

# Clusterentwicklungen für dimerisierte Spinsysteme

Vom Fachbereich Physik der Universität Hannover

zur Erlangung des Grades  
Doktor der Naturwissenschaften  
– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

von

Dipl. Phys. Martin Müller  
geboren am 10.07.1972 in Hildesheim

2002

Referent: Prof. Dr. H.-J. Mikeska  
Korreferent: Prof. Dr. H.-U. Everts  
Tag der Promotion: 25. Juni 2002

*Melanie*



# Cluster Expansions for Dimerized Spin Systems

## Abstract

The subject of the present work are dimerized spin  $1/2$  systems in one, two and three dimensions. The models are investigated perturbatively by means of cluster expansion. This method makes it possible to study systems even in two and three dimension up to high orders.

Starting with a generic HAMILTON-Operator which includes both bilinear and biquadratic interaction terms, the groundstate energies and the low lying excitations of the alternating spin chain und the spin ladder are calculated. Well-known results from BETHE ansatz and bosonization are used to verify the series.

Based on this model, two specific one-dimensional problems are investigated in more detail: the first one is the incommensurate regime of the generalized spin ladder, which was previously analyzed by other approximation techniques. This regime is characterized by a minimum of the dispersion between  $0$  and  $\pi$ . The second problem deals with a quantum phase transition in the spin ladder with additional cyclic four-spin interaction (ring exchange). The excitation gap which is always present in the regular spin ladder can be reduced by taking the ring exchange into account. Within the region which is accessible by perturbation theory a transition line is presented on which the gap vanishes. For further characterization of the phase transition critical exponents are calculated which give a connection between exchange strength and gap size.

Within the range of the higher-dimensional spin dimer systems the compounds  $\text{KCuCl}_3$ ,  $\text{TiCuCl}_3$  (3d) and  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  (2d) are studied. To clarify the microscopic interactions, dispersion relations which take all reasonable (i.e. evident from the chemical structure) interactions into account are computed. In the case of  $\text{KCuCl}_3$  and  $\text{TiCuCl}_3$  there are nine and in the case of  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  there are ten spin spin interactions considered. The strength of the exchange parameters is determined by comparison with inelastic neutron scattering data. For the above-mentioned substances the interaction constants are evaluated to match the dispersion relation with the experimental data to a high accuracy. Finally, the dynamical structure factor which is limited to the singlet-triplet transition is calculated perturbatively for the compounds  $\text{KCuCl}_3$  and  $\text{TiCuCl}_3$ . Since it is proportional to the differential cross section, one is able to establish a relationship to inelastic neutron scattering experiments.

**Keywords:** cluster expansion, spin ladders, weakly-coupled dimers

**PACS:** 75.10.Jm, 75.50.Ee, 75.40.Mg



# Clusterentwicklungen für dimerisierte Spinsysteme

## Kurzzusammenfassung

Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind dimerisierte Spin-1/2-Systeme in einer, zwei und drei Dimensionen. Die Untersuchung dieser Modelle geschieht größtenteils störungstheoretisch mittels Clusterentwicklung. Diese Methode ermöglicht es, dass man auch im Bereich der zwei- oder dreidimensionalen Systeme zu hohen Ordnungen vordringen kann.

Ausgehend von einem allgemeinen HAMILTON-Operator, der neben bilinearen auch biquadratische Wechselwirkungsterme enthält, werden die Grundzustandsenergie und die niederenergetischen Anregungen der alternierenden Spinkette und der Spinleiter untersucht. Dabei dienen bekannte Resultate aus dem Bethe-Ansatz und der Bosonisierung zur Überprüfung der Validität der Reihenentwicklungen.

Darauf aufbauend werden zwei konkrete eindimensionale Probleme behandelt: In Erweiterung der Ergebnisse anderer Näherungsmethoden wird der inkommensurable Bereich der verallgemeinerten Spinleiter studiert. Dieser zeichnet sich dadurch aus, dass das Minimum der Dispersion bei Werten des Wellenvektors zwischen 0 und  $\pi$  liegt. Das zweite Problem beschäftigt sich mit dem Quantenphasenübergang in einer Spinleiter mit zusätzlicher zyklischer Vier-Spin-Wechselwirkung (Ringaustausch). Die Anregungslücke, die die reguläre Spinleiter immer besitzt, kann durch die Hinzunahme des Ringaustausches geschlossen werden. Für den störungstheoretisch zugänglichen Bereich wird eine Übergangslinie angegeben, auf der die Anregungslücke verschwindet. Zur weiteren Charakterisierung des Phasenübergangs werden kritische Exponenten berechnet, welche einen Zusammenhang zwischen Wechselwirkungsstärke und Größe der Anregungslücke herstellen.

Im Bereich der höherdimensionalen Spin-Dimer-Systeme werden die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$ ,  $\text{TiCuCl}_3$  (3D) und  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  (2D) studiert. Zur Aufklärung der mikroskopischen Wechselwirkungsstruktur werden Dispersionsrelationen störungstheoretisch berechnet, welche alle sinnvollen, aus der Struktur ersichtlichen Kopplungskonstanten berücksichtigen. Für  $\text{KCuCl}_3$ ,  $\text{TiCuCl}_3$  werden neun und für  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  zehn Spin-Spin-Wechselwirkungen herangezogen. Um die Größe der Wechselwirkungen bestimmen zu können, werden die Dispersionsrelationen an experimentelle Daten angepasst, welche aus inelastischer Neutronenstreuung stammen. Für die o.g. Substanzen werden Wechselwirkungssätze angegeben, sodass die experimentellen Daten mit sehr guter Genauigkeit wiedergegeben werden. Schließlich wird der auf den Singlett-Triplett-Übergang beschränkte dynamische Strukturfaktor für die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TiCuCl}_3$  störungstheoretisch berechnet. Da dieser direkt proportional zum differentiellen Streuquerschnitt ist, kann damit ein direkter Bezug zur inelastischen Neutronenstreuung hergestellt werden.

**Schlagworte:** Clusterentwicklung, Spinleitern, schwach-gekoppelte Dimere

**PACS:** 75.10.Jm, 75.50.Ee, 75.40.Mg





# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>Kapitel 1. Clusterentwicklung für Quanten-(Spin-)Systeme</b>	<b>5</b>
1.1 Methodik und Linked-Cluster-Theorem . . . . .	6
1.1.1 Voraussetzungen . . . . .	6
1.1.2 Formalismus . . . . .	7
1.2 Graphen . . . . .	12
1.2.1 Grundlegende Begriffe . . . . .	13
1.2.2 Darstellung . . . . .	13
1.2.3 Isomorphismus und Automorphismus . . . . .	14
1.2.4 Kanonische Nummerierung (Labeling) . . . . .	15
1.2.5 Erzeugung ungefärbter und gefärbter Graphen . . . . .	16
1.2.6 Einbettungen und Subcluster . . . . .	17
1.3 Rekursive Störungstheorie . . . . .	19
1.3.1 Störungstheorie für nichtentartete Zustände . . . . .	20
1.3.2 Störungstheorie für entartete Zustände . . . . .	21
1.4 Der dynamische Strukturfaktor . . . . .	22
1.4.1 Formalismus zur Cluster-Dimer-Entwicklung . . . . .	23
1.5 Verarbeitung von Potenzreihen . . . . .	25
1.5.1 Gewinnung von Potenzreihen mehrerer Variablen . . . . .	25
1.5.2 Extrapolation singulärer Potenzreihen . . . . .	26
<b>Kapitel 2. Eindimensionale dimerisierte Spinsysteme</b>	<b>29</b>
2.1 Spezialfälle der verallgemeinerten Spinleiter . . . . .	32
2.2 Der HEISENBERG-Antiferromagnet . . . . .	35
2.2.1 Grundzustandsenergie . . . . .	35
2.2.2 Dispersion . . . . .	39
2.2.3 Singlett-Triplett-Übergangsstärken . . . . .	41
2.3 Die verallgemeinerte Spinleiter . . . . .	45
2.3.1 Dispersion . . . . .	45
2.3.2 Inkommensurabler Bereich . . . . .	47
2.4 Ringaustausch . . . . .	50
2.4.1 Dispersion . . . . .	52
2.4.2 Phasendiagramm . . . . .	55

<b>Kapitel 3. Wechselwirkende dimerisierte Spinketten</b>	<b>59</b>
3.1 Magnetische Anregungen in $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TlCuCl}_3$ . . . . .	60
3.1.1 Modellierung der Wechselwirkungsstruktur . . . . .	61
3.1.2 Effektives Modell . . . . .	64
3.1.3 Mikroskopisches Modell . . . . .	67
3.2 Magnetische Anregungen in PHCC . . . . .	74
3.2.1 Wechselwirkungsstruktur . . . . .	74
3.2.2 Effektives Modell . . . . .	76
3.2.3 Mikroskopisches Modell . . . . .	77
3.3 Der dynamische Strukturfaktor . . . . .	80
<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>89</b>
<b>Anhang A. Numerische Methoden</b>	<b>93</b>
A.1 Basisimplementierung . . . . .	93
A.1.1 Basisdarstellung . . . . .	93
A.1.2 Basisaufbau . . . . .	93
A.1.3 Zugriff auf Basiszustände . . . . .	94
A.2 Darstellung der Graphen . . . . .	97
A.3 Berechnung der Koeffizienten . . . . .	98
A.4 Gitterimplementierungen . . . . .	100
A.4.1 Das Gitter für $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TlCuCl}_3$ . . . . .	100
A.4.2 Das Gitter für PHCC . . . . .	101
A.5 Details zur Subcluster-Subtraktion . . . . .	103
A.5.1 Grundzustandsenergie . . . . .	103
A.5.2 Anregungsenergie . . . . .	104
<b>Anhang B. Nebenrechnungen zum Strukturfaktor</b>	<b>109</b>
B.1 Systeme mit einem Basisknoten . . . . .	109
B.2 Systeme mit zwei Basisknoten . . . . .	110
<b>Anhang C. Tabellierte Störungsreihen</b>	<b>113</b>
C.1 Der HEISENBERG-Antiferromagnet . . . . .	113
C.2 Ringaustausch . . . . .	115
<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>117</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>119</b>
<b>Index</b>	<b>127</b>

## Einleitung

Bereits die Atome und Moleküle als elementare Bausteine unserer stofflichen Welt besitzen im Allgemeinen ein magnetisches Moment, das sich seinerseits aus den magnetischen Bahn- und Spinnmomenten der Hüllenelektronen und der Nukleonen zusammensetzt. Das kollektive Zusammenspiel dieser magnetischen Momente ist aus dem modernen Alltag nicht mehr wegzudenken: Beispielsweise werden Permanentmagnete für Elektromotoren, Weichmagnete für Transformatoren und Schaltelemente sowie dünne magnetische Schichten für Massenspeichermedien verwendet.

Spinfreiheitsgrade spielen auch in der modernen Festkörperphysik eine bedeutende Rolle. Ein in den letzten Jahren neu entstandenes Gebiet ist die so genannte Magnetoelektronik, die die Wechselwirkung zwischen Spins und elektrischen Strömen untersucht. Insbesondere Effekte wie CMR (*colossal magnetoresistance*<sup>1</sup>) und GMR (*giant magnetoresistive effekt*) sollen in den dynamischen Massenspeichermedien der nächsten Generation für eine weitere Miniaturisierung sorgen.

Ein weiteres Gebiet ist die so genannte Spintronik, welche im Gegensatz zur bisherigen Halbleiterelektronik neben der elektrischen Ladung auch den Spin der Ladungsträger zur Informationsdarstellung und -auswertung nutzt. Daher bietet die Spintronik eine große Perspektive in Hinblick auf die Entwicklung von quantenlogischen Gattern und damit von Quanten-Computern.

Bereits 1926 wurde von HEISENBERG zur Beschreibung wechselwirkender Spinfreiheitsgrade ein mikroskopisches Modell<sup>2</sup> entwickelt, welches die Wechselwirkung benachbarter Spins auf einem Gitter berücksichtigt:

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

Die im Austauschintegral  $J_{ij}$  zusammengefasste effektive Wechselwirkung beruht einerseits auf dem PAULI-Ausschließungsprinzip und andererseits auf der COULOMB-Abstoßung.

Der obige HAMILTON-Operator stellt den einfachsten Fall einer isotropen Austausch-Wechselwirkung zwischen Spins mit  $S = 1/2$  dar. Für größere Spins wird es noch weitere Terme geben: Beispielsweise treten für  $S = 1$  in der allgemeinen Form sowohl bilineare als auch biquadratische Beiträge auf. In magnetischen Substanzen sind diese Austausch-Wechselwirkungen normalerweise dominierend. Daneben gibt es aber auch schwächere wie etwa Anisotropien und DZYALOSHINSKII-MORIYA-Wechselwirkungen.<sup>3</sup>

Auf den ersten Blick scheint das HEISENBERG-Modell aufgrund seiner kompakten und schlichten Form einfach lösbar zu sein. Auf den zweiten Blick stellt man sehr schnell fest,

dass die Lösbarkeit und damit die aus diesem Modell hervorgehenden vielfältigen Eigenschaften nicht nur von der Spinlänge sondern insbesondere auch von der geometrischen Struktur des Gitters abhängen. Schon in einer Dimension gibt es grundlegende Unterschiede zwischen Spinketten mit ganzzahligem und halbzahligem Spin, was HALDANE 1983 in seiner gleichnamigen Hypothese<sup>4</sup> zum Ausdruck brachte: Demnach besäßen Ketten mit ganzzahligem Spin exponentiell zerfallende Spin-Spin-Korrelationen und eine endliche Anregungslücke, währenddessen Ketten mit halbzahligem Spin algebraisch zerfallende Spin-Spin-Korrelationen und eine verschwindende Anregungslücke hätten.

Die erste Lösung des HEISENBERG-Modells in einer Dimension geht auf eine Arbeit von BETHE zurück. Bereits 1931 stellte er für den Grundzustand des  $S = 1/2$  HEISENBERG-Antiferromagneten (HAFM) eine Vielteilchenwellenfunktion auf, welche auf die so genannten BETHE-Ansatz-Gleichungen<sup>5</sup> führte. Später konnte damit das niederenergetische Spektrum des HAFM exakt berechnet werden. Die Technik des BETHE-Ansatzes konnte in den folgenden Jahren auf eine Reihe anderer Modelle erfolgreich übertragen werden. Grundsätzlich sind aber nur wenige physikalisch interessante Modelle analytisch lösbar.

Exakt lösbare zwei- oder dreidimensionale Spinmodelle sind eher von pathologischer Natur und liefern daher keine relevanten Informationen über Eigenschaften realer magnetischer Materialien. Eine besondere Bedeutung werden deshalb approximativ analytischen und numerischen Methoden zuteil, um auch experimentell verifizierbare Eigenschaften vorhersagen zu können. Zu den bedeutendsten analytischen Methoden können Spinwellentheorie, Störungstheorie jeder Art, Bosonisierung und Abbildungen auf effektive Feldtheorien gezählt werden. Die wichtigsten numerischen Methoden sind heutzutage die exakte Diagonalisierung endlicher Systeme,<sup>6,7</sup> DMRG (*density matrix renormalization group*<sup>8–10</sup>) und QMC (*Quanten Monte Carlo*<sup>11,12</sup>).

