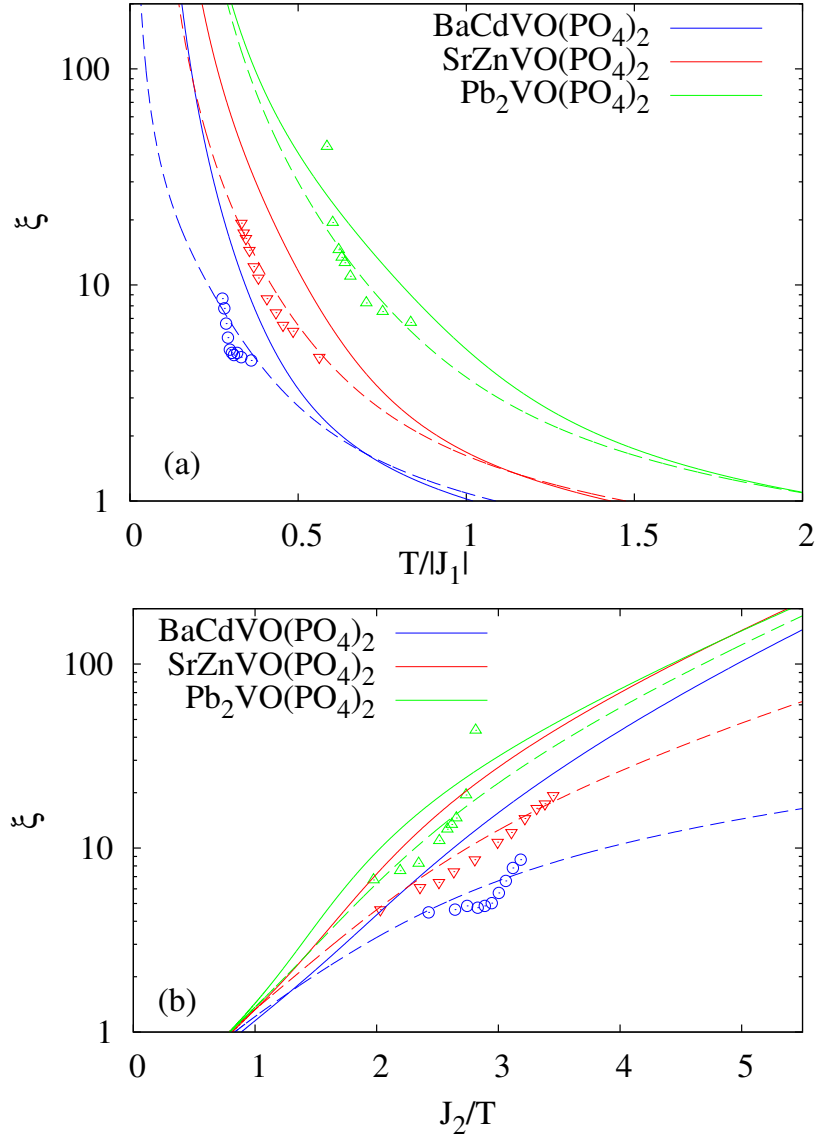


Abbildung 5.25: (a): Vergleich der Messungen der Korrelationslänge an  $\text{SrZnVO}(\text{PO}_4)_2$  [139] (rot),  $\text{Pb}_2\text{VO}(\text{PO}_4)_2$  [138] (grün) und  $\text{BaCdVO}(\text{PO}_4)_2$  [140] (blau) in Abhängigkeit der Temperatur mit Resultaten der Greenfunktionsmethode aus Variante (a) (gestrichelte Linie) und Variante (b) (durchgezogene Linie). (b) zeigt dieselben Daten, diesmal in Abhängigkeit der inversen Temperatur  $J_2/T$ .

zufolge sollten bei ausreichend großem  $J_2/T$  die Kurven zusammenfallen, insbesondere bei einem großen Wert  $J_2/|J_1|$ . Für die Daten des exponentiellen Ansatzes ist dieses Verhalten für  $J_2/|J_1| \geq 1.15$  zu sehen, kleine Abweichungen können der Temperaturabhängigkeit des Vorfaktors vor der Exponentialfunktion zugeschrieben werden. Die Abweichung für  $J_2/|J_1| = 0.9$  folgt aus dem Einfluss von  $J_1$  auf die Spin-Stiffness der Greenfunktionsmethode, vgl. Abbildung

(5.24). Die Abweichung der Resultate des Standardansatzes insbesondere für  $J_2/|J_1| \leq 1.15$  erfolgt aus der Inkonsistenz der Daten bei tiefen Temperaturen. Der Datensatz für  $J_2/|J_1| = 1.6$  sollte mit den Kurven des Exponentialansatzes zusammenfallen, hier ist der Bereich  $J_2/T$  noch zu klein. Auch die experimentellen Daten weichen von dem Verhalten ab, welches eine lineare Skalierung der Spin-Stiffness mit  $J_2$  erwarten ließe.

Fazit:

Es konnte gezeigt werden, dass die Korrelationslänge mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  im Temperaturverlauf langsamer abfällt. Im Limes  $T \rightarrow 0$  wurde der analytischer Ausdruck

$$\xi = \frac{\sqrt{-B}}{T} e^{2\pi\rho_S/T}$$

für die exponentielle Divergenz berechnet. Für hohe Temperaturen werden die Korrelationsfunktionen zu klein, um ein exponentielles Abklingen über dem Abstand zu beobachten.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Greenfunktionsmethode auf ein- und zweidimensionale frustrierte Quantenspinsysteme, beschrieben mit dem Heisenberg-Modell mit ferromagnetischer nächster-Nachbar-Wechselwirkung und frustrierender antiferromagnetischen übernächste-Nachbar-Wechselwirkung im gesamten Temperaturbereich angewendet werden. Wie in der Einleitung beschrieben gibt es wenige quantenmechanische Vielteilchenmethoden, mit denen dies möglich ist. Motiviert sind diese Untersuchungen zum einen durch aktuelle Synthetisierungen von Materialien, deren physikalische Eigenschaften sich mit diesem Modell beschreiben lassen, zum anderen durch grundlegendes theoretisches Interesse an dem Einfluss des Zusammenspiels von thermischen und Quantenfluktuationen sowie Frustration auf die physikalischen Eigenschaften von Quantenspinsystemen.

Konkret untersucht wurde in Kapitel 4 der frustrierte Ferromagnet auf der linearen Kette für beliebige Spinquantenzahlen  $S$  sowie für  $S = 1/2$  mit dem Einfluss eines zusätzlichen äußeren magnetischen Feldes, beide im Parameterbereich des ferromagnetischen Grundzustandes. In Kapitel 5 wurde der frustrierte  $S = 1/2$ -Ferromagnet auf dem Quadratgitter sowohl im Parameterbereich der ferromagnetischen als auch der kollinearen Grundzustandsphase betrachtet.

Allgemein kann konstatiert werden, dass die verwendete Greenfunktionsmethode geeignet ist, insbesondere die Suszeptibilität  $\chi_0$  und die Korrelationslänge  $\xi$  gut zu beschreiben. Bei den Korrelationsfunktionen und der spezifischen Wärme treten zum Teil deutliche Abweichungen im Vergleich zu anderen Methoden wie der exakten Diagonalisierung, der Transfermatrix-Renormalisierungsgruppentheorie und der Hochtemperaturentwicklung auf. Die qualitativen Ergebnisse stimmen jedoch überein.

Für das eindimensionale, feldfreie System reproduziert die Greenfunktionsmethode das charakteristische breite Maximum der spezifischen Wärme im unfrustrierten Fall. Wird die Spinquantenzahl  $S$  größer, wächst die Höhe des Maximums und wird zu niedrigeren Temperaturen hin verschoben. Position und Höhe weisen eine nur schwache Abhängigkeit vom Verhältnis  $J_2/|J_1|$  auf, die Höhe sinkt, die Temperatur, bei der es auftritt, wächst leicht. Somit sind diese Größen keine Kriterien, um anhand von experimentellen Messungen an schwach frustrierten eindimensio-

nalen Ferromagneten den Wert  $J_2/|J_1|$  zu bestimmen. Weiterhin tritt in der spezifischen Wärme ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum für  $J_2/|J_1| > 0.16$  beziehungsweise  $J_2/|J_1| > 0.21$  für  $S = 1/2$  beziehungsweise  $S = 1$  auf.

Die Suszeptibilität fällt mit wachsendem Frustrationsparameter bei fester Spinquantenzahl  $S$  im Temperaturverlauf schneller ab, mit wachsendem  $S$  und festem  $J_2/|J_1|$  langsamer. Das Tieftemperaturverhalten konnte aus der Extrapolation an ein wohlbegründetes Potenzgesetz bestimmt werden zu

$$\frac{\chi_0 T^2}{S^4} = \frac{2}{3} (|J_1| - 4J_2) + 1.109 S^{-3/2} \sqrt{|J_1| - 4J_2} \sqrt{T}.$$

Es konnte gezeigt werden, dass eine zunehmender Parameter  $J_2/|J_2|$  den exponentiellen Abfall der Korrelationsfunktionen über dem Abstand beeinflusst, da diese schnell sehr klein und zum Teil negativ werden. Dies hatte die Einführung einer alternativen Vorschrift zur Berechnung der Korrelationslänge zur Folge.