In der vorliegenden Arbeit beschäftigen wir uns mit einer bestimmten Variante der Störungstheorie, nämlich mit der so genannten Clusterentwicklung.<sup>13–15</sup> Diese Technik berücksichtigt die Topologie des zu Grunde liegenden Gitters in der Weise, dass aus einer endlichen Anzahl von Potenzreihen, die auf kleinen Untereinheiten (Cluster) berechnet werden, die Störungsreihe für das gesamte Gitter aufgebaut werden kann. Damit können physikalische Größen, wie etwa die Grundzustandsenergie oder die niederenergetischen Anregungen bei  $T = 0$ , im thermodynamischen Limes mit Hilfe von Potenzreihen bis zu hohen Ordnungen berechnet werden. Wegen der strikten Unterteilung in Clustergenerierung einerseits und eigentlicher Störungsentwicklung andererseits können im Rahmen einer algorithmischen Umsetzung für beide Teilprobleme optimale Lösungen gefunden werden.

Ihre besondere Eignung zeigt diese Methode für dimerisierte Spinsysteme, welche aus stark gekoppelten  $S = 1/2$ -Spinpaaren bestehen, die ihrerseits schwach miteinander wechselwirken. Solche dimerisierte Systeme haben in den letzten Jahren großes Interesse geweckt, da sie viele ungewöhnliche Eigenschaften zeigen. Zur dieser Familie gehört beispielsweise die Substanz  $\text{TiCuCl}_3$ , bei der in hohen Magnetfeldern ein Phasenübergang beobachtet wurde, der als BOSE-EINSTEIN-Kondensation von Magnonen charakterisiert werden kann.<sup>16</sup> Ei-

ne weiteres Beispiel ist  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . Diese Substanz besitzt ein quasi-zweidimensionales SHASTRY-SUTHERLAND-Gitter und zeigt eine Reihe von unkonventionellen Magnetisierungsplateaus, deren Ursprünge bis heute noch nicht völlig verstanden sind.<sup>17,18</sup>

Im anschließenden Kapitel werden die allgemeinen Grundlagen der Clusterentwicklung beschrieben. Neben einer kurzen Herleitung des *Linked-Cluster-Theorems* gibt es eine Darstellung der wesentlichen, für eine algorithmische Umsetzung notwendigen Begriffe und Eigenschaften von *Graphen*. Weiterhin wird die rekursive RAYLEIGH-SCHRÖDINGER-Störungstheorie skizziert und eine Möglichkeit aufgezeigt, mit der die störungstheoretische Berechnung des dynamischen Strukturfaktors durchgeführt werden kann. Den Abschluss dieses Kapitels bildet eine Zusammenstellung von verwendeten Methoden zur Weiterverarbeitung und Extrapolation singulärer Potenzreihen.

Im zweiten Kapitel wird die Clusterentwicklung zunächst auf ausgesuchte eindimensionale Modelle angewendet. Ausgehend von einem allgemeinen HAMILTON-Operator, der neben bilinearen auch biquadratische Wechselwirkungsterme enthält, werden die Grundzustandsenergie und die niederenergetischen Anregungen des HEISENBERG-Antiferromagneten (HAFM) und der verallgemeinerten Spinleiter störungstheoretisch untersucht. Für einige Spezialfälle dieses HAMILTON-Operators gibt es sowohl exakte Resultate aus dem BETHE-Ansatz, als auch „quasi-exakte“ Resultate aus feldtheoretischen Methoden. Beide werden benutzt, um die Zuverlässigkeit der Störungsentwicklung zu überprüfen. Daneben entwickeln wir den dynamischen Strukturfaktor der Singlett-Triplett-Anregung für den HAFM bis zu hohen Ordnungen.

Darauf aufbauend untersuchen wir in diesem Kapitel zwei aktuelle physikalische Probleme. Zum einen studieren wir den inkommensurablen Bereich der verallgemeinerten Spinleiter, in dem das Minimum der Dispersionsrelation weder bei  $q = 0$  noch bei  $q = \pi$ , sondern bei Werten dazwischen liegt. Diese Betrachtung baut auf verschiedenen Ergebnissen anderer Näherungsmethoden auf.<sup>19–21</sup> Zum anderen studieren wir den Quantenphasenübergang in einer Spinleiter mit einer zyklischen Vier-Spin-Wechselwirkung (*Ringaustausch*), die einerseits durch Messungen mit Hilfe von INS (*inelastischer Neutronenstreuung*<sup>22</sup>) und NMR (*nuclear magnetic resonance*<sup>23–25</sup>) an  $\text{Ca}_8\text{La}_6\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  bzw.  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  motiviert und andererseits durch theoretische Überlegungen vorhergesagt werden kann.<sup>26–28</sup>

Gegenstand des dritten Kapitels ist die Anwendung der Clusterentwicklung auf zwei- und dreidimensionale dimerisierte Spinsysteme. Insbesondere werden Dispersionsrelationen für die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$ ,  $\text{TiCuCl}_3$  und  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  (PHCC) berechnet, sodass durch Vergleich mit INS-Daten<sup>29–31</sup> die Wechselwirkungsstruktur, welche alle relevanten, aus der chemischen Struktur ersichtlichen Spin-Spin-Kopplungen enthält, aufgeklärt wird. Dabei verwenden wir sowohl ein effektives als auch ein mikroskopisches Modell. Um einen direkten Bezug zum Experiment herstellen zu können, wird der dynamische Strukturfaktor für den Singlett-Triplett-Übergang in den Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TiCuCl}_3$  störungstheoretisch entwickelt.

Schließlich sind in den Anhängen einige formale technische Details der Clusterentwicklung

zusammengestellt. Beispielsweise findet man hier Betrachtungen zur Ressourcen sparenden Implementierung der benötigten Basiszustände und der Entwicklungskoeffizienten. Weiterhin ergeben sich aus der komplexen Struktur von  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  bzw. PHCC einige Probleme bei der algorithmischen Gitterdarstellung, deren Lösungen kurz skizziert werden. Am Beispiel einer Spinleiter wird die Clusterentwicklung explizit auf kleinen Clustern durchgeführt, um die Technik insgesamt transparenter erscheinen zu lassen.

## KAPITEL 1

# Clusterentwicklung für Quanten-(Spin-)Systeme

Das folgende Kapitel beschäftigt sich mit der Methodik und den damit verbundenen Begrifflichkeiten der Clusterentwicklung, welche eine numerische Methode zur Erzeugung von Potenzreihen physikalischer Größen ist.

Im Gegensatz zu anderen Verfahren, wie etwa exakte Diagonalisierung,<sup>6,7</sup> Quanten-Monte-Carlo-Simulationen<sup>11,12</sup> und Dichtematrix-Renormierungsgruppen-Analysen,<sup>8-10</sup> die für endliche Systeme ausgelegt sind und deshalb ein *finite-size-scaling* benötigen, um Aussagen über Eigenschaften im thermodynamischen Limes treffen zu können, sind die mittels der Clusterentwicklung gewonnenen Größen für unendlich große System korrekt. Weiterhin ist der numerische Aufwand, um von eindimensionalen zu höherdimensionalen Modellen zu gelangen, wesentlich geringer, was die Untersuchung dieser teilweise erst ermöglicht.

Im Begriff *Clusterentwicklung* sind bereits die beiden verschiedenen Aspekte, die es hier zu behandeln gilt, enthalten: Cluster und (Störungs-)Entwicklung. Dieses Kapitel widmet sich beiden unterschiedlichen Gesichtspunkten: Neben einem Abschnitt über die Eigenschaften, Nomenklatur und Darstellung von Graphen (s. 1.2) findet der Leser auch einen Abschnitt, welcher sich mit der (rekursiven) RAYLEIGH-SCHRÖDINGER-Störungstheorie (s. 1.3) beschäftigt. Beide Begriffe werden letztlich mit Hilfe des so genannten Linked-Cluster-Theorems und des damit verknüpften Formalismus (s. 1.1) wieder zusammengeführt.

Ein anschließender Abschnitt 1.4 behandelt den dynamischen Strukturfaktor und wie dieser mittels Clusterentwicklung störungstheoretisch ermittelt werden kann. Zwar unterscheidet sich die eigentliche Berechnung nicht wesentlich von der der Grundzustandsenergie, jedoch sind einige Vorüberlegungen dafür nötig.

Hat man die Reihenentwicklungen vorliegen, so müssen diese weiter untersucht bzw. verarbeitet werden. Der abschließende Abschnitt 1.5 beschäftigt sich deshalb mit der Berechnung von Reihen mehrerer Variablen und der Extrapolation mittels Padé-Approximanten.

Die Darstellung wird weitestgehend allgemein gehalten, allerdings wird an einigen Stellen auf konkrete Modelle zurückgegriffen, um die Beschreibungen transparenter zu gestalten. In diesen Fällen dient ein dimerisiertes HEISENBERG-Modell mit Spin  $S = 1/2$  als Beispiel, da dieses in den darauf folgenden Kapiteln im Vordergrund stehen wird. Rein technische Aspekte, d.h. insbesondere die algorithmische Umsetzung und Implementierung auf einen Computer, sind größtenteils im Anhang A zu finden.

## 1.1 Methodik und Linked-Cluster-Theorem

Bereits Anfang der 80er Jahre gab es erste Ideen und Umsetzungen für störungstheoretische Untersuchungen basierend auf einer Clusterentwicklung.<sup>32–34</sup> Die Systeme, die damals mit dieser Methode erforscht wurden, waren in der Regel eindimensional,<sup>35</sup> und die studierten Größen beschränkten sich auf die Grundzustandsenergien und -erwartungswerte. Zu diesem Zeitpunkt war es nicht möglich, Reihen für intensive Größen, wie etwa Anregungsenergien, zu berechnen. Ende der 80er Jahre wurde die Clusterentwicklung von GELFAND, SINGH und HUSE aufgegriffen und für eine Computerimplementierung aufbereitet.<sup>13</sup> Behandelt wurden damit Spin  $S = 1/2$  und  $S = 1$  HEISENBERG-Modelle in einer und zwei Dimensionen.

Einen entscheidenden Fortschritt erfuhr diese Methode 1996, als GELFAND eine Möglichkeit aufzeigte, mit der man Reihenentwicklungen auch für Anregungsenergien bestimmen konnte.<sup>14,15</sup> Damit war der Schritt zur vorerst letzten Entwicklung nicht mehr groß, nämlich der Berechnung von Potenzreihen für Zweiteilchenanregungen und für Kontinuumszustände.<sup>36,37</sup>

### 1.1.1 Voraussetzungen

Eine grundlegende Voraussetzung der Clusterentwicklung ist, dass die untersuchten Modelle auf einem Gitter definiert sind, d.h. die dynamischen Freiheitsgrade, wie beispielsweise der Spin, sind auf den Knoten eines Gitters fixiert. Allgemein können die HAMILTON-Operatoren folgende Gestalt haben:

$$\mathcal{H} = \sum_{ij} F(J_{ij}; \mathcal{O}_i, \mathcal{O}_j) + \sum_i G(H_i; \mathcal{O}_i). \quad (1.1)$$

Die Indizes sind hier lediglich andere Namen für die Knoten eines Gitter  $\mathcal{L}$ .  $F$  und  $G$  können beliebige Funktionen der Operatoren  $\mathcal{O}_i$  sein, während die Felder  $H_i$  und die Kopplungskonstanten  $J_{ij}$  die Wechselwirkungen parametrisieren. Eine wesentliche aber nicht unbedingt notwendige Vereinfachung liegt in der Annahme, dass das zu Grunde liegende Gitter periodisch ist: Die Kopplungen  $J_{ij}$  sind translationsinvariant und hängen lediglich vom Abstand  $\mathbf{r}_i - \mathbf{r}_j$  ab. Ein Beispiel aus der Familie der HAMILTON-Operatoren (1.1) ist der HEISENBERG-Antiferromagnet (HAFM) im äußeren Magnetfeld  $\mathbf{H}$ . Bei diesem Modell sitzen Spin-1/2-Operatoren  $\mathbf{S}$  auf den Gitterplätzen, und die Wechselwirkung zwischen benachbarten Spins ist  $J$ :

$$\mathcal{H}^{\text{HAFM}} = J \sum_{\langle i,j \rangle} \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + \mathbf{H} \sum_i \mathbf{S}_i. \quad (1.2)$$

Eine weitere wichtige Einschränkung, die an die Familie der HAMILTON-Operatoren (1.1) gestellt werden muss, ist, dass diese in einen ungestörten Anteil  $\mathcal{H}_0$  und einen gestörten Anteil  $\mathcal{H}_1$  zerfallen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda \mathcal{H}_1, \quad \lambda \ll 1. \quad (1.3)$$



Dabei ist  $\mathcal{H}_0$  in einer lokalen Basis diagonalisierbar, sodass sich die Eigenzustände von  $\mathcal{H}_0$  als Produkt von Zuständen darstellen lassen, welche auf den Gitterplätzen lokalisiert sind. Der kleine Parameter  $\lambda$  ist hier nur symbolisch zu verstehen und steht im Allgemeinen für einen ganzen Satz kleiner Parameter.

Desweiteren spielt die Entartung von  $\mathcal{H}_0$  eine wichtige Rolle. Nur für den Fall, dass entweder keine oder nur eine endliche Entartung vorliegt, können prinzipiell Potenzreihen in  $\lambda$  für die Grundzustandsenergie oder für die Korrelationsfunktionen berechnet werden. Wie im Abschnitt 1.1.2.2 gezeigt wird, ist es sogar möglich, Anregungen zu berechnen.

Aufgrund der Produktstruktur der Zustände eignet sich die Clusterentwicklung bestens für Systeme mit kurzreichweitigen Korrelationen. Unter Umständen ist es auch möglich, Systeme zu untersuchen, die verschwindende Anregungslücken und algebraisch zerfallende Korrelationsfunktionen besitzen. Jedoch gehen die Resultate gewöhnlich aus einer Extrapolation der Potenzreihen hervor und bedürfen der Überprüfung durch andere Methoden.

### 1.1.2 Formalismus

Ziel der Clusterentwicklung ist die Berechnung von Koeffizienten einer Potenzreihe, die eine thermodynamisch extensive Größe  $P$  darstellt. Im Gegensatz zu anderen Methoden, wie z.B. die Kumulantenentwicklung, zerfällt die Berechnung in zwei völlig unabhängige Teile: Einerseits in die Ermittlung und Charakterisierung von Graphen (Cluster) und andererseits in die eigentliche Störungsentwicklung. Beide Punkte betrachten wir in den anschließenden Abschnitten getrennt voneinander.

Die eigentliche Stärke der Clusterentwicklung ist, dass die Koeffizienten einer Potenzreihe eines sehr großen Systems durch die Koeffizienten mehrerer kleiner Systeme ausgedrückt werden können. Ausgehend von Reihenentwicklungen endlicher Systeme (Cluster) lassen sich sogar die Koeffizienten von Potenzreihen unendlich großer Systeme, d.h. für den thermodynamischen Limes, bis zu einer gegebenen Ordnung bestimmen.

Betrachten wir zunächst ein periodisches Gitter  $\mathcal{L}$ , welches aus  $N$  Knoten besteht. Gemäß dem oben Gesagten ist man an einer Darstellung von  $P$  in der Form

$$\frac{P(\mathcal{L})}{N} = \sum_G L(G, \mathcal{L}) W(G) \quad (1.4)$$

interessiert. Hier wird  $L(G, \mathcal{L})$  die *Gitterkonstante* des Graphen  $G$  genannt. Sie gibt an, wie oft (pro Gitterknoten)  $G$  in  $\mathcal{L}$  eingebettet werden kann.  $W(G)$  wird mit *Gewicht* bezeichnet und ist eine Potenzreihe, welche aus

$$W(G) = P(G) - \sum_{C \subset G} W(C) \quad (1.5)$$

gewonnen werden kann.  $P(G)$  ist jetzt eine Reihe, welche für den endlichen Graphen  $G$  berechnet wird. Daraus resultiert die Frage, wie man auf diese Darstellung kommt.

Wir betrachten dazu eine Multivariablenentwicklung. Jeder Gitterbindung zwischen den Knoten  $i$  und  $j$  wird formal eine andere Wechselwirkungskonstante  $\lambda_{[ij]}$  zugeordnet. Die Potenzreihe von  $P(\mathcal{L})$  hat dann bis auf einen konstanten Term folgende Gestalt

$$P(\mathcal{L}) = \sum_{[ij]} c_{[ij]} \lambda_{[ij]} + \sum_{[ij]} \sum_{[kl]} c_{[ij],[kl]} \lambda_{[ij]} \lambda_{[kl]} + \dots \quad (1.6)$$

Wir sortieren diese Reihe in der folgenden Weise um: Zunächst gruppieren wir Terme, welche genau ein  $\lambda_{[ij]}$  enthalten. Danach sammeln wir Terme auf, die von genau zwei, drei usw. verschiedenen  $\lambda_{[ij]}$  abhängen und erhalten:

$$P(\mathcal{L}) = \sum_{[ij]} \sum_{n=1}^{\infty} a_{[ij]}^{(n)} \lambda_{[ij]}^n + \sum_{[ij] \neq [kl]} \sum_{\substack{n=1 \\ m=1}}^{\infty} b_{[ij],[kl]}^{(m,n)} \lambda_{[ij]}^m \lambda_{[kl]}^n + \dots \quad (1.7)$$

Man beachte, dass hier  $\lambda_{[ij]}$  und  $\lambda_{[kl]}$  formal verschieden sind. Aus dieser Darstellung können nun die Gewichte extrahiert werden und somit diejenigen Terme, welche zu bestimmten Clustern gehören. Man beginnt am einfachsten mit den Termen, die genau zwei Knoten  $i$  und  $j$  enthalten, zwischen denen es eine Gitterbindung gibt:

$$W(\{i, j\}) = \sum_{n=1}^{\infty} a_{[ij]}^{(n)} \lambda_{[ij]}^n. \quad (1.8)$$

Auf ähnliche Weise kann man Terme zusammenfassen, die drei unterschiedliche Knoten  $i$ ,  $j$  und  $k$  und zwei Bindungen zwischen  $i$  und  $j$  bzw.  $j$  und  $k$  enthalten. Das Gewicht dieses Clusters ist

$$W(\{\{i, j\}, \{j, k\}\}) = \sum_{m=1}^{\infty} \sum_{n=1}^{\infty} b_{[ij],[jk]}^{(m,n)} \lambda_{[ij]}^m \lambda_{[jk]}^n. \quad (1.9)$$

Wir haben hier bereits eine Darstellung der Cluster gewählt, wie sie im anschließenden Abschnitt vorgestellt wird, nämlich als Kantenmenge  $E = \{\{i, j\}, \{j, k\}\}$ .

Hat man alle Cluster ermittelt, die in das Gitter  $\mathcal{L}$  eingebettet werden können, so kann (1.6) als Summe über diese Cluster geschrieben werden:

$$P(\mathcal{L}) = \sum_{c \in \mathcal{L}} W(c). \quad (1.10)$$

Um zu betonen, dass die Summe über **alle** Cluster läuft, die in das Gitter eingebettet werden können, wurden kleine Buchstaben für die Cluster verwendet. Solche Cluster bezeichnen wir im folgenden als *Einbettungen*. Abbildung 1.1 zeigt einige Einbettungen, die man auf dem Quadratgitter finden kann.

Wird (1.10) nicht für das „gesamte“ Gitter sondern für eine Einbettung  $g$  verwendet, so folgt

$$P(g) = \sum_{c \subseteq g} W(c) = W(g) + \sum_{c \subset g} W(c) \quad (1.11)$$

und dementsprechend (1.5). Man nennt (1.11) *Subcluster-Subtraktion*, da die Summe über alle Einbettungen läuft, die in  $g$  enthalten sind (*Subeinbettungen* oder *Subcluster*).  $P(g)$  ist eine Reihenentwicklung, die auf  $g$  beschränkt bleibt, d.h. man setzt in  $\mathcal{H}_1$  alle Wechselwirkungen Null, die nicht in  $g$  enthalten sind. Mit diesem so genannten *Clusterhamiltonian* wird dann die Reihenentwicklung erzeugt.

Eine für die algorithmische Umsetzung wichtige Eigenschaft ergibt sich aus (1.11) und der Definition der Gewichte:

$$W(g) = 0 + \mathcal{O}(\lambda^n), \quad (1.12)$$

für eine Einbettung  $g$  mit  $n$  Kanten. Während der Generierung einer Potenzreihe können wir eine strenge *Konsistenzprüfung* durchführen: Sind die Koeffizienten eines Gewichts für eine Einbettung mit  $n$  Kanten bis zur Ordnung  $n - 1$  von Null verschieden, so gibt es entweder einen Fehler im Algorithmus zur Berechnung der Potenzreihe oder es wurden nicht alle Subcluster gefunden.

Damit ist man nun in der Lage, Reihenentwicklungen zu erzeugen. Es gibt aber noch einige Punkte, die die Berechnungen vereinfachen: die Einbeziehung von Symmetrien, das Linked-Cluster-Theorem und die Ermittlung der maximalen Größe der Cluster.

### 1.1.2.1 Symmetrien

Da wir an Systemen interessiert sind, bei denen die Wechselwirkungen zwischen den Gitterknoten nicht sämtlich verschieden sind, können wir Symmetrien, wie z.B. Translations- oder Rotationsinvarianz berücksichtigen. Einzelne Einbettungen können durch Symmetrioperationen ineinander überführt werden und tragen mit demselben Gewicht zur Reihenentwicklung bei. Beispielsweise kann man die Einbettung aus Abbildung 1.1 links oben  $2N^2$ -mal auf einem  $N \times N$ -Quadratgitter finden, vorausgesetzt, dass alle Wechselwirkungen zwischen den Knoten gleich sind und periodische Randbedingungen vorliegen. Somit müssen nicht für alle Einbettungen sondern nur für Repräsentanten, die wir im folgenden als *Cluster* bezeichnen wollen, Reihenentwicklungen berechnet werden. Die Anzahl von Einbettungen eines Clusters  $G$  pro Gitterknoten kann dann in die Gitterkonstante  $L(G, \mathcal{L})$  absorbiert werden. Im obigen Fall gilt deshalb  $L = 2$ .

### 1.1.2.2 Linked-Cluster-Theorem

Eine der Stärken der Clusterentwicklung ist, dass die Gewichte unverbundener Cluster verschwinden, solange die zu entwickelnde Größe additiv ist. Nehmen wir also an, es gilt eine Reihenentwicklung auf einem Cluster  $C$  zu erzeugen, welcher in zwei unverbundene Cluster  $A$  und  $B$  zerfällt, die ihrerseits mindestens einen Knoten enthalten, d.h.  $C = A \cup B$  und  $A, B \neq \emptyset$ . Unverbunden bedeutet in diesem Zusammenhang, dass es zwischen  $A$  und  $B$  keine Kante gibt, also  $A \cap B = \emptyset$ . Dann gilt die Implikation

$$P(C) = P(A) + P(B) \Rightarrow W(C) = 0. \quad (1.13)$$

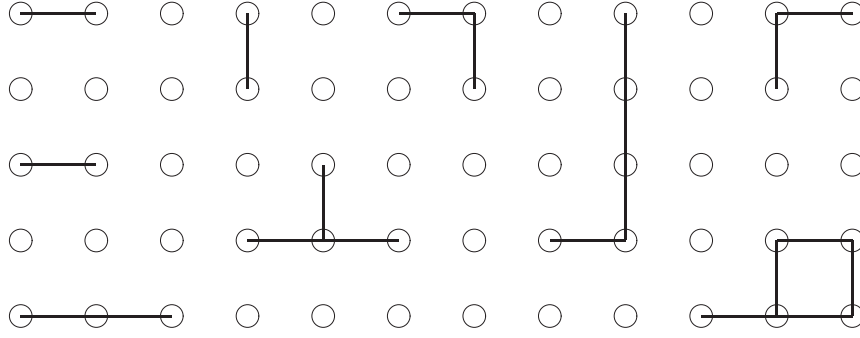


ABBILDUNG 1.1: Darstellung von neun verschiedenen Einbettungen auf dem Quadratgitter. Die Kreise bezeichnen einzelne Spins bzw. isolierte Dimere. Die Linien bezeichnen die Wechselwirkungen  $\lambda_{[ij]}$  zwischen benachbarten Knoten.

Dieses Ergebnis nennt man auch *Linked-Cluster-Theorem*, welches sich leicht über eine Gleichungskette zeigen lässt:

$$\begin{aligned}
 W(C) &= P(C) - \sum_{G \subset C} W(G) & (1.14) \\
 &= P(A) + P(B) - W(A) - W(B) - \sum_{G \subset A} W(G) - \sum_{G \subset B} W(G) \\
 &= W(A) + W(B) - W(A) - W(B) = 0.
 \end{aligned}$$

Damit reduziert sich nicht nur die Anzahl der zu berechnenden Cluster, sondern auch deren Generierung wird erleichtert.

Die Schwierigkeit besteht in der Regel darin zu zeigen, dass die linke Seite von (1.13), also die Additivität, gilt. Beispielhaft soll dies für die Grundzustandsenergie und die niederenergetischen Anregungen eines dimerisierten HEISENBERG-Modells überprüft werden.

**Grundzustand:** Am einfachsten ist die Additivität für die Grundzustandsenergie nachzuweisen. Betrachten wir wieder einen Cluster  $C$ , der in zwei Subcluster  $A$  und  $B$  zerfällt. Der zugehörige Clusterhamiltonian kann dann als eine Summe geschrieben werden:

$$\mathcal{H}_C = \mathcal{H}_A \otimes \mathbf{1}_B + \mathbf{1}_A \otimes \mathcal{H}_B. \quad (1.15)$$

Hier bezeichnen die Indizes die Cluster, auf denen die Operatoren beschränkt bleiben, und  $\mathbf{1}$  ist der zugehörige Identitätsoperator. Da  $\mathcal{H}_A \otimes \mathbf{1}_B$  und  $\mathbf{1}_A \otimes \mathcal{H}_B$  vertauschen, ist die Wellenfunktion für  $C$  ein Produkt:

$$|\psi_C\rangle = |\psi_A\rangle \otimes |\psi_B\rangle, \quad (1.16)$$

d.h. die Grundzustandsenergie ist über unverbundene Cluster additiv, denn:

$$\langle \psi_C | \mathcal{H}_C | \psi_C \rangle = \langle \psi_A | \mathcal{H}_A | \psi_A \rangle + \langle \psi_B | \mathcal{H}_B | \psi_B \rangle. \quad (1.17)$$

**Anregungen:** Ist man am niederenergetischen Anregungszweig eines Systems (z. B. an der Singlett-Triplett-Anregung) interessiert, so erweist sich der Nachweis der Additivität über unverbundene Cluster zunächst als unmöglich, da einerseits eine Entartung vorliegt und andererseits die Anregungsenergie keine extensive Größe ist. Betrachten wir wieder zwei unverbundene Subcluster  $A$  und  $B$  eines Clusters  $C$ , welche  $L_A$  bzw.  $L_B$  Knoten besitzen. Die Grundzustandsenergie und die Anregungsenergien seien mit  $E_A^0$  bzw.  $E_A^1$  bezeichnet (analog für  $B$ ). Für die Grundzustandsenergie wurde oben bereits gezeigt, dass  $E_C^0 = E_A^0 + E_B^0$  ist. Die Energie der niedrigsten Anregung ist  $E_C^1 = E_C^0 + \min(E_A^1 - E_A^0, E_B^1 - E_B^0)$ , und natürlich gilt  $E_C^1 \neq E_A^1 + E_B^1$  ebenso wie  $E_C^1 - E_C^0 \neq (E_A^1 - E_A^0) + (E_B^1 - E_B^0)$ .

Die grundlegende Idee zur Lösung dieses Problems ist die Berechnung eines *effektiven HAMILTON-Operators*,<sup>14</sup> der anschließend mittels einer FOURIER-Transformation diagonalisiert werden kann. Betrachten wir dazu eine Transformation eines Clusterhamiltonians  $\mathcal{H}_C$  der Form

$$\mathcal{S}^{-1} \mathcal{H}_C \mathcal{S} = \tilde{\mathcal{H}}_C, \quad (1.18)$$

wobei  $\mathcal{H}_C$  explizit in der zu  $\mathcal{H}_0$  diagonalen Basis geschrieben wurde.

Da der zu Grunde liegende Cluster endlich ist, gibt es dementsprechend nur eine endliche Zahl  $L$  entarteter Zustände  $|\psi_i\rangle$ , für die ein effektiver HAMILTON-Operator erzeugt werden soll. Wir ordnen deshalb die Gesamtzahl von  $M$  Zuständen so an, dass die ersten  $L$  die  $|\psi_i\rangle$  sind und schreiben die Matrix  $\mathcal{S}$  als Spaltenvektoren

$$\mathcal{S} = (\psi_1, \psi_2, \dots, \psi_L, \dots). \quad (1.19)$$

Damit nimmt die Matrix  $\tilde{\mathcal{H}}$  eine blockdiagonale Form an, bei der der linke obere  $L \times L$  Block die Dynamik der entarteten und der untere rechte  $(M - L) \times (M - L)$  Block die Dynamik der übrigen, für die Untersuchung irrelevanten Zustände beschreibt:

$$\tilde{\mathcal{H}}_C = \begin{pmatrix} h_{11}^{\text{eff}} & \dots & h_{1L}^{\text{eff}} & & \\ \vdots & \ddots & \vdots & & 0 \\ h_{L1}^{\text{eff}} & \dots & h_{LL}^{\text{eff}} & & \\ & & & 0 & \\ & & & & (M - L) \times (M - L) \end{pmatrix}. \quad (1.20)$$

Führt man diese Transformation sowohl für  $A$  als auch für  $B$  durch, so können daraus die effektiven HAMILTON-Operatoren  $\mathcal{H}_A^{\text{eff}}$  und  $\mathcal{H}_B^{\text{eff}}$  gewonnen werden. Wie sieht aber der effektive HAMILTON-Operator für das zusammengesetzte System  $\mathcal{H}_{A+B}^{\text{eff}}$  aus?

Betrachten wir eine Einteilchenanregung auf dem unverbundenen Cluster  $A + B$ , so kann die Anregung entweder nur auf  $A$  oder nur auf  $B$  sein. Dass die Anregung von  $A$  nach  $B$  oder umgekehrt springt\*, ist dann ausgeschlossen, falls Erhaltungsgrößen vorliegen. Beispiels-

\*Liegt ein ungestörter Zustand vor, bei dem eine Anregung auf  $A$  liegt, jedoch keine auf  $B$ , dann kann man den Clusterhamiltonian des zusammengesetzten Systems  $\mathcal{H}_1$  (hier ist nur der Störanteil von Interesse) in jeder Potenz anwenden, ohne dass es einen Überlapp mit einem Zustand gibt, bei dem auf  $B$  eine Anregung und auf  $A$  keine liegt, d.h. die Anregung kann nicht von  $A$  nach  $B$  springen.

weise ist im HEISENBERG-Modell der Gesamtspin eine gute Quantenzahl, die insbesondere auf jedem der Subcluster  $A$  und  $B$  getrennt erhalten ist. D. h. befindet sich auf  $A$  eine Anregung, so gibt es keine Möglichkeit, dass diese nach  $B$  springt, ohne die Spinerhaltung zu verletzen. Der effektive Hamiltonian  $H_C^{\text{eff}}$  hat daher eine blockdiagonale Form

$$\mathcal{H}_C^{\text{eff}} = (\mathcal{H}_A^{\text{eff}} + E_B^0 \cdot \mathbf{1}_A) \oplus (\mathcal{H}_B^{\text{eff}} + E_A^0 \cdot \mathbf{1}_B). \quad (1.21)$$

Da wir bereits wissen, dass die Grundzustandsenergie additiv ist, folgt schließlich:

$$(\mathcal{H}^{\text{eff}} - E^0 \cdot \mathbf{1})_{A+B} = (\mathcal{H}^{\text{eff}} - E^0 \cdot \mathbf{1})_A \oplus (\mathcal{H}^{\text{eff}} - E^0 \cdot \mathbf{1})_B. \quad (1.22)$$

Damit ist eine Größe gefunden, die additiv über unverbundene Cluster ist. Man muss allerdings beachten, dass die zu addierenden Größen keine einfachen Zahlen, sondern Matrizen sind. Insbesondere erweist sich die Subcluster-Subtraktion (1.5) als schwierig, da die Matrixeinträge  $H_{ij}^{\text{eff}}$  mit den Clustervertices assoziiert sind. Dieser Aspekt wird im Anhang A.5 nochmals aufgegriffen und weiter vertieft.