Die Korrelationslänge fällt wie die Suszeptibilität bei wachsendem  $J_2/|J_1|$  und festem  $S$  im Temperaturverlauf schneller ab. Bei wachsendem  $S$  und festem  $J_2/|J_1|$  wies sie ein unsystematisches Verhalten auf, wobei hier aufgrund fehlender Vergleichsmöglichkeiten nicht klar ist, ob es sich um ein Artefakt der Methode handelt. Analog zum Vorgehen bei der Suszeptibilität konnte ein Tieftemperaturverhalten gemäß

$$\frac{\xi T}{S^2} = |J_1| - 4J_2 + 0.824 S^{-3/2} \sqrt{|J_1| - 4J_2} \sqrt{T}$$

bestimmt werden.

Ein zusätzliches äußeres Magnetfeld verhindert den für  $J_2/|J_1| < 0.25$  bei  $T = 0$  auftretenden Phasenübergang vom ferromagnetisch geordneten Grundzustand zur ungeordneten Phase bei endlichen Temperaturen, es existiert für beliebige Temperaturen eine von Null verschiedene Magnetisierung. Sie fällt bei festem Magnetfeld mit wachsendem Parameter  $J_2/|J_1|$  im Temperaturverlauf schneller ab, bei wachsendem Magnetfeld mit fester Frustration erhöht sie sich.

Der Bruch der Rotationssymmetrie durch das Feld wird deutlich anhand des unterschiedlichen Verlaufes von transversalen und longitudinalen Korrelationsfunktionen und Korrelationslängen bei niedrigen Temperaturen. Bei einer Temperatur  $T^* \gg h$ , wenn der isotrope Einfluss der thermischen Energie den symmetriebrechenden des Feldes deutlich übersteigt, verschwindet der Unterschied der angegebenen physikalischen Größen. Mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  nimmt die entsprechende Temperatur leicht ab.

Für die Suszeptibilität bei endlicher Feldstärke gilt  $\lim_{T \rightarrow 0} \chi_0^{zz} = \lim_{T \rightarrow \infty} \chi_0^{zz} = 0$ , die Feldabhängigkeit von Position und Höhe des resultierenden Maximums folgt für  $h < 0.1$  den Potenzgesetzen

$$T(\chi_{max}^{zz}) = ah^\gamma, \quad \chi_{max}^{zz} = bh^\beta$$

mit Koeffizienten, die für  $J_2/|J_1| \leq 0.2$  nur schwach von  $J_2/|J_1|$  abhängen, sich nahe des Übergangspunktes aber stärker ändern.

In der spezifischen Wärme entwickelt sich für Feldstärken  $h < h^*$  ein zusätzliches Tieftemperaturmaximum, welches mit wachsendem Feld höher wird und sich zu höheren Temperaturen verschiebt, bis es bei  $h > h^*$  das breite Maximum des feldfreien Falles auslöscht. Es konnte gezeigt werden, dass  $h^*$  mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  größer wird. Weiterhin ergaben sich für  $h \leq 0.01$



Potenzgesetze zur Beschreibung von Höhe und Position des Tieftemperaturmaximums der spezifischen Wärme analog zur Suszeptibilität mit

$$C_{V,max} = dh^\delta, \quad T(C_{V,max}) = rh^\rho.$$

Die Abhängigkeit der Koeffizienten von  $J_2/|J_1|$  ist schwach für  $J_2/|J_1| \leq 0.15$ , bei größerem  $J_2/|J_1|$  wachsen  $r$  und  $\rho$  deutlich.

Auch beim frustrierten Ferromagneten auf dem Quadratgitter klingen die Korrelationsfunktionen mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  schneller ab.

Höhe und Position des Maximums der spezifischen Wärme werden mit wachsendem Frustrationsparameter kleiner, eine eindeutige funktionale Abhängigkeit der Daten von  $J_2/|J_1|$  konnte nicht gefunden werden. In den Ergebnissen konnte analog zum eindimensionalen System eine Doppelmaximumstruktur für  $J_2/|J_1| \gtrsim 0.34$  nachgewiesen werden. Aufgrund fehlender Vergleichsdaten kann aber nicht ausgeschlossen werden, dass es sich bei diesem Effekt um ein Artefakt der Methode handelt.

Es konnte gezeigt werden, dass die Suszeptibilität mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  im Temperaturverlauf schneller abklingt, im Limes  $T \rightarrow 0$  gemäß

$$\chi_0 = \frac{\alpha_1}{T} \exp\left(-\frac{\pi(J_1 + 2J_2)}{2T}\right)$$

exponentiell divergiert und so den Übergang von der ungeordneten Phase bei endlichen Temperaturen hin zur geordneten ferromagnetischen Phase bei  $T = 0$  signalisiert. Der Parameter  $\alpha_1$  ist bis  $J_2/|J_1| \approx 0.3$  nahezu konstant und fällt dann schnell ab, wobei der Parameter möglicherweise beim Quantenphasenübergangspunkt verschwindet und so einen Wechsel des Tieftemperaturverhaltens andeutet.

Ein analoges Verhalten weist auch die Korrelationslänge mit einer Divergenz im Tieftemperaturverhalten gemäß

$$\xi = \frac{\beta_1}{\sqrt{T}} \exp\left(-\frac{\pi(J_1 + 2J_2)}{4T}\right)$$

auf.

Zur Beschreibung der thermischen physikalischen Eigenschaften im Parameterbereich des kollinearen Grundzustandes wurde eine alternative Variante zur Festlegung des Verhältnisses der zwei Vertexparameter entwickelt und mit der in der Literatur verwendeten Standardvariante verglichen. Unterschiede treten hier insbesondere bei niedrigen Temperaturen bei einem Verhältnis der Kopplungskonstanten  $J_2/|J_1| \lesssim 1$  auf, die Standardvariante reproduziert nicht das korrekte Tieftemperaturverhalten der physikalischen Größen.

Beide Varianten liefern ein breites Maximum in der spezifischen Wärme. Dieses wird mit wachsendem  $J_2/|J_1|$  bis zu einem Wert  $J_2/|J_1| \approx 2$  höher und bleibt dann nahezu konstant. Die Position  $T(\chi_{max})$  wächst linear in  $J_2/|J_1|$ .

Die berechnete Suszeptibilität ist geeignet, um mit experimentelle Messungen verglichen zu werden. Die Ergebnisse unter Verwendung der Standardvariante beschreiben das Maximum etwas

besser. Für Höhe und Position dieses Maximums konnten die einfachen Potenzgesetze

$$\chi_{max} = a (J_2 - J_2^c)^\alpha, \quad T(\chi_{max}) = b (J_2 - J_2^c)$$

gefunden werden.

Erstmals wurden theoretische Vorhersagen für die Korrelationslänge in diesem Parameterbereich erstellt und mit experimentellen Daten verglichen. Erstaunlicherweise liefert hier die Standardvariante eine bessere Beschreibung der Messergebnisse. Das konkrete Verhalten der exponentiellen Divergenz im Tieftemperaturverhalten konnte analytisch bestimmt werden.

Die Resultate haben gezeigt, dass für Parameter  $J_2/|J_1| \gtrsim 2$  der Einfluss der Frustration sehr gering ist, die Beschreibung mit dem reinen antiferromagnetischen Quadratgitters bei entsprechenden Skalierungen ist demnach ausreichend.

Es sind verschiedene Möglichkeiten zur Weiterentwicklung der Methode und der Verbesserung der Qualität der Ergebnisse denkbar. In Abschnitt 5.3 zeigte sich eine deutliche Verbesserung der Ergebnisse, wenn zwei anstatt ein unabhängiger Vertexparameter verwendet wird. Demnach könnte die Unterscheidung weiterer Parameter zu weiteren Verbesserungen führen. Hierzu sind jedoch zusätzliche Gleichungen zur Bestimmung im selbstkonsistenten Gleichungssystem notwendig, welche vorsichtig gewählt werden müssen. So ist es beispielsweise nicht immer möglich, Magnetisierung und die nächste-Nachbar-Korrelationsfunktion gemeinsam durch die Ergebnisse anderer Methoden festzulegen [53]. Einige Beispiele für zusätzliche Bedingungen finden sich in [41, 44–46]. Weiterhin kann untersucht werden, in wieweit sich die Berücksichtigung der Dämpfung der Spinwellen nach [48] auf die Ergebnisse auswirkt.

Bei der Beschreibung der Grundzustandseigenschaften der in dieser Arbeit beschriebenen Systeme in den Einleitungen der Kapitel 4 und 5 wurde die Relevanz von Zwei-Magnonen-Anregungen deutlich gemacht. Diese können in der Greenfunktionsmethode berücksichtigt werden, indem die Bewegungsgleichung in weiteren Ordnungen betrachtet wird. Untersuchungen hierzu wurden, soweit dem Autor bekannt, noch nicht veröffentlicht. Somit existieren noch keine erprobten Entkopplungsmethoden.