### 1.1.2.3 Maximale Größe der Cluster

Nach Konstruktion ist jeder Kante eines Cluster ein Faktor  $\lambda_{[ij]}$  zugeordnet, sodass im Gewicht eines Cluster mit  $n$  Kanten nur Terme auftauchen, deren höchste Potenz  $n$  ist. Berücksichtigt man alle Cluster mit maximal  $n$  Kanten, so ist die Reihenentwicklung bis zur Ordnung  $n$  korrekt.

Damit haben wir einen Formalismus an der Hand, mit dem wir Potenzreihen bis zu hohen Ordnungen berechnen können. Wie eingangs erwähnt, liegt eine der Stärken der Clusterentwicklung in der strikten Trennung der Clustergenerierung von der Störungsentwicklung. Deshalb werden in den anschließenden Abschnitten zunächst die Cluster (d. h. Graphen) näher betrachtet, und anschließend wird die rekursive RAYLEIGH-SCHRÖDINGER-Störungstheorie vorgestellt.

## 1.2 Graphen

Mit Graphen ist eine sehr umfangreiche Nomenklatur verknüpft, jedoch sind die meisten Begriffe recht einfach und vielfach intuitiv. Es erscheint deshalb zweckmäßig, sie an dieser Stelle zusammenzufassen. Der folgende Abschnitt erhebt keinesfalls den Anspruch der Vollständigkeit, immerhin ist die Graphentheorie in der Mathematik<sup>38,39</sup> und in ihrer algorithmischen Umsetzung auch in der Informatik ein umfangreiches Teilgebiet. Aber alle im Zusammenhang mit der Clusterentwicklung stehenden Begrifflichkeiten, wie Darstellung, Automorphismus, kanonische Nummerierung, Subgraph und Einbettung werden beschrieben.

### 1.2.1 Grundlegende Begriffe

Ein (endlicher) Graph ist ein Tupel  $G = (V, E)$ , wobei  $V$  eine endliche Menge und  $E \subseteq \binom{V}{2}$  eine Teilmenge zweielementiger Teilmengen von  $V$  ist. Die Elemente  $v \in V$  heißen *Knoten*, die Elemente  $e \in E$  heißen *Kanten*. Knoten sind einfache Objekte, die Namen oder andere Eigenschaften tragen können; eine Kante ist eine Verbindung zwischen zwei Knoten. Im folgenden sei einfach  $V = \{1 \dots n\}$ . Graphen lassen sich sehr einfach zeichnen, indem man die Knoten durch Punkte markiert und diese durch Linien verbindet, welche die Kanten darstellen. Man darf aber nicht vergessen, daß ein Graph unabhängig von seiner Darstellung definiert ist.

Die obige Definition ist im Kontext der Clusterentwicklung völlig ausreichend und schließt nur so genannte einfache Graphen ein, d.h. Graphen ohne Schlingen (Kanten, deren Endpunkte zusammenfallen) und ohne mehrfache parallele Kanten zwischen zwei Knoten. Ebenso wenig sind gerichtete oder gewichtete Graphen von Interesse.

Die Anzahl der Knoten eines Graphen  $G$  wird als die *Ordnung* von  $G$  bezeichnet ( $n := n(G) := |V|$ ). Die Anzahl seiner Kanten heißt die *Größe* von  $G$  ( $m := m(G) := |E|$ ). Leider sind diese mathematischen Bezeichnungen nicht mit den gebräuchlichen der Clusterentwicklung konsistent, da dort die Ordnung einer Entwicklung gleichbedeutend ist mit der Anzahl der Kanten von  $G$ .

### 1.2.2 Darstellung

Obwohl man einen Graphen im Allgemeinen einfach zeichnen kann, ist dies eine ungeeignete Darstellung. Eine angemessenere ist die von Adjazenzmatrizen oder -listen.

Die *Adjazenzmatrix* ist die einfachste Darstellung für Graphen: Sei  $G(V, E)$  ein Graph. Dann heißt die folgende symmetrische  $n \times n$  Matrix  $A = A(G) = a_{ij}$ ,  $1 \leq i, j \leq n$ , mit

$$a_{ij} = \begin{cases} 1 & \text{falls } \{i, j\} \in E, \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (1.23)$$

die Adjazenzmatrix von  $G$ . Dabei sind zwei Knoten  $i, j$  adjazent oder verbunden falls  $\{i, j\} \in E$ . Der Graph aus Abbildung 1.2(a) hat somit die Adjazenzmatrix:

$$A = \begin{pmatrix} 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 1 & 0 & 0 & 0 & 1 & 1 \\ 1 & 0 & 0 & 1 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 1 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}. \quad (1.24)$$

Ein Nachteil dieser Darstellung ist insbesondere in Hinblick auf eine Einbindung in einen Algorithmus, dass jede Kante zweimal gesetzt wird: Eine Kante, die  $i$  und  $j$  verbindet, ist

durch eine 1 sowohl in  $a_{ij}$  als auch in  $a_{ji}$  gegeben. In einer Adjazenzstruktur werden deshalb für jeden Knoten alle mit ihm verbundenen Knoten in Form einer Liste eingetragen.

Eine weitere Möglichkeit Graphen darzustellen, besteht in der expliziten Angabe aller Kanten. Diese beinhaltet einen erheblichen praktischen Nutzen beim Umgang mit Graphen in der Clusterentwicklung und wird deshalb im Anhang A.2 behandelt.

### 1.2.3 Isomorphismus und Automorphismus

Offenbar gibt es  $2^{\binom{n}{2}}$  verschiedene Möglichkeiten, Kanten zwischen  $n$  Knoten zu setzen oder nicht zu setzen. Dies ist also gerade die Anzahl verschiedener Graphen auf  $n$  (nummerierten oder markierten, d.h. unterschiedlichen) Knoten. Viele dieser Graphen unterscheiden sich jedoch lediglich in der Art der Nummerierung ihrer Knotenmenge, d.h. sie sind zueinander *isomorph*: Zwei Graphen  $G_1 = (V_1, E_1)$  und  $G_2 = (V_2, E_2)$  heißen isomorph, in Zeichen  $G_1 \cong G_2$ , falls es ein Bijektion  $f : V_1 \rightarrow V_2$  gibt, sodass gilt:

$$\{u, v\} \in E_1 \Leftrightarrow \{f(u), f(v)\} \in E_2.$$

Es lässt sich leicht zeigen, dass die Isomorphie von Graphen eine Äquivalenzrelation auf die Menge aller Graphen ist. Abbildung 1.2 zeigt zwei Graphen, die sich lediglich in der Nummerierung ihrer Knotenmenge unterscheiden.

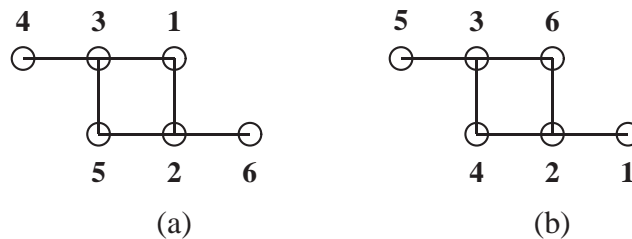


ABBILDUNG 1.2: Unterschiedliche Nummerierungen zweier isomorpher Graphen

Isomorphe Graphen liefern in der Clusterentwicklung gleiche Beiträge. Es ist daher sinnvoll, diese Graphen als identisch zu betrachten und eine eindeutige, kanonische Nummerierung (Labeling) zu finden.

Wir betrachten zunächst einen Graphen  $G$ . Sei  $\gamma$  eine Permutation von  $V$  und  $v \in V$ , d.h.  $\gamma$  ist ein Element aus der Permutationsgruppe  $S_n$ . Dann ist  $v^\gamma$  das Bild von  $v$  unter  $\gamma$ , und  $G^\gamma$  ist derjenige Graph, in welchem  $x^\gamma$  und  $y^\gamma$  genau dann adjazent sind, wenn  $x$  und  $y$  adjazent in  $G$  sind. Die Menge aller Permutationen  $\gamma$ , für die  $G^\gamma = G$  gilt, wird als *Automorphismusgruppe* des Graphen  $G$  bezeichnet:

$$\text{Aut}(G) = \{\gamma \in S_n \mid G^\gamma = G\}. \quad (1.25)$$

Betrachtet man beispielsweise den Graphen aus Abbildung 1.3(a), so findet man für seine Automorphismusgruppe:  $\text{Aut}(G) = \{\text{id}, (23), (15)(46)\}$  (Für die Elemente wurde die übliche zyklische Darstellung gewählt). Die Menge der Graphen, welche damit generiert werden können (Orbit), ist in Abbildung 1.3 zu sehen.



### 1.2.4 Kanonische Nummerierung (Labeling)

Eine kanonische Nummerierung ist nun eine Funktion  $\mathcal{C}$ , sodass für jeden Graphen  $G(V, E)$  und eine Permutation  $\gamma \in S_n$  von  $V$  gilt:

- (a)  $\mathcal{C}(G) \cong G$
- (b)  $\mathcal{C}(G^\gamma) = \mathcal{C}(G)$ .

Die Nützlichkeit dieser kanonischen Nummerierung zeigt sich darin, dass man zwei Graphen  $G_1(V, E_1)$  und  $G_2(V, E_2)$  sehr leicht miteinander vergleichen kann:

$$\mathcal{C}(G_1) = \mathcal{C}(G_2) \iff G_1^\gamma = G_2, \quad \gamma \in \text{Aut}(G_1). \quad (1.26)$$

Mit anderen Worten: Wenn die Knoten zweier beliebiger Graphen kanonisch nummeriert sind, so ist man in der Lage, lediglich durch Vergleichen der Kantenmenge zu entscheiden, ob die Graphen zueinander isomorph sind. Die Kantenmenge der Graphen aus Abbildung 1.3 ist  $E = \{\{1, 2\}, \{1, 3\}, \{1, 4\}, \{2, 5\}, \{3, 5\}, \{5, 6\}\}$ .

Die Suche nach einer kanonischen Nummerierung ist gleichbedeutend mit der nach einer eindeutigen Adjazenzmatrix. Man findet, dass die Adjazenzmatrix eindeutig bis auf Permutationen der Knotenbezeichnungen ist. Eine der einfachsten Möglichkeiten zur Erzeugung einer eindeutigen Darstellung ist, alle möglichen Adjazenzmatrizen durch permutieren der Knoten zu generieren und diese lexikographisch zu ordnen. Als kanonisches Label benutzt man schließlich dasjenige mit der größten Adjazenzmatrix.

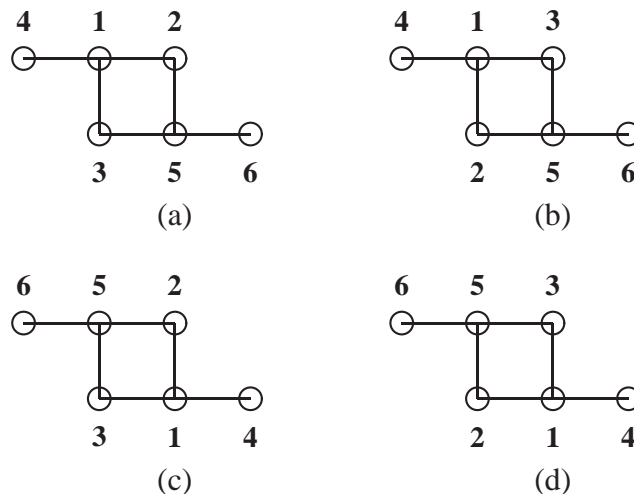


ABBILDUNG 1.3: Orbit der Automorphismusgruppe des Graphen aus Abbildung 1.2. (a) zeigt die kanonische Nummerierung, wie sie mit NAUTY generiert wird (s. Text).

Ein wesentlicher Nachteil dieser Methode ist, dass es  $n!$  mögliche Permutationen gibt, was einen erheblichen Rechenaufwand bedeutet. Die Anzahl der Permutationen kann jedoch reduziert werden, indem man zunächst die Knoten nach der Anzahl ihrer Valenzen (Anzahl

der mit dem Knoten adjazenten Knoten) ordnet und danach nur innerhalb gleicher Valenzen permutiert. Damit ist zwar eine eindeutige Adjazenzmatrix gefunden, allerdings führen Permutationen, welche Elemente aus  $\text{Aut}(G)$  sind, zu gleichen Adjazenzmatrizen.

Eine elegantere und effektivere Möglichkeit ist bei MCKAY<sup>40</sup> zu finden. Der dort angegebene Back-Tracking-Algorithmus erzeugt durch Verfeinern einer gegebenen Partitionierung des Graphen solange weitere Partitionierungen, bis diese alle die Größe eins haben. Jede dieser Partitionierungen repräsentiert eine mögliche Nummerierung. Mittels einer so genannten Indikatorfunktion können diese geordnet werden, sodass man damit eine kanonische Nummerierung erhält. Der Algorithmus NAUTY (no automorphisms, yes?), der dies leistet, ist frei zugänglich.<sup>41</sup>

### 1.2.5 Erzeugung ungefärbter und gefärbter Graphen

Die Generierung von ungefärbten Graphen erweist sich als unkompliziert, da nur zusammenhängende und einfache Graphen von Interesse sind. Man kann die Graphen der Ordnung (bzw. Größe)  $n$  aus denen der Ordnung  $n-1$  erzeugen, indem man eine Kante oder eine Kante und einen neuen Knoten zu einem Graphen der niedrigeren Ordnung hinzufügt: Entweder verbindet man zwei Knoten, zwischen denen noch keine Kante existiert oder man ergänzt einen Knoten und verbindet diesen mit einem der schon vorhandenen. In jedem Schritt muss überprüft werden, ob der neu erzeugte Graph in das Gitter eingebettet werden kann. Beginnend mit einem Graphen, welcher nur aus einem Knoten besteht, können damit alle Graphen Ordnung für Ordnung systematisch ermittelt werden.

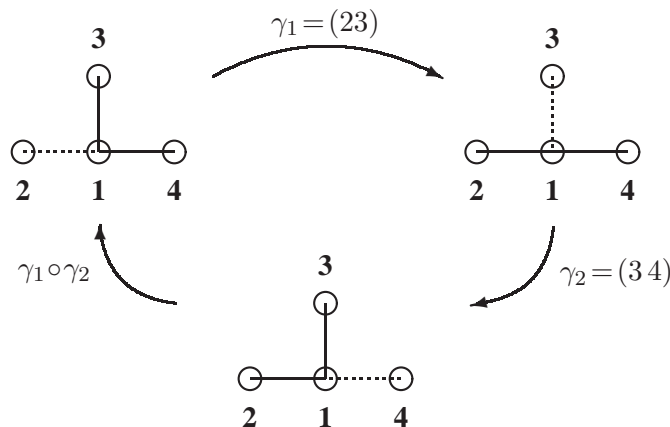


ABBILDUNG 1.4: Erzeugung gefärbter Graphen mit Hilfe der Elemente aus  $\text{Aut}(G)$ . Durchgezogene und gestrichelte Linien sollen unterschiedliche Farben andeuten.