## Anhang A

# Kommutatoren

In diesem Abschnitt sollen die zur Berechnung der Greenschen Funktionen benötigten Kommutatoren berechnet werden. Hierzu werden die fundamentalen Kommutationen

$$\left[ S_i^z, S_j^\pm \right]_- = \pm S_i^\pm \delta_{i,j} \quad \text{und} \quad \left[ S_i^+, S_j^- \right]_- = 2S_i^z \delta_{i,j}$$

verwendet. Zunächst sollen die Kommutatoren aus Kapitel 3.2.1 bewiesen werden. Gleichung (3.13) ergibt sich aus

$$\begin{aligned} [S_l^z, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} [S_l^z, (S_m^- S_n^+ + S_m^z S_n^z)]_- - h \sum_i [S_l^z, S_m^z]_- \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} [S_l^z, S_m^- S_n^+]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} S_m^- [S_l^z, S_n^+]_- + \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} [S_l^z, S_m^-]_- S_n^+ \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} S_m^- S_l^+ \delta_{l,n} - \frac{1}{2} \sum_{m,n} J_{m,n} S_l^- \delta_{l,m} S_n^+ \end{aligned}$$

und unter Umbenennung des Summationsindizes im ersten Summanden und der Ausnutzung der Symmetrie der Kopplungskonstanten,  $J_{i,j} = J_{j,i}$ ,

$$[S_l^z, H]_- = i\dot{S}_l^z = \frac{1}{2} \sum_m J_{l,m} (S_m^- S_l^+ - S_l^- S_m^+) .$$

Der Beweis von Gleichung (3.14) erfolgt durch

$$\begin{aligned}
[[S_l^z, H]_-, S_k^z]_- &= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} [S_m^- S_l^+, S_k^z]_- - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} [S_l^- S_m^+, S_k^z]_- \\
&= \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_m^- [S_l^+, S_k^z]_- + \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} [S_m^-, S_k^z]_- S_l^+ \\
&\quad - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_l^- [S_m^+, S_k^z]_- - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} [S_l^-, S_k^z]_- S_m^+ \\
&= -\frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_m^- S_l^+ \delta_{k,l} + \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_k^- \delta_{k,m} S_l^+ \\
&\quad + \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_l^- S_k^+ \delta_{k,m} - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_k^- \delta_{k,l} S_m^+ \\
&= \frac{1}{2} J_{k,l} (S_k^- S_l^+ + S_l^- S_k^+) - \delta_{k,l} \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} (S_m^- S_l^+ + S_l^- S_m^+) .
\end{aligned}$$

Die zweite Zeitableitung  $-\ddot{S}_l^z$ , Gleichung (3.16), ergibt sich mit Gleichung (3.13) zu

$$\begin{aligned}
[[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [(S_m^- S_l^+ - S_l^- S_m^+), (S_r^- S_s^+ + S_r^z S_s^z)]_- \\
&\quad - \frac{\hbar}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} [(S_m^- S_l^+ - S_l^- S_m^+), S_r^z]_- .
\end{aligned}$$

Zunächst soll der Term proportional zur Feldstärke betrachtet werden. Hier gilt

$$\begin{aligned}
&\frac{\hbar}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} [(S_m^- S_l^+ - S_l^- S_m^+), S_r^z]_- = \frac{\hbar}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} \left( [S_m^- S_l^+, S_r^z]_- - [S_l^- S_m^+, S_r^z]_- \right) \\
&= \frac{\hbar}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} \left( S_m^- [S_l^+, S_r^z]_- + [S_m^-, S_r^z]_- S_l^+ - S_l^- [S_m^+, S_r^z]_- - [S_l^-, S_r^z]_- S_m^+ \right) \\
&= \frac{\hbar}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} \left( -S_m^- S_l^+ \delta_{l,r} + S_m^- \delta_{m,r} S_l^+ + S_l^- S_m^+ \delta_{m,r} - S_l^- \delta_{l,r} S_m^+ \right) \\
&= \frac{\hbar}{2} \sum_m^N J_{l,m} (S_m^- S_l^+ + S_l^- S_m^+) - \frac{\hbar}{2} \sum_m^N J_{l,m} (S_m^- S_l^+ + S_l^- S_m^+) = 0 .
\end{aligned}$$

Damit verbleibt für  $-\ddot{S}_l^z$  noch die Auswertung der Terme

$$\begin{aligned}
[[S_l^z, H]_-, H]_- &= \underbrace{\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^- S_l^+, S_r^- S_s^+]_-}_{\text{I.}} + \underbrace{\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^- S_l^+, S_r^z S_s^z]_-}_{\text{II.}} \\
&\quad - \underbrace{\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^- S_m^+, S_r^- S_s^+]_-}_{\text{III.}} - \underbrace{\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^- S_m^+, S_r^z S_s^z]_-}_{\text{IV.}} .
\end{aligned}$$

Für Term I gilt

$$\begin{aligned}
&\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- [S_l^+, S_r^- S_s^+]_- + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^-, S_r^- S_s^+]_- S_l^+ \\
&= \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- [S_l^+, S_r^-]_- S_s^+ + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- [S_m^-, S_s^+]_- S_l^+ \\
&= \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- S_l^z \delta_{l,r} S_s^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- S_m^z \delta_{m,s} S_l^+
\end{aligned}$$

und damit

$$\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^- S_l^+, S_r^- S_s^+]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,s}^N J_{l,m} J_{l,s} S_m^- S_l^z S_s^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{r,m} S_r^- S_m^z S_l^+ .$$

Die Ausnutzung der Symmetrie der Matrix der Kopplungskonstanten und eine Umbenennung der Summationsindizes liefert

$$\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^- S_l^+, S_r^- S_s^+]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} S_m^- S_l^z S_r^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_r^- S_m^z S_l^+ .$$

Aus Term II ergibt sich

$$\begin{aligned}
& \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- [S_l^+, S_r^z S_s^z]_- + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^-, S_r^z S_s^z]_- S_l^+ \\
&= \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- S_r^z [S_l^+, S_s^z]_- + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- [S_l^+, S_r^z]_- S_s^z \\
&+ \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^z [S_m^-, S_s^z]_- S_l^+ + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^-, S_r^z]_- S_s^z S_l^+ \\
&= -\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- S_r^z S_l^+ \delta_{l,s} - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- S_l^+ \delta_{l,r} S_s^z \\
&+ \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^z S_m^- \delta_{m,s} S_l^+ + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- \delta_{m,r} S_s^z S_l^+
\end{aligned}$$

und mit der Umbenennung der Summationsindizes und Ausnutzung der Symmetrie der Matrix  $J_{i,j}$

$$\frac{1}{4} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_r^z S_m^- S_l^+ + S_m^- S_r^z S_l^+) - \frac{1}{4} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_m^- S_r^z S_l^+ + S_m^- S_l^+ S_r^z) .$$

Aufgrund der Spurfreiheit der Matrix der Kopplungskonstanten [58],

$$\sum_i J_{ii} = 0, \tag{A.1}$$

liefert der erste Summand nur Beiträge für  $l \neq m$  und  $m \neq r$ , der zweite Summanden nur für  $l \neq m$  und  $l \neq r$ . Damit sind die entsprechenden Operatoren vertauschbar und es ergibt sich

$$\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^- S_l^+, S_r^z S_s^z]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_r^z S_m^- S_l^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} S_m^- S_l^+ S_r^z .$$

Term III liefert

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- [S_m^+, S_r^- S_s^+]_- - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^-, S_r^- S_s^+]_- S_m^+ \\
&= -\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- [S_m^+, S_r^-]_- S_s^+ - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- [S_l^-, S_s^+]_- S_m^+ \\
&= -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- S_m^z \delta_{m,r} S_s^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- S_l^z \delta_{l,s} S_m^+ .
\end{aligned}$$

Wird wiederum eine Umbenennung der Summationsindizes vorgenommen, folgt

$$-\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^- S_m^+, S_r^- S_s^+]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} S_r^- S_l^z S_m^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_l^- S_m^z S_r^+.$$

Aus Term IV folgt

$$\begin{aligned} & -\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- [S_m^+, S_r^z S_s^z]_- - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^-, S_r^z S_s^z]_- S_m^+ \\ = & -\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- S_r^z [S_m^+, S_s^z]_- - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- [S_m^+, S_r^z]_- S_s^z \\ & - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^z [S_l^-, S_s^z]_- S_m^+ - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^-, S_r^z]_- S_s^z S_m^+ \\ = & \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- S_r^z S_m^+ \delta_{m,s} + \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- S_m^+ \delta_{m,r} S_s^z \\ & - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^z S_l^- \delta_{l,s} S_m^+ - \frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- \delta_{l,r} S_s^z S_m^+. \end{aligned}$$