Gefärbte Graphen werden immer dann benötigt, wenn die betrachteten Modelle mehr als eine Störung, beschrieben durch verschiedene Austauschwechselwirkungen, aufweisen. Unter Färbung eines Graphen wird im Gegensatz zu der mathematischen Definition,<sup>38</sup> bei der die

Knoten die Farben tragen, eine Färbung der Kanten verstanden. Die einzelnen Farben dieser so genannten *Kantenfärbung* repräsentieren die unterschiedlichen Wechselwirkungen.

Die Erzeugung aller bis zu einer Ordnung  $n$  beitragenden, topologisch verschiedenen Graphen erfolgt in drei Schritten. Zuerst werden alle ungefärbten Graphen wie im vorhergehenden Abschnitt beschrieben generiert. Danach versieht man die Kanten mit allen möglichen Farbkombinationen, verwirft aber diejenigen Graphen, welche aufgrund ihrer Färbung nicht mehr in das Gitter eingebettet werden können. Die Anzahl der entstandenen Graphen kann schließlich noch weiter reduziert werden, wenn man auf jeden Graphen die Elemente  $\gamma$  seiner Automorphiegruppe  $\text{Aut}(G)$  anwendet. Damit können auch gefärbte Graphen aufeinander überführt werden. Ein sehr einfaches Beispiel zeigt Abbildung 1.4.

### 1.2.6 Einbettungen und Subcluster

Bis jetzt waren Graphen bzw. Cluster abstrakte Gebilde bestehend aus Knoten und Kanten. Um ihnen eine physikalische Bedeutung zukommen zu lassen, müssen die Knoten mit Operatoren (z.B. Spin) und die Kanten mit Wechselwirkungen assoziiert werden. Da aber die Operatoren auf einem Gitter fixiert sein sollen, müssen die Graphen mit ebendiesem in Verbindung gebracht werden: Man versucht also einen vorgegebenen Graphen auf das Gitter zu legen bzw. in das Gitter einzubetten.

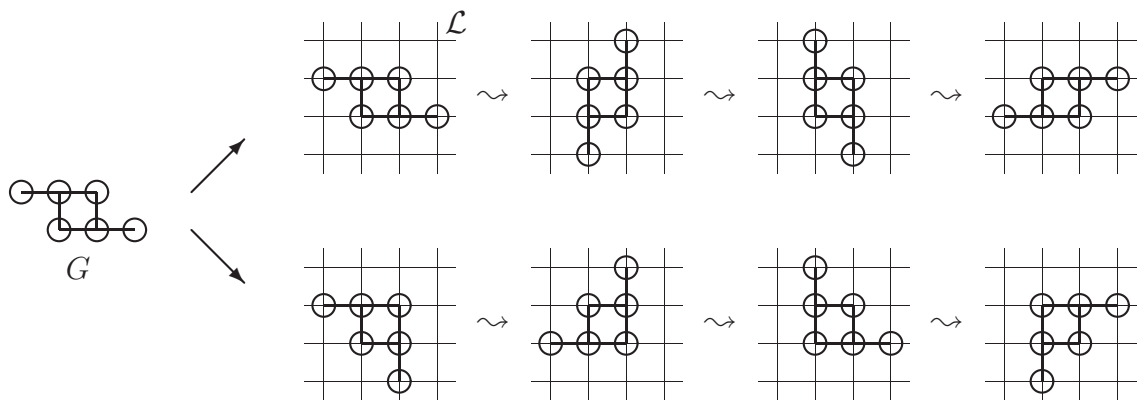


ABBILDUNG 1.5: Einbettungen eines Graphen mit 6 Knoten und 6 Kanten: Die Einbettungen der oberen bzw. der unteren Zeile gehen mittels Symmetrieeoperationen des Gitters ineinander über. In diesem Fall ist die Gitterkonstante  $L(G, \mathcal{L}) = 8$ .

Hat man eine Liste topologisch verschiedener Graphen vorliegen, so stellt man schnell fest, dass sich die aus einem bestimmten Graphen generierbaren Einbettungen in Klassen unterteilen lassen. Es gibt Einbettungen, die sich durch Symmetrieeoperationen des Gitters ineinander überführen lassen. Betrachten wir beispielsweise den Graphen aus Abbildung 1.3. Will man diesen in ein Quadratgitter einbetten, so findet man (abgesehen von Translationen) zwei Klassen, in denen die Einbettungen durch Drehungen bzw. Spiegelungen aufeinander

abgebildet werden können. Abbildung 1.5 zeigt alle Einbettungen dieses Graphen, dessen Gitterkonstante  $L(G, \mathcal{L}) = 8$  ist.

Eine systematische Ermittlung aller Einbettungen eines Graphen  $G$  in das Gitter  $\mathcal{L}$  bietet ein Backtracking-Algorithmus. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass sie auch Einbettungen zählt, welche aus Graphen hervorgehen, die im Orbit von  $\text{Aut}(G)$  liegen. Die Gitterkonstante ist demnach folgendermaßen zu berechnen:

$$L(G, \mathcal{L}) = \frac{\text{Anzahl algorithmisch gefundener Einbettungen}}{\text{Größe der Automorphismsgruppe } \text{Aut}(G)}. \tag{1.27}$$

Diese Vorgehensweise läßt sich problemlos auch auf gefärbte Graphen bzw. Einbettungen übertragen. Allerdings sind die berechneten Gitterkonstanten wesentlich kleiner als die ungefärbter Graphen. Damit kann Gleichung (1.4) direkt umgesetzt werden.

Bei der Berechnung von Anregungen ist die Ermittlung der Gitterkonstanten nicht notwendig. In Abschnitt 1.1.2.2 wurde gezeigt, dass die zu berechnende Größe ein effektiver HAMILTON-Operator ist. Das Resultat ist eine Matrix, die mit einer FOURIER-Transformation diagonalisiert wird. Insbesondere die Matrixeinträge sind mit den Knoten des Gitters assoziiert, was sich in den FOURIER-Komponenten niederschlägt, d.h. auch Einbettungen derselben Klasse ergeben verschiedene Beiträge. Es stellt sich heraus, dass wir Gleichung (1.10) für Reihenentwicklungen angeregter Zustände verwenden müssen.

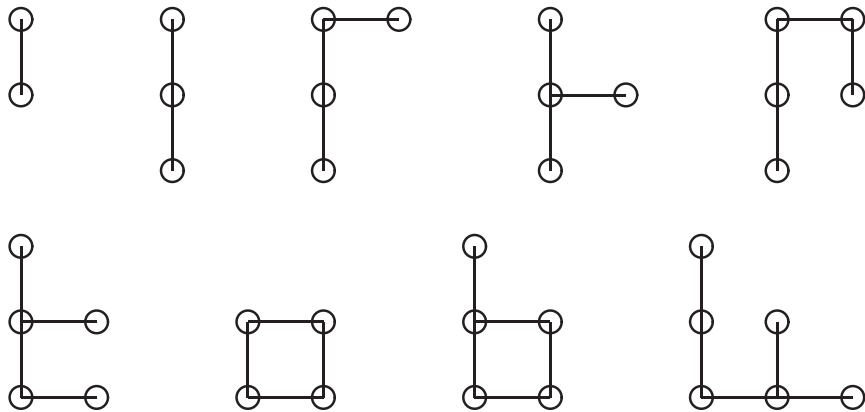


ABBILDUNG 1.6: Topologisch unterschiedliche, verbundene Subgraphen des Graphen aus Abbildung 1.3. Die Vielfachheiten sind entsprechend von oben links nach unten rechts 6, 8, 8, 2, 6, 4, 1, 2 und 4.

Bei der Durchführung der Subgraph-Subtraktion (1.5) wird die Kenntnis aller zusammenhängenden Subgraphen vorausgesetzt. Abbildung 1.6 zeigt alle Subgraphen des Graphen  $G$  aus Abbildung 1.3 und die zugehörigen Vielfachheiten, d.h. wie oft ein bestimmter Subgraph in  $G$  zu finden ist.

Abschließend ist zu bemerken, dass es einen weiteren konzeptionellen Unterschied zwischen einer Clusterentwicklung für Grundzustandserwartungswerte und für Anregungsenergien gibt. Während im ersteren Fall die Kenntnis der Vielfachheit eines Subgraphen völlig

ausreichend ist und in einer Art Gitterkonstante absorbiert werden kann, ist im letzteren die genaue Lage des Subgraphen im Graphen wichtig. Hier sei auf Anhang A.5 verwiesen, wo anhand eines Beispiels diese Problematik dargestellt wird.

## 1.3 Rekursive Störungstheorie

Hat man alle Cluster generiert, die für eine Potenzreihe bis zu einer bestimmten Ordnung notwendig sind, so kann mit der eigentlichen Reihenentwicklung begonnen werden. Für jeden Cluster  $C$  muß eine Reihe  $P(C)$  erzeugt werden, aus der mit Hilfe von (1.5) die Gewichte berechnet werden. Mögliche Methoden zur störungstheoretischen Untersuchung sind in den meisten Standardwerken zur Quantenmechanik<sup>42</sup> zu finden. Im Folgenden sollen rekursive Implementierungen der RAYLEIGH-SCHRÖDINGER-Störungstheorie vorgestellt werden, die sowohl für nichtentartete als auch für entartete Systeme geeignet sind. Bei einer Weiterverarbeitung der berechneten Reihen mittels des Linked-Cluster-Theorems gelten diese Darstellungen nur für additive Größen, d. h. für solche, bei denen die Gewichte unverbundener Cluster verschwinden. Beispiele dafür haben wir bereits in Abschnitt 1.1.2.2 gesehen: Grundzustandsenergien und effektive HAMILTON-Operatoren.

Der Clusterhamiltonian hat dieselbe Form wie der HAMILTON-Operator des gesamten Systems und zerfällt gemäß (1.3) in zwei Anteile:

$$\mathcal{H}_C = (\mathcal{H}_0 + \lambda\mathcal{H}_1)_C, \quad \lambda \ll 1. \quad (1.28)$$

Da  $\mathcal{H}_C$  auf den Cluster  $C$  beschränkt ist und deshalb nur eine endliche Anzahl Operatoren enthält, ist dessen Zustandsraum ebenfalls endlich. Prinzipiell können auch Systeme behandelt werden, die mehr als einen kleinen Parameter besitzen und die folgende Form<sup>†</sup> haben:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda_1\mathcal{H}_1 + \lambda_2\mathcal{H}_2 + \dots, \quad \lambda_i \ll 1. \quad (1.29)$$

Man kann natürlich eine Reihenentwicklung in allen Variablen  $\{\lambda_i\}$  erzeugen. Jedoch ist dies technisch sehr anspruchsvoll und für eine Computerimplementation in der Regel sehr speicheraufwendig. Da man meist an der Grundzustandsenergie oder der Dispersionsrelation für einen festen Variablensatz interessiert ist, kann man in (1.29) formal ein  $\lambda$  ausklammern und eine Reihenentwicklung in dieser neuen Variablen berechnen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \lambda(\tilde{\lambda}_1\mathcal{H}_1 + \tilde{\lambda}_2\mathcal{H}_2 + \dots), \quad \tilde{\lambda}_i \ll 1. \quad (1.30)$$

Wird in (1.30) ein Variablensatz  $\{\tilde{\lambda}_i\}$  fest vorgegeben, so wird eine Potenzreihe in  $\lambda$  generiert, in der man schließlich  $\lambda = 1$  setzt. Damit hat man zwar die gewünschte Größe berechnet, aber zu jedem weiteren Variablensatz muss eine neue Reihenentwicklung durchgeführt werden.

<sup>†</sup>Im Folgenden wird der Index des Clusters, auf dem der Clusterhamiltonian beschränkt ist, fortgelassen.

### 1.3.1 Störungstheorie für nichtentartete Zustände

Wir entwickeln zunächst die Grundzustandsenergie und die zugehörige Wellenfunktion des Clusters als Potenzreihe in  $\lambda$ :

$$E = \sum_i \lambda^i e^{(i)}, \quad (1.31)$$

$$|\psi\rangle = \sum_i \lambda^i |\psi^{(i)}\rangle. \quad (1.32)$$

Setzt man diese Entwicklungen in die SCHRÖDINGER-Gleichung ein und sortiert nach Potenzen  $\lambda^k$ , so erhält man eine Rekursionsgleichung, aus der sich die Koeffizienten  $e^{(i)}$  und die Zustände  $|\psi^{(i)}\rangle$  Ordnung für Ordnung berechnen lassen:

$$\mathcal{H}_0 |\psi^{(k)}\rangle + \mathcal{H}_1 |\psi^{(k-1)}\rangle = \sum_{l=0}^k e^{(l)} |\psi^{(k-m)}\rangle. \quad (1.33)$$

Die Zustände  $|\psi^{(i)}\rangle$  werden in der Basis der Eigenfunktionen des ungestörten HAMILTON-Operators dargestellt, für die

$$\mathcal{H}_0 |m\rangle = E_m |m\rangle \quad (1.34)$$

gilt. Die ungestörten Eigenfunktionen werden im Folgenden mit ganzen Zahlen nummeriert. Insbesondere bezeichnet  $|0\rangle$  den ungestörten Grundzustand, welcher im Falle des dimerisierten HEISENBERG-Modells ein Produkt aus Singletts auf dem Gitter ist. Um die Gleichung (1.33) zu vereinfachen, wird eine Normierung eingeführt:

$$\langle 0 | \psi^{(i)} \rangle = \delta_{0i}. \quad (1.35)$$

Damit lassen sich zwei gekoppelte Rekursionsgleichungen aufstellen, die sukzessive gelöst werden können ( $i \geq 1$ ):

$$\begin{aligned} e^{(i)} &= \langle \psi^{(0)} | \mathcal{H}_1 | \psi^{(i-1)} \rangle, \\ \langle m | \psi^{(i)} \rangle &= \frac{1}{E_0 - E_m} \left( \langle m | \mathcal{H}_1 | \psi^{(i-1)} \rangle - \sum_{j=1}^{i-1} e^{(j)} \langle m | \psi^{(i-j)} \rangle \right). \end{aligned} \quad (1.36)$$

Der Rekursionsanfang ist durch das ungestörte System gegeben, also  $e^{(0)} = E_0$  und  $|\psi^{(0)}\rangle = |0\rangle$ . Daraus können dann der Reihe nach  $e^{(1)}$ ,  $|\psi^{(1)}\rangle$ ,  $e^{(2)}$ ,  $|\psi^{(2)}\rangle$  usw. berechnet werden. Interessanterweise muß man die Wellenfunktion nur bis  $|\psi^{(i-1)}\rangle$  kennen, um die Energie bis zur  $i$ -ten Ordnung zu entwickeln.

Allerdings benötigt man die Wellenfunktion bis zu einer Ordnung  $\lambda^i$ , um daraus den Grundzustandserwartungswert eines Operators  $\mathcal{O}$  zu berechnen:

$$\langle \mathcal{O} \rangle = \mathcal{N}^{-1} \sum_{i \geq 0} \lambda^i \sum_{j=0}^i \langle \psi^{(i-j)} | \mathcal{O} | \psi^{(j)} \rangle, \quad (1.37)$$

wobei  $\mathcal{N}$  die Norm bezeichnet und durch

$$\mathcal{N} = \langle \psi | \psi \rangle = \sum_{i \geq 0} \lambda^i \sum_{j=0}^i \langle \psi^{(i-j)} | \psi^{(j)} \rangle \quad (1.38)$$

gegeben ist. Damit das Linked-Cluster-Theorem benutzt werden kann, muss wiederum überprüft werden, ob  $\mathcal{O}$  über unverbundene Cluster additiv ist!

### 1.3.2 Störungstheorie für entartete Zustände

Will man die Dynamik angeregter Zustände untersuchen, so sind die zu entwickelnden Zustände bezüglich  $\mathcal{H}_0$  entartet. In Abschnitt 1.1.2 haben wir bereits gesehen, dass es sinnvoll ist, einen effektiven HAMILTON-Operator zu konstruieren, welcher mit einer Fouriertransformation diagonalisiert werden kann.<sup>14</sup>

Wir bringen  $\mathcal{S}^{-1}$  auf die andere Seite von Gleichung (1.18), wobei wir die in (1.19) angegebene Darstellung<sup>‡</sup> für  $\mathcal{S}$  benutzen, und betrachten lediglich die  $j$ -te Spalte:

$$\mathcal{H}|\psi_j\rangle = \sum_{i=1}^L h^{\text{eff}}(j, i)|\psi_i\rangle. \quad (1.39)$$

$L$  bezeichnet hier die Anzahl der Knoten des zu Grunde liegenden Clusters bzw. den Entartungsgrad. Damit können  $|\psi_i\rangle$  und  $h^{\text{eff}}(i, j)$  nach Potenzen von  $\lambda$  entwickelt werden:

$$|\psi_i\rangle = \sum_{k=0}^{\infty} \lambda^k |\psi_i^{(k)}\rangle, \quad (1.40)$$

$$h^{\text{eff}}(i, j) = \sum_{k=0}^{\infty} \lambda^k h_k^{\text{eff}}(i, j). \quad (1.41)$$

Setzt man diese Gleichungen in (1.39) ein und vergleicht die Koeffizienten von  $\lambda^k$ , so erhält man

$$\mathcal{H}_0|\psi_i^{(k)}\rangle + \mathcal{H}_1|\psi_i^{(k-1)}\rangle = \sum_{j=1}^L \sum_{k'=0}^k h_{k-k'}^{\text{eff}}(i, j)|\psi_j^{(k')}\rangle. \quad (1.42)$$

Prinzipiell können damit Rekursionsgleichungen für  $h^{\text{eff}}$  bzw. für  $\psi_i$  aufgestellt werden. Nimmt man an, dass die Ähnlichkeitstransformation  $\mathcal{S}$  die entarteten Zustände nicht untereinander mischt, d.h. dass der linke obere  $L \times L$  Block die Identitätsmatrix ist, so gilt für Zustände  $|m\rangle$  aus diesem entarteten Unterraum:

$$\langle m | \psi_i^{(k)} \rangle = \delta_{m,i} \delta_{k,0}. \quad (1.43)$$

Die Komponenten des effektiven HAMILTON-Operators sind gegeben durch:

$$\langle m | \mathcal{H}_1 | \psi_i^{(k-1)} \rangle = h_k^{\text{eff}}(i, m). \quad (1.44)$$

<sup>‡</sup>In dieser Darstellung sind die Spaltenvektoren von  $\mathcal{S}$  die Eigenzustände zu  $\mathcal{H}_0$ .

Die Projektion von  $|\psi_i^{(k)}\rangle$  auf Eigenzustände  $|n\rangle$  von  $\mathcal{H}_0$  **außerhalb** des entarteten Unterraums führt schließlich auf:

$$\langle n|\psi_i^{(k)}\rangle = \frac{1}{E_0 - E_n} \left[ \langle n|\mathcal{H}_1|\psi_i^{(k-1)}\rangle - \sum_{i=1}^L \sum_{k'=0}^{k-1} \langle n|\psi_i^{(k')}\rangle h_{k-k'}^{\text{eff}}(l, i) \right]. \quad (1.45)$$

Hier ist  $E_0$  die ungestörte Energie der entarteten Zustände und  $E_n = \langle n|\mathcal{H}_0|n\rangle$  die der übrigen Zustände. Um die letzten beiden Gleichungen auf einem Computer zu implementieren, ist es sinnvoll, die Zustände  $|\psi_i^{(k)}\rangle$  nach Eigenzuständen von  $\mathcal{H}_0$  zu entwickeln. Dieser rein technische Aspekt wird im Anhang A.3 näher erläutert.

## 1.4 Der dynamische Strukturfaktor

Mit Hilfe von Neutronenstreuung ist es möglich, sowohl die räumlichen als auch die zeitlichen Korrelationen magnetischer Anregungen zu vermessen. Dabei koppelt das magnetische Moment der Neutronen an das der ungepaarten Elektronen in der Probe. Der differentielle Wirkungsquerschnitt für unpolarisierte Neutronen und identische magnetische Streuzentren ist:<sup>43</sup>

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k_f}{k_i} \left( \gamma r_0 \frac{1}{2} g F(\mathbf{q}) \right)^2 \sum_{\alpha\beta} (\delta_{\alpha\beta} - q_\alpha q_\beta) S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega). \quad (1.46)$$

Hier bezeichnet  $\gamma = -1.913$  das gyromagnetische Verhältnis,  $r_0 = 0.2818 \cdot 10^{-12} \text{cm}$  ist der klassische Elektronenradius,  $g$  ist der Landé Faktor,  $k_i$  und  $k_f$  sind die Wellenzahlen der einfallenden bzw. der gestreuten Neutronen und  $\mathbf{q}$  ist der normierte Streuvektor<sup>§</sup>. Schließlich ist  $F(\mathbf{q})$  der atomare Formfaktor und  $S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega)$  bezeichnet die magnetische Streufunktion bzw. den dynamischen Strukturfaktor. Das so genannte *Fluktuations-Dissipations-Theorem*<sup>43</sup> stellt einen Zusammenhang zwischen dem dynamischen Strukturfaktor und dem Imaginärteil der Suszeptibilität her:

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = \frac{\hbar}{\pi} \frac{1}{1 - e^{-\omega/T}} \text{Im}\chi(\mathbf{q}, \omega). \quad (1.47)$$

Dieses Theorem zeigt, dass sich das magnetische Moment der Neutronen wie ein magnetisches Feld verhält, welches die dynamische Response der Probe vermisst. Der dynamische Strukturfaktor ist somit von besonderem experimentellen Interesse, da er bis auf kinematische Faktoren direkt proportional zum differentiiellen Streuquerschnitt ist und somit einen direkten Einblick in den atomaren, magnetischen Aufbau der Probe liefert.

Man kann zeigen, dass  $S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega)$  für lokalisierte Spins auf einem BRAVAIS-Gitter folgendermaßen zu berechnen ist:<sup>43</sup>

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{-i\omega t} \langle S^\alpha(\mathbf{q}) S^\beta(-\mathbf{q}) \rangle \quad (1.48)$$

<sup>§</sup>Im Allgemeinen setzt sich der Streuvektor aus einem Gittervektor und dem Wellenvektor der Anregung zusammen.



mit

$$S^\alpha(\mathbf{q}) = \sum_{\mathbf{R}} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{R}} S^\alpha(\mathbf{R}). \quad (1.49)$$

Die Klammern  $\langle \dots \rangle$  bezeichnen hier den thermischen Erwartungswert, der für Systeme mit einer Anregungslücke im Grenzfall  $T = 0$  in den Grundzustandserwartungswert  $\langle 0 | \dots | 0 \rangle$  übergeht. Im HEISENBERG-Bild wird (1.48) schließlich zu:

$$S^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega) = \sum_n \langle 0 | \mathcal{S}^\alpha(\mathbf{q}) | n \rangle \langle n | \mathcal{S}^\beta(-\mathbf{q}) | 0 \rangle \delta(\omega + \omega_0 - \omega_n(\mathbf{q})), \quad (1.50)$$

wobei  $\omega_n(\mathbf{q})$  die Energie der  $n$ -ten Anregung ist.

### 1.4.1 Formalismus zur Cluster-Dimer-Entwicklung

Von besonderem Interesse ist bei dimerisierten Spinsystemen die Singlett-Triplett-Anregung  $\omega_1(\mathbf{q})$  und der korrespondierende Beitrag des dynamischen Strukturfaktors,<sup>44</sup> welcher auch *Singlett-Triplett-Übergangsstärke*  $S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega)$  genannt wird. Im Folgenden wollen wir uns ausschließlich auf diesen Teil des Spektrums beschränken. Betrachten wir nun eine Zick-

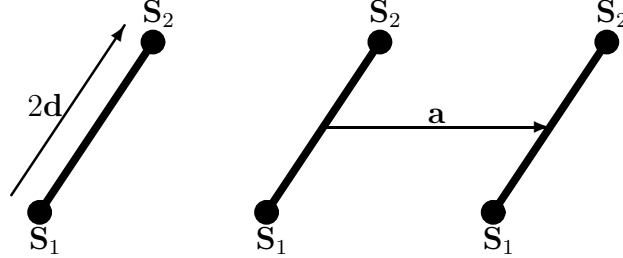


ABBILDUNG 1.7: Relative Lage der Spinoperatoren auf einer Zickzackkette. Die dicken Linien bezeichnen die Dimere. Die Wechselwirkungen zwischen den Dimeren sind nicht eingezeichnet.

zackkette wie sie in Abbildung 1.7 dargestellt ist. Die Spins auf den Dimeren, welche zur Unterscheidung einen weiteren Index tragen, werden durch den Vektor  $2\mathbf{d}$  miteinander verbunden. Die Schwerpunkte der Dimere haben wie üblich einen Abstand von  $a = 1$ . Gleichung (1.49) muß demnach in folgender Weise umgeschrieben werden:

$$S^\alpha(\mathbf{q}) = \sum_n e^{-iqn} (e^{-i\mathbf{q}\mathbf{d}} S_1^\alpha(n) + e^{i\mathbf{q}\mathbf{d}} S_2^\alpha(n)), \quad (1.51)$$

wobei  $q$  die Projektion des Wellenvektors  $\mathbf{q}$  auf die Kettenrichtung ist. Unter Ausnutzung der Translationsinvarianz und der Inversionssymmetrie bezüglich der Dimerschwerpunkte

(s. Anhang B.1) wird (1.50) schließlich zu

$$\begin{aligned}
S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega_1(\mathbf{q})) &= 2 \sum_{n>0} \left( A_{11}^{\alpha\beta}(n) + A_{22}^{\alpha\beta}(n) \right) \cos qn \\
&+ 2 \sum_{n>0} \left( A_{12}^{\alpha\beta}(n) \cos(qn - 2\mathbf{q}\mathbf{d}) + A_{21}^{\alpha\beta}(n) \cos(qn + 2\mathbf{q}\mathbf{d}) \right) \\
&+ A_{11}^{\alpha\beta}(0) + A_{22}^{\alpha\beta}(0) + e^{2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{12}^{\alpha\beta}(0) + e^{-2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{21}^{\alpha\beta}(0)
\end{aligned} \tag{1.52}$$

mit

$$A_{ij}^{\alpha\beta}(n) = \langle 0 | \mathcal{S}_i^\alpha(0) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_j^{\beta\dagger}(n) | 0 \rangle, \quad i, j = 1, 2. \tag{1.53}$$

Für kompliziertere Systeme, die beispielsweise vier Spins in der Einheitszelle haben, wird (1.52) mehr Terme besitzen. Allerdings liegt auch dort der Schwerpunkt der Berechnung auf den Größen  $A_{ij}^{\alpha\beta}(n)$ . Probleme ergeben sich jedoch, falls es zwei unterschiedlich orientierte Dimere in der Einheitszelle gibt. Eine dimerbasierte Entwicklung der Singlett-Triplett-Übergangsstärke ist dann nicht möglich. Eine explizite Berechnung ist daher in Abschnitt 3.3 dargestellt.

Wir haben bereits gesehen (s. Abschnitt 1.3.2), dass das Anregungsspektrum über einen effektiven HAMILTON-Operator  $\mathcal{H}^{\text{eff}}$ , der die Dynamik der Einteilchenzustände  $|\psi^{(i)}\rangle$  beschreibt, berechnet werden kann. Wir definieren daher zunächst einen Projektionsoperator, der auf diese Einteilchenzustände abbildet:

$$\mathcal{P} = |1\rangle\langle 1| = \sum_{ij} (g^{-1})_{ij} |\psi^{(i)}\rangle\langle\psi^{(j)}|. \tag{1.54}$$

Hier ist  $g$  die Überlappmatrix der  $|\psi^{(i)}\rangle$ :

$$g_{ij} = \langle\psi^{(i)}|\psi^{(j)}\rangle. \tag{1.55}$$

Das Invertieren von  $g$  erweist sich als einfach: Für  $\lambda \rightarrow 0$  ist  $g$  die Einheitsmatrix, da in der führenden Ordnung  $\lambda^0$  die Zustände  $|\psi^{(i)}\rangle$  einfach die Eigenzustände  $|i\rangle$  des ungestörten HAMILTON-Operators sind:

$$g = I - \tilde{g}. \tag{1.56}$$

Für die Matrixnorm gilt damit  $\|\tilde{g}\| < 1$ , sodass  $g$  über eine geometrische Reihe invertiert werden kann:

$$(I + \tilde{g})^{-1} = \sum_{i=0}^{\infty} \tilde{g}^i. \tag{1.57}$$

Hat man den Projektionsoperator  $\mathcal{P}$  über die Einteilchenanregungen als Reihenentwicklung vorliegen, so können die  $A_{ij}^{\alpha\beta}(n)$  mit der im Abschnitt 1.3.1 vorgestellten Methode zur Berechnung von Grundzustandserwartungswerten erhalten werden.

## 1.5 Verarbeitung von Potenzreihen

Ein wichtiger Punkt im Zusammenhang mit der Clusterentwicklung ist die Verarbeitung bzw. Analyse von Potenzreihen. Dabei spielt sowohl die Gewinnung von Reihenentwicklungen mehrerer Parameter aus denen mit nur einem Parameter als auch die Extrapolation singulärer Potenzreihen eine Rolle.

### 1.5.1 Gewinnung von Potenzreihen mehrerer Variablen

In Abschnitt 1.3 haben wir gesehen, dass es möglich ist, die Clusterentwicklung auch für Systeme mit mehr als einer Variablen umzusetzen. Jedoch zeigt sich in der Praxis, dass es technisch sehr aufwendig ist und damit nur niedrige Ordnungen erreicht werden können. Dennoch ist man in der Lage, durch mehrfache Berechnung von Potenzreihen für unterschiedliche Variablensätze des HAMILTON-Operators der Form (1.30) die eigentliche Störungsreihe, welche mehrere Variablen enthält, zu konstruieren.

Betrachten wir die Erzeugung einer Potenzreihe, welche zur Vereinfachung nur eine Funktion zweier Variablen  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  ist. Das anschließende Verfahren kann natürlich auf mehr als zwei Veränderliche erweitert werden.