Mit der Verwendung von Gleichung (A.1) und der Umbenennung der Summationsindizes gilt

$$-\frac{1}{4} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^- S_m^+, S_r^z S_s^z]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_l^- S_m^+ S_r^z - \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} S_r^z S_l^- S_m^+.$$

Die Addition der vier Terme liefert schließlich

$$\begin{aligned} [[S_l^z, H]_-, H]_- &= \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_m^- S_l^z S_r^+ + S_r^- S_l^z S_m^+ - S_m^- S_l^+ S_r^z - S_r^z S_l^- S_m^+) \\ &+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_l^- S_m^+ S_r^z + S_r^z S_m^- S_l^+ - S_r^- S_m^z S_l^+ - S_l^- S_m^z S_r^+) . \end{aligned}$$

Nun sollen die zur Berechnung der transversalen Korrelationsfunktionen benötigten Kommutatoren bestimmt werden. Für  $i\dot{S}_l^+$ , Gleichung (3.33), folgt

$$\begin{aligned}
i\dot{S}_l^+ &= [S_l^+, H]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} [S_l^+, (S_m^- S_n^+ + S_m^z S_n^z)]_- - h \sum_m [S_l^+, S_m^z]_- \\
&= \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} [S_l^+, S_m^-]_- S_n^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} S_m^z [S_l^+, S_n^z]_- \\
&\quad + \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} [S_l^+, S_m^z]_- S_n^z + h \sum_m S_l^+ \delta_{l,m} \\
&= \sum_{m,n}^N J_{m,n} S_l^z \delta_{l,m} S_n^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} S_m^z S_l^+ \delta_{l,n} - \frac{1}{2} \sum_{m,n}^N J_{m,n} S_l^+ \delta_{l,m} S_n^z + h S_l^+ \\
&= \sum_n^N J_{l,m} S_l^z S_m^+ - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_m^z S_l^+ - \frac{1}{2} \sum_m^N J_{l,m} S_l^+ S_m^z + h S_l^+ .
\end{aligned}$$

Eine Umbenennung der Summationsindizes und die Anwendung von Gleichung (A.1) liefert schließlich

$$i\dot{S}_l^+ = [S_l^+, H]_- = \sum_m^N J_{l,m} (S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+) + h S_l^+ .$$

Damit folgt für den ebenfalls benötigten Kommutator Gleichung (3.34)

$$\begin{aligned}
[i\dot{S}_l^+, S_k^-]_- &= \sum_m^N J_{l,m} \left( [S_l^z S_m^+, S_k^-]_- - [S_m^z S_l^+, S_k^-]_- \right) + h [S_l^+, S_k^-]_- \\
&= \sum_m^N J_{l,m} \left( S_l^z [S_m^+, S_k^-]_- + [S_l^z, S_k^-]_- S_m^+ - S_m^z [S_l^+, S_k^-]_- - [S_m^z, S_k^-]_- S_l^+ \right) + 2h S_l^z \delta_{l,k} \\
&= \sum_m^N J_{l,m} (2S_l^z S_k^z \delta_{k,m} - S_l^- \delta_{l,k} S_m^+ - 2S_m^z S_l^z \delta_{l,k} + S_k^- \delta_{k,m} S_l^+) + 2h S_l^z \delta_{l,k} \\
&= J_{l,k} (S_k^- S_l^+ + 2S_l^z S_k^z) - \delta_{l,k} \left[ \sum_m^N J_{l,m} (S_l^- S_m^+ + 2S_m^z S_l^z) - 2h S_l^z \right] .
\end{aligned}$$

Die zweite Zeitableitung, Gleichung (3.36), berechnet sich nach

$$\begin{aligned}
[i\dot{S}_l^+, H]_- &= \sum_m^N J_{l,m} [S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+, H]_- + h [S_l^+, H]_- \\
&= \sum_m^N J_{l,m} [S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+, H]_- + ih\dot{S}_l^+ .
\end{aligned}$$



Für den darin enthaltenen Kommutator folgt

$$\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+, S_r^- S_s^+ + S_r^z S_s^z]_- - h \sum_{m,r}^N J_{l,m} [S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+, S_r^z]_- .$$

Für den Term proportional zur Feldstärke ergibt sich

$$\begin{aligned} -h \sum_{m,r}^N J_{l,m} [S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+, S_r^z]_- &= -h \sum_{m,r}^N J_{l,m} S_l^z [S_m^+, S_r^z]_- + h \sum_{m,r}^N J_{l,m} S_m^z [S_l^+, S_r^z]_- \\ &= h \sum_{m,r}^N J_{l,m} S_l^z S_m^+ \delta_{m,r} - h \sum_{m,r}^N J_{l,m} S_m^z S_l^+ \delta_{m,r} \\ &= h \sum_m^N J_{l,m} (S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+) \end{aligned}$$

und mit Gleichung (3.33)

$$h \sum_m^N J_{l,m} (S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+) = ih \dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ .$$

Damit folgt

$$\begin{aligned} [i \dot{S}_l^+, H]_- &= \underbrace{\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z S_m^+, S_r^- S_s^+]_-}_{\text{I.}} + \underbrace{\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z S_m^+, S_r^z S_s^z]_-}_{\text{II.}} \\ &\quad - \underbrace{\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^z S_l^+, S_r^- S_s^+]_-}_{\text{III.}} - \underbrace{\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^z S_l^+, S_r^z S_s^z]_-}_{\text{IV.}} + 2ih \dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ . \end{aligned}$$

Aus Term I folgt

$$\begin{aligned} &\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z [S_m^+, S_r^- S_s^+]_- + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z, S_r^- S_s^+]_- S_m^+ \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z [S_m^+, S_r^-]_- S_s^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- [S_l^z, S_s^+]_- S_m^+ \\ &\quad + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z, S_r^-]_- S_s^+ S_m^+ \\ &= \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z S_m^z \delta_{m,r} S_s^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- S_l^+ \delta_{l,s} S_m^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^- \delta_{l,r} S_s^+ S_m^+ . \end{aligned}$$

Eine Umbenennung der Summationsindizes liefert

$$\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z S_m^+, S_r^- S_s^+]_- = \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_l^z S_m^z S_r^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_r^- S_l^+ S_m^+ - S_l^- S_r^+ S_m^+) .$$

Für Term II gilt

$$\begin{aligned} & \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z [S_m^+, S_r^z S_s^z]_- \\ &= \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z S_r^z [S_m^+, S_s^z]_- + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z [S_m^+, S_r^z]_- S_s^z \\ &= -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z S_r^z S_m^+ \delta_{m,s} - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_l^z S_m^+ \delta_{m,r} S_s^z . \end{aligned}$$

Wiederum mit einer Umbenennung der Summationsindizes und der Berücksichtigung der Spurfreiheit der Kopplungsmatrix, Gleichung (A.1), folgt

$$\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_l^z S_m^+, S_r^z S_s^z]_- = -\sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} S_l^z S_r^z S_m^+ .$$

Term III liefert

$$\begin{aligned} & -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z [S_l^+, S_r^- S_s^+]_- - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^z, S_r^- S_s^+]_- S_l^+ \\ &= -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z [S_l^+, S_r^-]_- S_s^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- [S_m^z, S_s^+]_- S_l^+ \\ & \quad - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^z, S_r^-]_- S_s^+ S_l^+ \\ &= -\sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z S_l^+ \delta_{l,r} S_s^+ - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_r^- S_m^+ \delta_{m,s} S_l^+ + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^- \delta_{m,r} S_s^+ S_l^+ \end{aligned}$$

und damit

$$-\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} [S_m^z S_l^+, S_r^- S_s^+]_- = \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_m^- S_r^+ S_l^+ - S_r^- S_m^+ S_l^+) - \sum_{m,s}^N J_{l,m} J_{l,s} S_m^z S_l^+ S_s^+ .$$

Aus Term IV folgt

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z [S_l^+, S_r^+ S_s^z]_- \\
&= -\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z S_r^z [S_l^+, S_s^z]_- - \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z [S_l^+, S_r^z]_- S_s^z \\
&= \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z S_r^z S_l^+ \delta_{l,s} + \frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z S_l^+ \delta_{l,r} S_s^z
\end{aligned}$$

bzw.

$$-\frac{1}{2} \sum_{m,r,s}^N J_{l,m} J_{r,s} S_m^z [S_l^+, S_r^z S_s^z]_- = \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} S_m^z S_r^z S_l^+ .$$

Die Addition der vier Terme liefert schließlich

$$\begin{aligned}
\left[ i\dot{S}_l^+, H \right]_- &= 2ih\dot{S}_l^+ - h^2 S_l^+ \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{l,r} (S_r^- S_l^+ S_m^+ + 2S_m^z S_r^z S_l^+ - S_l^- S_r^+ S_m^+ - 2S_m^z S_l^z S_r^+) \\
&+ \frac{1}{2} \sum_{m,r}^N J_{l,m} J_{m,r} (S_m^- S_r^+ S_l^+ + 2S_l^z S_m^z S_r^+ - S_r^- S_m^+ S_l^+ - 2S_l^z S_r^z S_m^+) .
\end{aligned}$$



## Anhang B

# Entkopplungsmethoden der Bewegungsgleichung

In diesem Abschnitt sollen die Entkopplung erster Ordnung, die Tjablikow-Entkopplung oder *random-phase approximation*, und einige Erweiterungen dargestellt werden. Obwohl diese Entkopplung die einfachst denkbare ist, wird sie in aktuellen Arbeiten verwendet, da die Anwendung auch in sehr komplexen Systemen relativ einfach ist und sich gute Resultate erzielen lassen [158, 159].

Neben der in dieser Arbeit verwendeten Methode, die Bewegungsgleichungen zu entkoppeln, sind zahlreiche weitere Vorgehensweisen in der Literatur dargestellt. Zu nennen sind verschiedene Projektionsmethoden, beispielsweise von Mori [160–164] oder Tserkovnikov [41, 165–167] oder die Störungsrechnung der speziellen Matsubara-Greenfunktion, deren Auswertung über Feynman-Diagramme geschieht [168–171]. Die Darstellung dieser und weiterer Methoden übersteigt den Rahmen dieser Arbeit, hier sei auf die zahlreich vorhandene Fachliteratur verwiesen.

### Random-phase approximation

Neben der in Rahmen der Arbeit verwendeten Entkopplungsmethode der Bewegungsgleichungen in der zweiten Ordnung nach Kondo und Jamaji [38] werden in der Literatur weitere Methoden verwendet. Die bekannteste ist die *random phase approximation* (RPA) oder Tjablikow-Entkopplung, welche die Bewegungsgleichung bereits in der ersten Ordnung entkoppelt. Diese Variante wurde erstmal von Tjablikow verwendet [31]. Die Berechnung der Korrelationsfunktionen  $\langle S_i^- S_j^+ \rangle$  reicht hier nicht aus, da nach Gleichung (3.8) auch das Quadrat von  $\langle S^z \rangle$  auftaucht. Da wegen

$$\prod_{m=-S}^S (S_i^z - m)$$

eine Anzahl von  $2S$  unabhängigen Größen  $\langle S^z \rangle, \dots, \langle (S^z)^{2S} \rangle$  existiert, muss hier ein System von Greenschen Funktionen verwendet werden, mit welchem sich diese berechnen lassen.

Für ein Spin- $S$ -System mit dem Hamilton-Operator mit einem externen magnetischen Feld in

$z$ -Richtung,

$$H = \frac{1}{2} \sum_{k,l}^N J_{k,l} (S_k^- S_l^+ + S_k^z S_l^z) - h \sum_i S_i^z,$$

sind die Bewegungsgleichungen erster Ordnung für die transversalen Korrelationsfunktionen

$$\langle\langle (S_i^z)^n S_i^- S_j^+ \rangle\rangle$$

zu berechnen [31]. Diese Korrelationsfunktionen sind auch zu bestimmen, wenn die zweite Ordnung in den Bewegungsgleichungen berücksichtigt wird [30]. Mit  $S_{-\mathbf{q}}^{(n)-}$ , welches die Fouriertransformierte von  $S_i^{(n)-} = (S_i^z)^n S_i^-$  bezeichnet, ergibt sich für die gesuchten Korrelationsfunktionen die Bewegungsgleichung

$$\omega \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^{(n)-} \rangle\rangle = \langle\langle [S_{\mathbf{q}}^+, S_{-\mathbf{q}}^{(n)-}]_- \rangle\rangle + \langle\langle i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^{(n)-} \rangle\rangle.$$

Der Erwartungswert des Kommutators wird zu [30, 172]

$$\begin{aligned} M^{(n)} &= \langle\langle [S_{\mathbf{q}}^+, S_{-\mathbf{q}}^{(n)-}]_- \rangle\rangle \\ &= 2\langle\langle (S^z)^{n+1} \rangle\rangle + (1 - \delta_{n,0}) \sum_{k=1}^n \binom{k}{n} (-1)^k \left[ S(S+1) \langle S^{n-k} \rangle + \langle S^{n-k+1} \rangle - \langle S^{n-k+2} \rangle \right], \end{aligned}$$

die erste Ableitung ergibt sich nach Gleichung (3.33) zu

$$i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+ = [S_{\mathbf{q}}^+, H]_- = \sum_m^N J_{l,m} (S_l^z S_m^+ - S_m^z S_l^+) + h S_{\mathbf{q}}^+.$$

Die Näherung nach Tjablikow besteht nun darin, die Fluktuationen der  $z$ -Komponente der Spinoperatoren zu vernachlässigen und gemäß

$$\langle\langle S_i^z S_j^+; B \rangle\rangle \rightarrow_{i \neq j} \langle S^z \rangle \langle\langle S_j^+; B \rangle\rangle \quad (\text{B.1})$$

durch den Mittelwert zu ersetzen. Anwenden dieser Entkopplung liefert

$$i\dot{S}_{\mathbf{q}}^+ = \omega_{\mathbf{q}} S_{\mathbf{q}}^+ \quad \text{mit} \quad \omega_{\mathbf{q}} = -\langle S^z \rangle \sum_m J_{l,m} \left( 1 - e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)} \right) + h$$

und damit die Greensche Funktion

$$\langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^{(n)-} \rangle\rangle = \frac{M^{(n)}}{\omega - \omega_{\mathbf{q}}}.$$

Die Suszeptibilität ergibt sich zu

$$\chi = \frac{1}{2} \lim_{\mathbf{q} \rightarrow 0} \lim_{\omega \rightarrow 0} \langle\langle S_{\mathbf{q}}^+; S_{-\mathbf{q}}^{(n)-} \rangle\rangle = \frac{\langle S^z \rangle}{h}. \quad (\text{B.2})$$

Das Spektraltheorem (2.23) liefert für die Korrelationsfunktionen

$$\langle S_i^{(n)-} S_j^+ \rangle = \frac{M^{(n)}}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}} - 1}. \quad (\text{B.3})$$

Für die Korrelationsfunktionen am selben Gitterplatz gilt

$$\langle (S_i^z)^n S_i^- S_i^+ \rangle = M^{(n)} P \quad \text{mit} \quad P = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{e^{\beta\omega_{\mathbf{q}}} - 1}. \quad (\text{B.4})$$

Wird die Identität (3.8) von links mit  $(S_i^z)^n$  multipliziert und der Erwartungswert gebildet, ergibt sich mit

$$\langle (S_i^z)^n S_i^- S_i^+ \rangle = M^{(n)} P = S(S+1) \langle (S_i^z)^n \rangle - \langle (S_i^z)^{n+1} \rangle - \langle (S_i^z)^{n+2} \rangle \quad (\text{B.5})$$

ein System aus  $2S$  gekoppelten Gleichungen für  $\langle S^z \rangle, \dots, \langle (S^z)^{2S+1} \rangle$ . Die fehlende Gleichung folgt aus der Tatsache, dass Produkte aus  $2S+1$  oder mehr Spinoperatoren, die auf den selben Gitterplatz wirken, zu Produkten aus  $2S$  Operatoren reduziert werden können [56]. Es gilt

$$(S^z)^{2S+1} = \sum_{i=0}^{2S} a_i^S (S^z)^i,$$

wobei die  $a_i^S$  rekursiv zu bestimmende rationale Koeffizienten sind. Es folgt [173]

$$\langle S^z \rangle = \frac{(S-P)(1+P)^{2S+1} + (1+S+P)P^{2S+1}}{(1+P)^{2S+1} - P^{2S+1}}.$$

Die longitudinalen Korrelationsfunktionen lassen sich mit dieser Methode nicht berechnen. Auch ist sie in dieser Form auf ein ein ferngeordnetes System  $\langle S^z \rangle > 0$  beschränkt, da beispielsweise in ein- und zweidimensionalen Systemen bei endlicher Temperatur im Grenzfall  $h \rightarrow 0$  auch  $\langle S^z \rangle \rightarrow 0$  wird.