Nehmen wir an, wir haben die Potenzreihe bereits bis zur Ordnung  $n - 1$  in den Variablen  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  berechnet und wollen damit die  $n$ -te Ordnung bestimmen. Diese (endliche) Reihe hat die Form:

$$F^{(n)}(\lambda_1, \lambda_2) = \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^i d_j^{(i)} \lambda_1^j \lambda_2^{i-j}. \quad (1.58)$$

Das aus der Clusterentwicklung erhaltene Ergebnis ist eine Funktion in nur einer Variablen  $\lambda$  und hat in Anlehnung an (1.30) in  $n$ -ter Ordnung die folgende Gestalt:

$$P^{(n)}(\tilde{\lambda}_1, \tilde{\lambda}_2) = \sum_{i=0}^n c_{\tilde{\lambda}_1, \tilde{\lambda}_2}^{(i)} \lambda^i. \quad (1.59)$$

Die Abhängigkeiten von den Wechselwirkungen  $\lambda_i$  sind in (1.59) in den Koeffizienten verborgen.

Setzen wir zunächst  $\lambda_1 = \tilde{\lambda}_1 = 1$  und  $\lambda_2 = \tilde{\lambda}_2 = 0$  und werten  $P$  an der Stelle  $\lambda = 1$  aus, so gilt:

$$\begin{aligned} 0 &= P^{(n)}(1, 0)|_{\lambda=1} - F^{(n)}(1, 0) \\ &= \underbrace{\sum_{i=0}^{n-1} (c_{1,0}^{(i)} - d_i^{(i)})}_{=0} + c_{1,0}^{(n)} - d_n^{(n)}. \end{aligned} \quad (1.60)$$

Die herausgestellte Summe verschwindet, da wir die Potenzreihe bis zur Ordnung  $n-1$  nach Voraussetzung bereits vorliegen haben. Eine analoge Rechnung kann man für  $\lambda_1 = \tilde{\lambda}_1 = 0$

und  $\lambda_2 = \tilde{\lambda}_2 = 1$  durchführen und findet schließlich

$$c_{1,0}^{(n)} = d_n^{(n)} \quad \text{sowie} \quad c_{0,1}^{(n)} = d_0^{(n)}. \quad (1.61)$$

Setzen wir nun  $\lambda_1 = \tilde{\lambda}_1 = 1 - \delta_k$  und  $\lambda_1 = \tilde{\lambda}_1 = \delta_k$ ,  $k = 1, \dots, n-1$  mit paarweise verschiedenen  $\delta_k$  und  $\delta_k \in ]0, 1[$  und berechnen die Differenz ein weiteres Mal, so erhalten wir:

$$\begin{aligned} 0 &= P^{(n)}(1 - \delta_k, \delta_k)|_{\lambda=1} - F^{(n)}(1 - \delta_k, \delta_k) \\ &= \sum_{i=0}^{n-1} \left[ c_{1-\delta_k, \delta_k}^{(i)} - \sum_{j=0}^i d_j^{(i)} (1 - \delta_k)^j \delta_k^{i-j} \right] \\ &\quad + c_{1-\delta_k, \delta_k}^{(n)} - d_n^{(n)} (1 - \delta_k)^n - d_0^{(n)} \delta_k^n - \sum_{j=1}^{n-1} d_j^{(n)} (1 - \delta_k)^j \delta_k^{n-j}. \end{aligned} \quad (1.62)$$

Die erste Summe verschwindet wieder nach Voraussetzung, sodass sich ein System aus  $n-1$  linearen Gleichungen mit  $n-1$  Unbekannten  $d_j^{(n)}$ ,  $j = 1, \dots, n-1$  ergibt:

$$c_{1-\delta_k, \delta_k}^{(n)} - d_n^{(n)} (1 - \delta_k)^n - d_0^{(n)} \delta_k^n = \sum_{j=1}^{n-1} d_j^{(n)} (1 - \delta_k)^j \delta_k^{n-j}, \quad k = 1, \dots, n-1. \quad (1.63)$$

Die Lösung von (1.63) ergibt die Koeffizienten der Reihe (1.58) in  $n$ -ter Ordnung. Damit hat man aus der  $n-1$ -ten Ordnung die  $n$ -te konstruiert und kann schließlich alle weiteren Ordnungen sukzessive bestimmen.

Die Berechnung der Koeffizienten  $d_n^{(n)}$  und  $d_0^{(n)}$  muss nicht gesondert geschehen, sondern kann durch Hinzunahme zweier weiterer Gleichungen aus (1.63) extrahiert werden. In der Praxis zeigt sich jedoch, dass die Rundungsfehler bei der Generierung der Reihen  $P^{(n)}$  durch Nullsetzen möglichst vieler Wechselwirkungen minimiert werden können und dadurch die Koeffizienten  $d_n^{(n)}$  und  $d_0^{(n)}$  eine hohe Genauigkeit besitzen. Die aus (1.63) bestimmten Koeffizienten weisen zusätzlich die Ungenauigkeiten auf, die sich aus dem Lösen des Gleichungssystems unter Benutzung von Fließkommazahlen ergeben.

## 1.5.2 Extrapolation singulärer Potenzreihen

Eine Extrapolation singulärer Potenzreihen wird immer dann nötig, wenn innerhalb des Konvergenzradius eine Phasengrenze erreicht wird. Im folgenden werden Methoden vorgestellt, die ursprünglich zur Analyse divergenter thermodynamischer Größen im Rahmen der Theorie der Phasenübergänge entwickelt wurden. Sie eignen sich insbesondere zur Bestimmung kritischer Kopplungen und kritischer Exponenten.<sup>45</sup>

Eine wichtige Voraussetzung ist, dass am kritischen Punkt  $z_c$  die untersuchte Funktion  $F(z)$  eine potenzartige Singularität besitzt:

$$F(z) \approx A \left( 1 - \frac{z}{z_c} \right)^{-\lambda} \quad \text{für } z \rightarrow z_c. \quad (1.64)$$

Dabei sind  $\lambda$  der kritische Exponent und  $A$  die Amplitude der Singularität. Für den speziellen Fall  $\lambda = 0$  ist  $F(z)$  entweder endlich oder besitzt eine logarithmische Singularität.

Betrachten wir zunächst eine allgemeine Potenzreihe, die zur Vereinfachung nur eine komplexe Variable  $z$  enthält:

$$F(z) = \sum_{n=0}^{\infty} a_n (z - z_0)^n. \quad (1.65)$$

Die Koeffizienten  $a_n$  sind komplexe Zahlen, und  $z_0$  heißt Entwicklungspunkt. Besitzt  $F(z)$  einen *Konvergenzradius*  $r \in [0, +\infty[$ , dann konvergiert  $F(z)$  auf  $\{z : |z - z_0| < r\}$  und divergiert auf  $\{z : |z - z_0| > r\}$ . Auf dem Konvergenzkreis  $D_r(z_0) = \{z : |z - z_0| = r\}$  gibt es somit mindestens einen nicht-analytischen Punkt. Der Konvergenzradius genügt der *Formel von CAUCHY-HADAMARD*:

$$\frac{1}{r} = \limsup \sqrt[n]{|a_n|}. \quad (1.66)$$

Haben alle Koeffizienten  $a_n$  dasselbe Vorzeichen, kann beispielsweise die Ratio-Methode zur Bestimmung kritischer Größen benutzt werden.<sup>45</sup>

Im Allgemeinen sind die Vorzeichen der  $a_n$  unterschiedlich, sodass *Padé-Approximanten* geeigneter sind. Diese sind gebrochen rationale Funktionen der Form:

$$[M, N]_F = \frac{p_0 + p_1(z - z_0) + p_2(z - z_0)^2 + \dots + p_M(z - z_0)^M}{1 + q_1(z - z_0) + q_2(z - z_0)^2 + \dots + q_N(z - z_0)^N}. \quad (1.67)$$

Die Koeffizienten  $p_0, \dots, p_M$  und  $q_0, \dots, q_N$  werden so gewählt, dass die Entwicklung von  $[N, M]_F$  mit der von  $F(z)$  bis zur Ordnung  $M + N$  übereinstimmt, d.h.

$$F(z) = [M, N]_F + \mathcal{O}((z - z_0)^{M+N+1}). \quad (1.68)$$

Damit sind die Koeffizienten eindeutig festgelegt.<sup>46</sup> Neben rekursiven Methoden zur Generierung von Padé-Approximanten, wird häufig eine direkte verwendet. Berechnet man aus (1.68) die Koeffizienten von  $z^{M+1}$  bis  $z^{M+N}$ , so ergibt sich ein lineares Gleichungssystem für die  $q_0, \dots, q_N$ . Substituiert man die Lösungen in den verbleibenden  $M + 1$  linearen Gleichungen, die man aus den Koeffizienten von  $z^0$  bis  $z^M$  gewinnt, so können die Koeffizienten  $p_0, \dots, p_M$  ermittelt werden. In der Regel wird die Berechnung mit Hilfe eines Computers durchgeführt, was insbesondere die Invertierung einer Matrix beinhaltet. Aufgrund der endlichen Rechengenauigkeit bei der Benutzung von Fließkommazahlen sollte durch Entwickeln der Approximante und Vergleich mit der ursprünglichen Funktion das Ergebnis überprüft werden. Falls eine der Matrizen singular ist, existiert die Approximante nicht.

Man kann zeigen, dass die so genannten diagonalen Padé-Approximanten  $[n, n]$  mit  $n = 1, 2, \dots$  und die nahe-diagonalen Padé-Approximanten  $[n + j, n]$  mit  $j \ll n$  das beste Konvergenzverhalten aufweisen. Zusammen mit den nebendiagonalen Padé-Approximanten  $[n - 1, n]$  bilden die diagonalen eine obere bzw. untere Grenze, was eine Fehlerabschätzung ermöglicht.

Besitzt die Approximante innerhalb des Konvergenzradius der ursprünglichen Reihe einen Pol, der aus einer Nullstelle des Nennerpolynoms in (1.67) herrührt, so wird die Approximante als *defekt* bezeichnet und sollte für eine weitere Analyse nicht herangezogen werden. Padé-Approximanten sind insbesondere für die Analyse von Potenzreihen der Form (1.64) geeignet, wobei die Amplitude der Singularität eine reguläre Funktion sein kann:

$$F(z) \approx \left(1 - \frac{z}{z_c}\right)^{-\lambda} A(z) \quad \text{mit } A(z) \text{ regulär für } z \rightarrow z_c. \quad (1.69)$$

Daraus folgt, dass die logarithmische Ableitung

$$D(z) \equiv \frac{d}{dz} \ln F(z) \approx \frac{-\lambda}{z - z_c} [1 + \mathcal{O}(z - z_c)] \quad \text{für } z \rightarrow z_c \quad (1.70)$$

einen einfachen Pol bei  $z_c$  besitzt. Da einfache Pole von Padé-Approximanten exakt wiedergegeben werden, konvergieren Approximanten der Funktion  $D(z)$ , die so genannten *Dlog-Padé-Approximanten*  $\log[M, N]$ , besser als die der Funktion  $F(z)$ . Während ein Pol in  $\log[M, N]$  in der Nähe von  $z_c$  einen genaueren Schätzwert für  $z_c$  ergibt, liefert das zugehörige Residuum eine Näherung für den Exponenten  $-\lambda$ .

Auf der anderen Seite kann, falls ein sehr genauer Schätzwert für  $z_c$  vorliegt, der kritische Exponent genauer bestimmt werden, wenn man Padé-Approximanten für die Reihe

$$\tilde{\lambda}(z) \equiv (z - z_c)D(z) \approx \lambda + \mathcal{O}(z - z_c) \quad \text{für } z \rightarrow z_c \quad (1.71)$$

aufstellt und diese an der Stelle  $z = z_c$  auswertet.

Schließlich kann man so genannte *Dlog<sup>2</sup>-Padé-Approximanten*  $\log^2[M, N]$  berechnen, die Approximanten der folgenden Reihe sind:

$$\frac{1}{D(z)} \frac{d}{dz} \ln \frac{dF}{dz} \approx \frac{\lambda + 1}{\lambda} + \mathcal{O}(z - z_c) \quad \text{für } z \rightarrow z_c. \quad (1.72)$$

Diese Möglichkeit bietet sich insbesondere dann an, wenn der Wert für  $z_c$  nur mit geringer Genauigkeit zur Verfügung steht. Da die Berechnung der Reihe (1.72) unabhängig von  $z_c$  ist, kann dennoch der Exponent  $\lambda$  sehr genau bestimmt werden.

Es gibt eine große Anzahl weiterer Möglichkeiten, die Potenzreihen umzuformen und dazu Approximanten zu berechnen.<sup>45</sup>

## KAPITEL 2

### Eindimensionale dimerisierte Spinsysteme

Eindimensionale Spinsysteme wie etwa antiferromagnetische  $S = 1/2$ -Spinketten oder  $S = 1/2$ -Spinleitern wurden in den vergangenen Dekaden erfolgreich zur quantenmechanischen Modellierung des Magnetismus in einer Vielzahl von Materialien herangezogen. Insbesondere wurden Spinleitern im Zusammenhang mit der Hochtemperatursupraleitung in Kupratverbindungen intensiv studiert. Erste Realisierungen von Hochtemperatursupraleitern waren durch eine zweidimensionale Vernetzung entstandene, geschichtete Kuprate, wie beispielsweise  $(\text{La,Ba})_2\text{CuO}_4$  (1986)<sup>47</sup> oder  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  (1987). In den darauf folgenden Jahren konnte die Übergangstemperatur durch Synthese weiterer Kuprate systematisch erhöht werden.<sup>48,49</sup> Allerdings kann in diesen Materialien die supraleitende Phase nur mit Hilfe eines hohen Umgebungsdrucks stabilisiert werden. Erst im letzten Jahr konnten Kupferoxide mit einer Leiterstruktur synthetisiert werden, die ohne Einwirkung eines hohen Drucks in den supraleitenden Zustand überführt werden können.<sup>50,51</sup>

Auf der einen Seite ist daher die theoretische Untersuchung eindimensionaler Spinleitern von grundlegender Natur. Auf der anderen Seite bieten Spinleitern auch einen Zugang zu zweidimensionalen HEISENBERG-Antiferromagneten auf dem Quadratgitter, indem man die Änderung der magnetischen Eigenschaften der Leiter in Abhängigkeit von der Holmanzahl bzw. von der Wechselwirkung zwischen diesen studiert.<sup>52,53</sup> Wesentliche Unterschiede zeigen sich dabei zwischen Spinleitern mit einer geraden und einer ungeraden Anzahl von Holmen: Während erstere eine Energielücke zwischen dem Grundzustand ( $S = 0$ ) und dem ersten angeregten Zustand ( $S = 1$ ) besitzen, zeigen letztere keine Anregungslücke. Dieses Resultat ist in Analogie zur HALDANESchen Hypothese<sup>4</sup> zusehen: Demnach entsprechen Spinleitern mit einer geraden Holmanzahl antiferromagnetischen Spinketten mit ganzzahligem Spin und diejenigen mit einer ungeraden Holmanzahl antiferromagnetischen Spinketten mit halbzahligem Spin.<sup>54</sup> Eine direkte experimentelle Verifikation der theoretischen Vorhersagen ist mit einer Reihe von Strontiumkupraten<sup>55-57</sup>  $\text{Sr}_{m-1}\text{Cu}_{m+1}\text{O}_{2m}$  ( $m = 3, 5, \dots$ ) möglich, die aus nahezu entkoppelten  $S = 1/2$ -Leitern mit  $n$  Holmen bestehen, wobei  $n = (m + 1)/2$  ist. Beispielsweise zeigen Messungen der magnetischen Suszeptibilität, dass  $\text{SrCu}_2\text{O}_3$  eine Anregungslücke besitzt,  $\text{Sr}_2\text{Cu}_3\text{O}_5$  hingegen nicht.