Yablonskiy erweiterte in [174] die Methode für den ungeordneten Bereich im feldfreien Fall. Hierzu wurde benutzt, dass sich in diesem Grenzfall die Bose-Funktion  $P$  schreiben lässt als

$$P \approx \frac{1}{N \langle S^z \rangle} \sum_{\mathbf{q}} \frac{T}{-\sum_m J_{l,m} (1 - e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)}) + \lambda} \quad \text{mit} \quad \lambda = \lim_{h \rightarrow 0} \frac{h}{\langle S^z \rangle}. \quad (\text{B.6})$$

Daraus lassen sich die longitudinalen Korrelationsfunktionen und auch die der Gesamtspinoperatoren berechnen nach

$$\langle S_i^{(0)-} S_j^+ \rangle = \frac{2}{3} \langle \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j \rangle = \frac{2T}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_j - \mathbf{R}_i)}}{-\sum_m J_{l,m} (1 - e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)}) + \lambda}, \quad (\text{B.7})$$

da im feldfreien Fall Rotationssymmetrie vorliegt. Die Darstellung mit dem Parameter  $\lambda$  ist sinnvoll, da dieser endlich bleibt, obwohl  $h \rightarrow 0$  und  $\langle S^z \rangle \rightarrow 0$ . Eine Bestimmungsgleichung für diese Größe ergibt sich aus Gleichung (B.7) für die Korrelationsfunktionen am selben Gitterplatz,

$$S(S+1) = \frac{3T}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{-\sum_m J_{l,m} (1 - e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)}) + \lambda}. \quad (\text{B.8})$$

Der Vergleich der Definition von  $\lambda$  mit der Gleichung für die Suszeptibilität ergibt

$$\chi = \frac{1}{\lambda}. \quad (\text{B.9})$$

Bei Systemen, die einen Übergang zu einer geordneten Phase bei endlicher Temperatur  $T_c$  aufweisen, kann Gleichung (B.8) zur Berechnung von  $T_c$  verwendet werden. Es gilt  $\lambda = 0$  für  $T < T_c$  und  $\lambda \neq 0$  für  $T > T_c$ . Daher kann  $T_c$  berechnet werden durch

$$S(S+1) = \frac{3T_c}{N} \sum_{\mathbf{q}} \frac{1}{-\sum_m J_{l,m} (1 - e^{i\mathbf{q}(\mathbf{R}_m - \mathbf{R}_l)})}. \quad (\text{B.10})$$

### Weitere Entkopplungsmethoden erster Ordnung

In der Literatur existieren zahlreiche Erweiterungen und Modifikationen, die Bewegungsgleichung in der ersten Ordnung zu entkoppeln. Einige hiervon sollen nun kurz erwähnt werden.

Callen [173] multiplizierte die erste der zwei Eigenschaften

$$\begin{aligned} S^z &= S(S+1) - (S^z)^2 - S^- S^+, \\ S^z &= \frac{1}{2} (S^+ S^- - S^- S^+), \end{aligned}$$

mit einem Parameter  $\alpha$ , die zweite mit  $1 - \alpha$  und addierte beide, sodass sich die Darstellung

$$S^z = \alpha S(S+1) - \alpha (S^z)^2 + \frac{(1-\alpha)}{2} S^+ S^- - \frac{(1+\alpha)}{2} S^- S^+$$

ergibt. Unter Verwendung der symmetrischen Entkopplungen

$$\begin{aligned} \langle\langle S_l^- S_l^+ S_m^+; B \rangle\rangle &\xrightarrow{l \neq m} \langle S_l^- S_l^+ \rangle \langle\langle S_m^+; B \rangle\rangle + \langle S_l^- S_m^+ \rangle \langle\langle S_l^+; B \rangle\rangle, \\ \langle\langle (S_l^z)^2 S_m^+; B \rangle\rangle &\xrightarrow{l \neq m} \langle (S_l^z)^2 \rangle \langle\langle S_m^+; B \rangle\rangle, \end{aligned}$$

folgt die Callen-Entkopplung

$$\langle\langle S_l^z S_m^+; B \rangle\rangle \rightarrow \langle S_l^z \rangle \langle\langle S_m^+; B \rangle\rangle - \alpha \langle S_l^- S_m^+ \rangle \langle\langle S_l^+; B \rangle\rangle.$$

Im Vergleich zur RPA existiert hier ein zusätzlicher kinematischer Korrekturterm. Die Wahl des Parameters  $\alpha$  ist  $\alpha = \langle S^z \rangle^x / (1S^{x+1})$  mit  $x = 1$  [173] oder  $x \geq 3$ , wobei letztere zu qualitativ besseren Ergebnissen für Curie-Temperatur und Hochtemperaturverhalten in dreidimensionalen Systemen führt [175]. Weitere Modifikationen erfolgten beispielsweise durch eine Erweiterung der Entkopplung für Spin- $\frac{1}{2}$ -Systeme [176] mit

$$\begin{aligned} \langle\langle S_l^+ S_l^- S_m^+; S_n^- \rangle\rangle &\xrightarrow{l \neq m} \langle S_l^+ S_l^- \rangle \langle\langle S_m^+; S_n^- \rangle\rangle + \langle S_l^- S_m^+ \rangle \langle\langle S_l^+; S_n^- \rangle\rangle + A \delta_{l,n} \langle\langle S_m^+; S_n^- \rangle\rangle, \\ \langle\langle S_l^- S_l^+ S_m^+; S_n^- \rangle\rangle &\xrightarrow{l \neq m} \langle S_l^- S_l^+ \rangle \langle\langle S_m^+; S_n^- \rangle\rangle + \langle S_l^- S_m^+ \rangle \langle\langle S_l^+; S_n^- \rangle\rangle + B \delta_{l,n} \langle\langle S_m^+; S_n^- \rangle\rangle. \end{aligned}$$

Die Parameter  $A$  und  $B$  können zur Verbesserung der Resultate verwendet werden. So verschwindet bei Entkopplungen in der ersten Ordnung die Korrelationsfunktion  $\langle\langle (S_l^-)^2 S_l^z S_m^- \rangle\rangle$  nicht, wie bei  $S = 1/2$ -Systemen erwartet, sondern besitzt ein Tieftemperaturverhalten  $\propto T^3$  in der niedrigsten Ordnung. Durch eine geeignete Wahl der Parameter kann dieses auf einen Wert  $\propto T^{9/2}$  verbessert werden [176].



# Literaturverzeichnis

1. J. C. Maxwell, *Phil. Trans. R. Soc. Lond.* **155**, 459 [1865].
2. J. H. van Vleck, *The theory of electric and magnetic susceptibilities*, ed. by R. H. Fowler, P. Kapitza [Oxford University Press, 1932].
3. P. Weiss, *J. de Phys.* **6**, 661 [1907].
4. P. Weiss, *Phys. ZS* **9**, 358 [1908].
5. E. Ising, *Z. Phys.* **31**, 253 [1925].
6. W. Heisenberg, *Zeits. für Phys.* **38**, 411 [1926].
7. P. A. M. Dirac, *Proc. R. Soc. Lond. A* **112**, 661 [1926].
8. W. Heisenberg, *Zeits. für Phys.* **49**, 619 [1928].
9. J. Hubbard, *Proc. R. Soc. Lond. A* **276**, 238 [1963].
10. J. C. Bednorz, K. A. Müller, *Z. Phys. B - Condensed Matter* **64**, 189 [1986].
11. S. Chakravarty, B. I. Halperin, D. R. Nelson, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1057 [1988].
12. S. Chakravarty, B. I. Halperin, D. R. Nelson, *Phys. Rev. B* **39**, 2344 [1989].
13. D. Landau, K. Binder, *A Guide to Monte-Carlo Simulations in Statistical Physics* [Cambridge University Press, 2009].
14. M. Troyer, U.-J. Wiese, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 170201 [2005].
15. X. Wang, T. Xiang, *Phys. Rev. B* **56**, 5061 [1997].
16. M. Takahashi, *Prog. Theor. Phys. Suppl.* **87**, 233 [1986].
17. T. Holstein, H. Primakoff, *Phys. Rev.* **58**, 1098 [1940].
18. F. J. Dyson, *Phys. Rev.* **102**, 1217 [1956].
19. F. J. Dyson, *Phys. Rev.* **102**, 1230 [1956].
20. A. Auerbach, D. P. Arovas, in *Introduction to Frustrated Magnetism* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2011].
21. A. M. Läuchli, in *Introduction to Frustrated Magnetism* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2011].
22. H. Rosner, R. R. P. Singh, W. H. Zheng, J. Oitmaa, W. E. Pickett, *Phys. Rev. B* **67**, 014416 [2003].

23. H.-J. Schmidt, A. Lohmann, J. Richter, *Phys. Rev. B* **84**, 104443 [2011].
24. A. Lohmann, H.-J. Schmidt, J. Richter, *Phys. Rev. B* **89**, 014415 [2014].
25. D. J. J. Farnell, R. F. Bishop, in *Quantum Magnetism* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2004].
26. S. E. Krüger, R. Darradi, J. Richter, D. J. J. Farnell, *Phys. Rev. B* **73**, 094404 [2006].
27. R. Darradi *et al.*, *Phys. Rev. B* **78**, 214415 [2008].
28. A. Lohmann, MA thesis, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2012.
29. I. Junger, D. Ihle, J. Richter, A. Klümper, *Phys. Rev. B* **70**, 104419 [2004].
30. I. J. Junger, D. Ihle, L. Bogacz, W. Janke, *Phys. Rev. B* **77**, 174411 [2008].
31. S. W. Tjablikow, *Quantentheoretische Methoden des Magnetismus* [B. G. Teubner Verlagsgesellschaft Leipzig, 1968].
32. S. Doniach, E. H. Sondheimer, *Green's Functions for solid state physicists* [Imperial College Press, 1998].
33. N. Majlis, *The Quantum Theory of Magnetism* [World Scientific Publishing Co. Pte. Ltd., 2000].
34. W. Gasser, E. Heiner, K. Elk, *Greensche Funktionen in der Festkörper- und Vielteilchenphysik* [Wiley-VCH, 2001].
35. E. N. Economou, *Green's Functions in Quantum Physics*, ed. by M. Cardona *et al.* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2006].
36. W. Nolting, *Grundkurs Theoretische Physik 7, Viel-Teilchen-Theorie* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2005].
37. R. O. Kuzian, S.-L. Drechsler, *Phys. Rev. B* **75**, 024401 [2007].
38. J. Kondo, K. Yamaji, *Prog. Theor. Phys.* **47**, 807 [1972].
39. H. Shimahara, S. Takada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **60**, 2394 [1991].
40. A. F. Barabanov, V. M. Beresovksy, *Phys. Lett. A* **186**, 175 [1994].
41. S. Winterfeldt, D. Ihle, *Phys. Rev. B* **56**, 5535 [1997].
42. E. Rhodes, S. Scales, *Phys. Rev. B* **8**, 1994 [1973].
43. F. Suzuki, N. Shibata, C. Ishii, *J. Phys. Soc. Jpn.* **63**, 1539 [1994].
44. D. Ihle, C. Schindelin, A. Weiße, H. Fehske, *Phys. Rev. B* **60**, 9240 [1999].
45. L. Siurakshina, D. Ihle, R. Hayn, *Phys. Rev. B* **64**, 104406 [2001].
46. D. Ihle, C. Schindelin, H. Fehske, *Phys. Rev. B* **64**, 054419 [2001].
47. A. Mikheyenkov, N. Kozlov, A. Barabanov, *Phys. Lett. A* **373**, 693 [2009].
48. A. F. Barabanov, A. V. Mikheenkov, A. V. Shvartsberg, *Theor. and Math. Phys.* **168**, 1192 [2011].
49. I. J. Junger, D. Ihle, J. Richter, *Phys. Rev. B* **72**, 064454 [2005].

50. D. Schmalfuß, J. Richter, D. Ihle, *Phys. Rev. B* **70**, 184412 [2004].
51. D. Schmalfuß, J. Richter, D. Ihle, *Phys. Rev. B* **72**, 224405 [2005].
52. D. Schmalfuß, R. Darradi, J. Richter, J. Schulenburg, D. Ihle, *Phys. Rev. Lett.* **97**, 157201 [2006].
53. D. Schmalfuß, PhD thesis, Otto-von-Guericke Universität Magdeburg, 2005.
54. T. N. Antsygina, M. I. Poltavskaya, I. I. Poltavsky, K. A. Chishko, *Phys. Rev. B* **77**, 024407 [2008].
55. T. Butz, *Fouriertransformation für Fußgänger* [Vieweg + Teubner Verlag, 2011].
56. P. J. Jensen, F. Aguilera-Granja, *Phys. Lett. A* **269**, 158 [2000].
57. J. Richter, *Low Temp. Phys.* **31**, 695 [2005].
58. H.-J. Schmidt, *P. Phys. A: Math. Gen.* **35**, 6545 [2002].
59. D. Ihle, Private Kommunikation, 2008.
60. N. D. Mermin, H. Wagner, *Phys. Rev. Lett.* **17**, 1133 [1966].
61. S. Q. Bao, H. Zhao, J. L. Shen, G. Z. Yang, *Phys. Rev. B* **53**, 735 [1996].
62. I. J. Junger, D. Ihle, J. Richter, *Phys. Rev. B* **80**, 064425 [2009].
63. M. Härtel, J. Richter, O. Götze, D. Ihle, S.-L. Drechsler, *Phys. Rev. B* **87**, 054412 [2013].
64. M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, S.-L. Drechsler, *Phys. Rev. B* **78**, 174412 [2008].
65. M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, S.-L. Drechsler, *Phys. Rev. B* **81**, 174421 [2010].
66. H. J. Mikeska, A. K. Kolezhuk, in *Quantum Magnetism*, ed. by U. Schöllwöck, J. Richter, D. J. J. Farnell, R. F. Bishop [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2004].
67. H. Bethe, *Z. Phys.* **71**, 203 [1931].
68. H. P. Bader, R. Schilling, *Phys. Rev. B* **19**, 3556 [1979].
69. T. Hamada, J. Kane, N. S. Y. Natsume, *J. Phys. Soc. Jpn.* **57**, 1891 [1988].
70. Y. Natsume, T. Hamada, S. Nakagawa, J. Kane, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 3869 [1989].
71. H. T. Lu, Y. J. Wang, S. Qin, T. Xiang, *Phys. Rev. B* **74**, 134425 [2006].
72. D. V. Dmitriev, V. Y. Krivnov, A. A. Ovchinnikov, *Phys. Rev. B* **56**, 5985 [1997].
73. T. Tonegawa, I. Harada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **58**, 2902 [1989].
74. R. Zinke, S.-L. Drechsler, J. Richter, *Phys. Rev. B* **79**, 094425 [2009].
75. J. Sirker, *Phys. Rev. B* **81**, 014419 [2010].
76. D. V. Dmitriev, V. Y. Krivnov, *Phys. Rev. B* **73**, 024402 [2006].
77. D. V. Dmitriev, V. Y. Krivnov, J. Richter, *Phys. Rev. B* **75**, 014424 [2007].
78. J. Sudan, A. Lüscher, A. M. Läuchli, *Phys. Rev. B* **80**, 140402(R) [2009].
79. T. Hikihara, L. Kecke, T. Momoi, A. Furusaki, *Phys. Rev. B* **78**, 144404 [2008].

80. K. Penc, M. Läuchli, in *Introduction to Frustrated Magnetism* [Springer-Verlag Berlin, Heidelberg, New York, 2011].
81. L. Kecke, T. Momoi, A. Furusaki, *Phys. Rev. B* **76**, 060407(R) [2007].
82. A. V. Chubukov, *Phys. Rev. B* **44**, 4693 [1991].
83. F. Heidrich-Meisner, A. Honecker, T. Vekua, *Phys. Rev. B* **74**, 020403(R) [2006].
84. M. T. Hutchings, G. Shirane, R. J. Birgeneau, S. L. Holt, *Phys. Rev. B* **5**, 1999 [1972].
85. I. U. Heilmann, G. Shirane, Y. Endoh, R. J. Birgeneau, S. L. Holt, *Phys. Rev. B* **18**, 3530 [1978].
86. C. P. Landee, R. D. Willett, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 463 [1979].
87. C. Dupas, J. P. Renard, J. Seiden, A. Cheikh-Rouhou, *Phys. Rev. B* **25**, 3216 [1982].
88. M. Takahashi *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 746 [1991].
89. Y. Nakazawa *et al.*, *Phys. Rev. B* **46**, 8906 [1992].
90. K. Shimizu *et al.*, *Phys. Rev. B* **74**, 172413 [2006].
91. Y. Mizuno *et al.*, *Phys. Rev. B* **57**, 5326 [1998].
92. N. Motoyama, H. Eisaki, S. Uchida, *Phys. Rev. Lett.* **76**, 3212 [1996].
93. V. V. Mazurenko, S. L. Skornyakov, A. V. Kozhevnikov, F. Mila, V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **75**, 224408 [2007].
94. J. B. Goodenough, *Phys. Rev.* **100**, 564 [1955].
95. J. Kanamori, *J. Phys. Chem. Solids* **10**, 87 [1959].
96. P. W. Anderson, *Solid State Phys.* **14**, 99 [1963].
97. M. Enderle *et al.*, *Europhys. Lett.* **70**, 237 [2005].
98. G. Kamieniarz *et al.*, *Comp. Phys. Comm.* **147**, 716 [2002].
99. M. Hase *et al.*, *Phys. Rev. B* **70**, 104426 [2004].
100. L. Capogna *et al.*, *Phys. Rev. B* **71**, 140402(R) [2005].
101. S.-L. Drechsler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **98**, 077202 [2007].
102. S.-L. Drechsler *et al.*, *Europhys. Lett.* **73**, 83 [2006].
103. J. Richter, M. Härtel, D. Ihle, S.-L. Drechsler, *J. Phys.: Conf. Ser.* **145**, 012064 [2009].
104. M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, J. Schnack, S.-L. Drechsler, *Phys. Rev. B* **84**, 104411 [2011].
105. M. Härtel, J. Richter, D. Ihle, *Phys. Rev. B* **83**, 214412 [2011].
106. I. J. Junger, Private Kommunikation.
107. W. H. Press, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling, B. P. Flannery, *Numerical Recipes 3rd Edition: The Art of Scientific Computing* [Cambridge University Press, 2007].
108. M. E. Fisher, *Am. J. Phys.* **32**, 343 [1964].
109. G. S. Joyce, *Phys. Rev.* **115**, 478 [1967].

110. M. Yamada, M. Takahashi, *J. Phys. Soc. Jpn.* **55**, 2024 [1986].
111. A. Klümper, D. C. Johnston, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 4701 [2000].
112. M. Yamada, *J. Phys. Soc. Jpn.* **59**, 848 [1990].
113. D. V. Dmitriev, V. Y. Krivnov, *Phys. Rev. B* **82**, 054407 [2010].
114. J. Sirker *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 144403 [2011].
115. T. Masuda, A. Zheludev, A. Bush, M. Markina, A. Vasiliev, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 177201 [2004].
116. S.-L. Drechsler *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **94**, 039705 [2005].
117. V. Markovich *et al.*, *Phys. Rev. B* **62**, 14186 [2000].
118. J. Sznajd, *Phys. Rev. B* **64**, 052401 [2001].
119. E. J. Neves, J. F. Perez, *Phys. Lett. A* **114**, 331 [1986].
120. C. Hamer, Z. Weihong, P. Arndt, *Phys. Rev. B* **46**, 6276 [1992].
121. R. F. Bishop *et al.*, *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 6887 [2000].
122. Z. Weihong, J. Oitmaa, C. J. Hamer, *Phys. Rev. B* **43**, 8321 [1991].
123. P. Chandra, P. Coleman, A. I. Larkin, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 88 [1990].
124. N. Shannon, B. Schmidt, K. Penc, P. Thalmeier, *Eur. Phys. J. B* **38**, 599 [2004].
125. N. Shannon, T. Momoi, P. Sindzingre, *Phys. Rev. Lett.* **96**, 027213 [2006].
126. J. Richter, R. Darradi, J. Schulenburg, D. J. J. Farnell, H. Rosner, *Phys. Rev. B* **81**, 174429 [2010].
127. B. Schmidt, P. Thalmeier, N. Shannon, *Phys. Rev. B* **76**, 125113 [2007].
128. H. Feldner, D. C. Cabra, G. L. Rossini, *Phys. Rev. B* **84**, 214406 [2011].
129. A. A. Tsirlin *et al.*, *Phys. Rev. B* **84**, 014429 [2011].
130. A. A. Tsirlin, H. Rosner, *Phys. Rev. B* **79**, 214417 [2009].
131. C. J. Ballhausen, H. B. Gray, *Inorg. Chem.* **1**, 111 [1962].
132. A. A. Tsirlin, R. Nath, C. Geibel, H. Rosner, *Phys. Rev. B* **77**, 104436 [2008].
133. V. V. Mazurenko, F. Mila, V. I. Anisimov, *Phys. Rev. B* **73**, 014418 [2006].
134. A. A. Tsirlin *et al.*, *Phys. Rev. B* **81**, 174424 [2010].
135. R. Nath *et al.*, *Phys. Rev. B* **80**, 214430 [2009].
136. M. Skoulatos *et al.*, *Europhys. Lett.* **88**, 57005 [2009].
137. E. E. Kaul, PhD thesis, Max-Planck Institut für chemische Physik fester Stoffe, Dresden, 2005.
138. E. Kaul, H. Rosner, N. Shannon, R. Shpanchenkoa, C. Geibel, *J. Magn. Magn. Mater.* **272-276**, 922 [2004].
139. L. Bossoni *et al.*, *Phys. Rev. B* **83**, 014412 [2011].

140. R. Nath, A. A. Tsirlin, H. Rosner, C. Geibel, *Phys. Rev. B* **78**, 064422 [2008].
141. L. Siurakshina, D. Ihle, R. Hayn, *Phys. Rev. B* **61**, 14601 [2000].
142. B. I. Halperin, P. C. Hohenberg, *Phys. Rev.* **188**, 898 [1969].
143. A. V. Mikheyenkov, A. V. Shvartsberg, A. F. Barabanov, *J. Exp. Theor. Phys.* **98**, 156 [2013].
144. M. Takahashi, *Phys. Rev. B* **40**, 2494 [1989].
145. K. J. Runge, *Phys. Rev. B* **45**, 12292 [1992].
146. D. J. J. Farnell, R. Zinke, J. Schulenburg, J. Richter, *J. Phys.: Condens. Matter* **21**, 406002 [2009].
147. T. Nagamiya, *Prog. Theor. Phys.* **6**, 342 [1951].
148. N. Karchev, *Phys. Rev. B* **55**, 6372 [1997].
149. P. Kopietz, S. Chakravarty, *Phys. Rev. B* **40**, 4858 [1989].
150. K. Yamaji, J. Kondo, *Phys. Lett. A* **45**, 317 [1973].
151. Y. C. Chen, H. H. Chen, F. Lee, *Phys. Rev. B* **43**, 11082 [1991].
152. P. Kopietz, G. Castilla, *Phys. Rev. B* **43**, 11100 [1991].
153. E. Manousakis, R. Salvador, *Phys. Rev. B* **39**, 575 [1989].
154. P. Hasenfratz, F. Niedermayer, *Phys. Lett. B* **268**, 231 [1991].
155. A. Auerbach, D. P. Arovas, *Phys. Rev. Lett.* **61**, 617 [1988].
156. M. Greven *et al.*, *Phys. Rev. Lett.* **72**, 1096 [1994].
157. M. S. Makivić, H.-Q. Ding, *Phys. Rev. B* **43**, 3562 [1991].
158. S. Henning, F. Körmann, J. Kienert, W. Nolting, S. Schwieger, *Phys. Rev. B* **75**, 214401 [2007].
159. Y. Chen, Y. Xiang, C.-C. Song, *Commun. Theor. Phys.* **54**, 747 [2010].
160. H. Mori, *Prog. Theor. Phys.* **34**, 399 [1965].
161. A. V. Sherman, *J. Phys. A: Math. Gen.* **20**, 569 [1987].
162. A. Sherman, M. Schreiber, *Phys. Rev. B* **65**, 134520 [2002].
163. N. M. Plakida, *Theor. and Math. Phys.* **168**, 1303 [2011].
164. P. Rubin, A. Sherman, M. Schreiber, *Phys. Lett. A* **376**, 1062 [2012].
165. Y. A. Tserkovnikov, *Theor. and Math. Phys.* **49**, 993 [1981].
166. Y. A. Tserkovnikov, *Theor. and Math. Phys.* **118**, 85 [1999].
167. A. Belkasri, J. L. Richards, *Phys. Rev. B* **50**, 12896 [1994].
168. V. G. Vaks, A. I. Larkin, S. A. Pikin, *Sov. phys. JETP* **26**, 188 [1968].
169. V. G. Vaks, A. I. Larkin, S. A. Pikin, *Sov. phys. JETP* **26**, 647 [1986].
170. R. B. Stinchcombe, *J. Phys. C: Solid St. Phys.* **3**, 2266 [1970].

171. D. H.-Y. Yang, Y.-L. Wang, *Phys. Rev. B* **12**, 1057 [1975].
172. I. J. Junger, PhD thesis, Universität Leipzig, 2010.
173. H. B. Callen, *Phys. Rev.* **130**, 890 [1963].
174. D. A. Yablonskiy, *Phys. Rev. B* **44**, 4467 [1991].
175. J. A. Copeland, H. A. Gersch, *Phys. Rev.* **143**, 236 [1966].
176. M. D. C. Filho, I. P. Fittipaldi, *Phys. Rev. B* **7**, 4941 [1973].





## curriculum vitae

### Persönliche Daten

Name, Vorname: Härtel, Moritz  
Adresse: Danzstaße 13  
39104 Magdeburg  
Geburtsdatum: 20.07.1982  
Geburtsort: Ankum  
Familienstand: ledig  
Staatsangehörigkeit: deutsch

### Schulische Ausbildung

1988-1992: Grundschule für Schüler aller Bekenntnisse,  
Fürstenau  
1992-2001: Integrierte Gesamtschule,  
Fürstenau  
Juni 2001: Abschluss: Abitur

### Zivildienst

Oktober 2001-August 2002: an der Tagesbildungsstätte "Horst-Koesling-Schule",  
Osnabrück

### Studium

Oktober 2002-März 2008: Otto-von-Guericke Universität Magdeburg  
Physik (Diplom)  
Titel der Diplomarbeit Greenfunktionsmethode für eindimensionale Quanten-  
Spinsysteme im äußeren Feld  
Abschlussnote 1.3

### Beruflicher Werdegang

März 2008-September 2010 Tätigkeit als Stipendiat in der Arbeitsgruppe  
"Physik der kondensierten Materie II"  
Oktober 2010-März 2013 Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Arbeitsgruppe  
"Physik der kondensierten Materie II"  
06. Januar 2014-07. März 2014 Tätigkeit als Physiklehrer der Jahrgangsstufen 8,9,10 und 12  
an der Gaußschule Braunschweig



## Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne die unzulässige Hilfe Dritter und nur unter Verwendung der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Alle aus fremden Quellen übernommenen Ergebnisse und Gedanken sind als solche kenntlich gemacht.

Die Arbeit wurde in gleicher oder ähnlicher Form bisher weder im Inland noch im Ausland einer anderen Prüfungskommission vorgelegt. Sie ist Teil meines ersten Promotionsgesuches.

Die vorliegende Dissertation wurde unter der Betreuung von Prof. Dr. Johannes Richter an der Fakultät für Naturwissenschaften der Otto-von-Guericke Universität Magdeburg angefertigt. Ich erkenne die entsprechende Promotionsordnung an.

Moritz Härtel

Magdeburg, d. 21. Oktober 2014