In diesem Kapitel werden einige Eigenschaften der isotropen, zweiholmigen  $S = 1/2$ -Spinleiter diskutiert. Hierzu betrachten wir einen allgemeinen Plaketten-HAMILTON-Operator, der neben bilinearen auch biquadratische Wechselwirkungen berücksichtigt. In Abbildung 2.1 sind diese Wechselwirkungen skizziert:

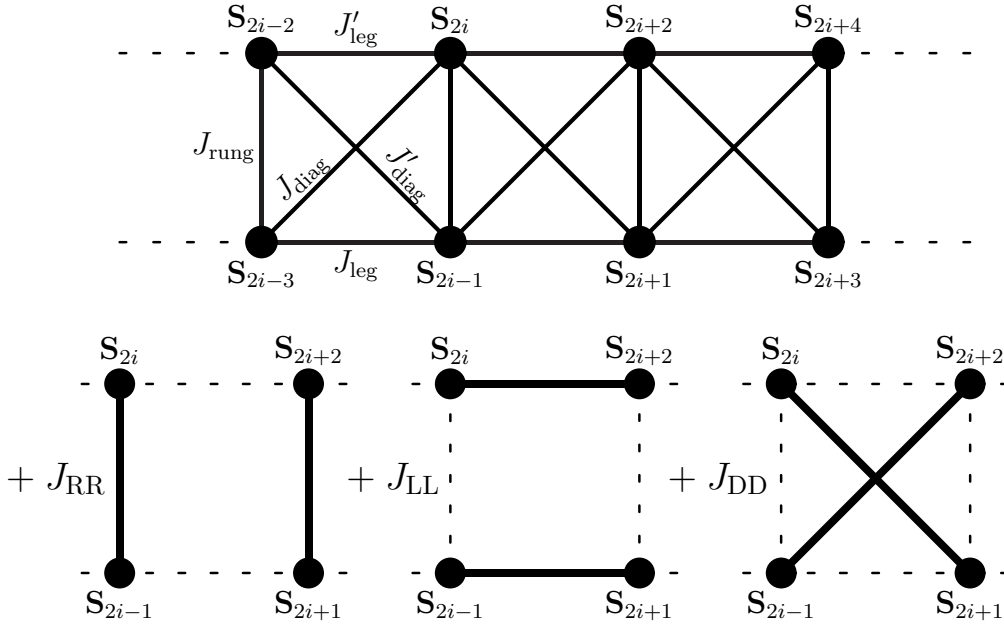


ABBILDUNG 2.1: Schematische Darstellung des HAMILTON-Operators (2.1). Oben: Bilineare Wechselwirkungen. Unten: Biquadratische Wechselwirkungen.

$$\begin{aligned}
 \mathcal{H} = \sum_{i=1}^{\mathcal{N}/2} & \left( J_{\text{rung}} \mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i} + J_{\text{leg}} \mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i+1} + J'_{\text{leg}} \mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+2} \right. \\
 & + J_{\text{diag}} \mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+1} + J'_{\text{diag}} \mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i+2} + J_{\text{RR}} (\mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i}) (\mathbf{S}_{2i+1} \mathbf{S}_{2i+2}) \\
 & \left. + J_{\text{LL}} (\mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i+1}) (\mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+2}) + J_{\text{DD}} (\mathbf{S}_{2i-1} \mathbf{S}_{2i+2}) (\mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+1}) \right). \quad (2.1)
 \end{aligned}$$

Hier und im Folgenden werden periodische Randbedingungen (PB) vorausgesetzt, d.h.

$$\mathbf{S}_{\mathcal{N}+1} \equiv \mathbf{S}_1 \quad \text{und} \quad \mathbf{S}_{\mathcal{N}+2} \equiv \mathbf{S}_2. \quad (2.2)$$

$\mathcal{N}$  bezeichnet die (gerade) Anzahl der Spins. Die  $\mathbf{S}_i$  sind Spin-1/2-Operatoren, welche den Vertauschungsrelationen der Drehimpulsalgebra gehorchen ( $\hbar = 1$ ):

$$[S_i^\alpha, S_j^\beta] = i \delta_{ij} \epsilon^{\alpha\beta\gamma} S_i^\gamma. \quad (2.3)$$

Produkte aus Spinoperatoren lassen sich mit Hilfe der so genannten *Spin-Flipoperatoren* ausdrücken:

$$\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j = S_i^z S_j^z + \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^+). \quad (2.4)$$

Deren Wirkung auf Objekte mit Spin  $S = 1/2$  ist auf die übliche Weise definiert:

$$\begin{aligned}
 S^+ |\uparrow\rangle &= 0, & S^- |\uparrow\rangle &= |\downarrow\rangle, \\
 S^+ |\downarrow\rangle &= |\uparrow\rangle, & S^- |\downarrow\rangle &= 0.
 \end{aligned} \quad (2.5)$$



Da alle Komponenten des Gesamtspins mit dem HAMILTON-Operator (2.1) vertauschen, d.h.

$$[\mathcal{H}, \mathbf{S}^{\text{tot}}] = 0 \quad \text{mit} \quad \mathbf{S}^{\text{tot}} = \sum_{i=1}^{\mathcal{N}} \mathbf{S}_i, \quad (2.6)$$

lassen sich die Eigenzustände mit den Quantenzahlen *Magnetisierung* und *Gesamtspin* charakterisieren.

Aufgrund von Geometrie und periodischen Randbedingungen ist  $\mathcal{H}$  invariant gegenüber Gittertranslationen der Länge  $na$  ( $n \in \mathbb{N}$ ), wobei  $a$  der Abstand der Dimerswerpunkte ist: Jede Einheitszelle enthält zwei Spins. Damit erhalten wir für die erlaubten *Wellenzahlen*:

$$q_n = \frac{n}{\mathcal{N}/2} \frac{2\pi}{a} \quad \text{mit} \quad n = 0, \dots, \mathcal{N}/2 - 1. \quad (2.7)$$

Im Folgenden stehen dimerisierte Systeme im Vordergrund, d.h. die Wechselwirkung auf den Sprossen  $J_{\text{rung}}$  ist die wesentliche und alle übrigen können als kleine Störungen angesehen werden. Im Grenzfall verschwindender Störungen ist das Problem in der *Dimerbasis* exakt lösbar: Je zwei Spins koppeln antiferromagnetisch ( $J_{\text{rung}} > 0$ ) miteinander und bilden Dimeren, deren quantenmechanische Eigenzustände entweder *Singletts* oder *Tripletts* sein können. Der lokale HILBERT-Raum besteht somit aus vier Zuständen (s. Tabelle 2.1). Der energetisch niedrigste Zustand ist das Singlett, sodass der Grundzustand des gesamten Systems ein direktes Produkt von Dimer-Singletts ist:

$$|S\rangle = \prod_{i=1}^{\mathcal{N}/2} |s\rangle_{2i-1, i}, \quad (2.8)$$

mit einer Energie von  $E_0 = -3J_{\text{rung}}\mathcal{N}/8$ .

Dimer-Eigenzustände		$S$	$S^z$	$E^{(\text{Dimer})}$
Singlett	$ s\rangle = ( \uparrow\downarrow\rangle -  \downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$	0	0	$-3J_{\text{rung}}/4$
Triplet	$ t^{(-)}\rangle =  \downarrow\downarrow\rangle$	1	-1	$J_{\text{rung}}/4$
	$ t^{(0)}\rangle = ( \uparrow\downarrow\rangle +  \downarrow\uparrow\rangle)/\sqrt{2}$	1	0	$J_{\text{rung}}/4$
	$ t^{(+)}\rangle =  \uparrow\uparrow\rangle$	1	+1	$J_{\text{rung}}/4$

TABELLE 2.1: Dimerbasis: Quantenmechanische Darstellung der Dimer-Eigenzustände und deren Eigenwerte.

Im anschließenden Abschnitt 2.1 werden zunächst einige wohlbekannte Punkte und Linien im Phasendiagramm der verallgemeinerten Spinleiter vorgestellt. Der darauf folgende Abschnitt 2.2 beschäftigt sich mit der alternierenden Spinkette und insbesondere mit dem HEISENBERG-Antiferromagneten. Es soll gezeigt werden, inwieweit die Clusterentwicklung die Eigenschaften wie Grundzustandsenergie, Anregungsenergie und Strukturfaktor wiedergeben kann. Im Abschnitt 2.3 betrachten wir dann die verallgemeinerte Spinleiter in Hinblick auf die Dispersion und geben einen Bereich an, wo das Minimum der Anregung an

inkommensurablen  $q$ -Werten zu finden ist. Schließlich diskutieren wir im Abschnitt 2.4 den Einfluss der zyklischen Vier-Spin-Wechselwirkung (Ringaustausch) auf die niederenergetischen Anregungen der Leiter. Es wird ein Phasendiagramm erstellt, welches die Linie mit verschwindender Anregungslücke enthält.

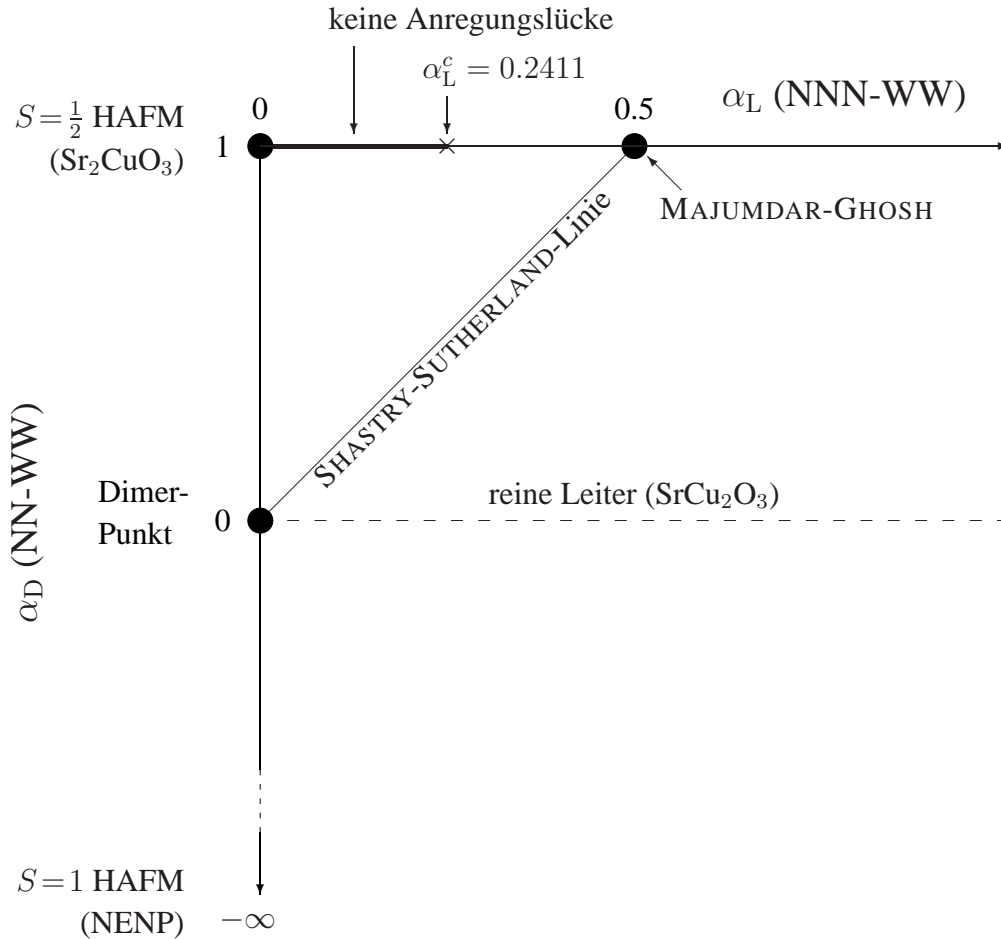


ABBILDUNG 2.2: Diagrammatische Darstellung des Parameterraums der verallgemeinerten Spinleiter.  $\alpha_D$  ist die Nächste-Nachbar-Wechselwirkung und  $\alpha_L$  die Übernächste-Nachbar-Wechselwirkung.

## 2.1 Spezialfälle der verallgemeinerten Spinleiter

Die verallgemeinerte isotrope Spinleiter bzw. die so genannte *Zickzackkette* erhält man, indem man in 2.1

$$J_{\text{leg}} = J'_{\text{leg}} = \alpha_L J_{\text{rung}}, \quad (2.9)$$

$$J_{\text{diag}} = \alpha_D J_{\text{rung}} \quad (2.10)$$

und

$$J'_{\text{diag}} = J_{\text{RR}} = J_{\text{LL}} = J_{\text{DD}} = 0 \quad (2.11)$$

einsetzt. Alle Wechselwirkungen werden in Einheiten der Sprossenwechselwirkung  $J_{\text{rung}}$  gemessen, sodass im Folgenden  $J_{\text{rung}} = 1$  ist. In Abbildung 2.2 sind einige Punkte bzw. Linien im  $\alpha_{\text{L}}\text{-}\alpha_{\text{D}}$ -Parameterraum hervorgehoben, die bekannte Spezialfälle der verallgemeinerten Spinleiter beschreiben.

- Der Dimer-Punkt ( $\alpha_{\text{L}} = 0, \alpha_{\text{D}} = 0$ ):

Das Modell reduziert sich auf ein einfaches 2-Spin-Problem und ist, wie oben bereits gezeigt wurde, exakt lösbar. Der Grundzustand ist ein Dimer-Singlett-Produktzustand mit Singletts auf den Sprossen:

$$|S\rangle = \prod_{i=1}^{\mathcal{N}/2} |s\rangle_{2i-1,i}. \quad (2.12)$$

Das übrige Spektrum erhält man durch Anregen der Singlett- zu Triplettsbindungen und besteht aus äquidistanten Linien mit Abstand  $J_{\text{rung}}$ .

- Das MAJUMDAR-GHOSH-Modell ( $\alpha_{\text{L}} = 1/2, \alpha_{\text{D}} = 1$ ):

Am MAJUMDAR-GHOSH-Punkt bricht der Grundzustand die Translationsinvarianz spontan und ist zweifach entartet mit Singlett-Bindungen entweder auf den Sprossen (R-Dimer, Abbildung 2.3(a)) oder auf den Diagonalen (D-Dimer, Abbildung 2.3(b)):

$$|G^{\pm}\rangle = \prod_{i=1}^{\mathcal{N}/2} |s\rangle_{2i\pm 1,i}. \quad (2.13)$$

Die niedrigste Anregung ist ein Paar von *Spinonen*, welches durch Aufbrechen einer Singlett-Bindung entsteht. Da die R- und D-Dimer-Konfigurationen energetisch äquivalent sind, können sich die Spinonen auf unterschiedlichen Holmen der Leiter unabhängig von ihrer relativen Entfernung frei bewegen (Abbildung 2.3(c)). Diese Streuzustände bilden daher ein Kontinuum. Ein Variationsansatz<sup>58</sup> zeigt aber, dass unterhalb des Kontinuums für  $q$ -Werte innerhalb eines eingeschränkten Bereichs ein gebundener Zustand existiert.

- Der  $S = 1/2$ -HEISENBERG-Antiferromagnet ( $S = 1/2$ -HAFM) ( $\alpha_{\text{L}} = 0, \alpha_{\text{D}} = 1$ ):

Die isotrope  $S = 1/2$ -Spinkette wurde bereits im letzten Jahrhundert intensiv studiert. Die wesentlichen Resultate sind mittels BETHE-Ansatzgleichungen<sup>5</sup> gewonnen worden: Der Grundzustand ist ein Spin-Singlett mit algebraisch zerfallenden räumlichen Korrelationsfunktionen. Die elementaren Anregungen sind Zustände mit  $S = 0$  und weisen keine Anregungslücke auf: Sie bestehen aus Streuzuständen von Spinonenpaaren, und die Spinonen tragen einen Spin  $S = 1/2$ .

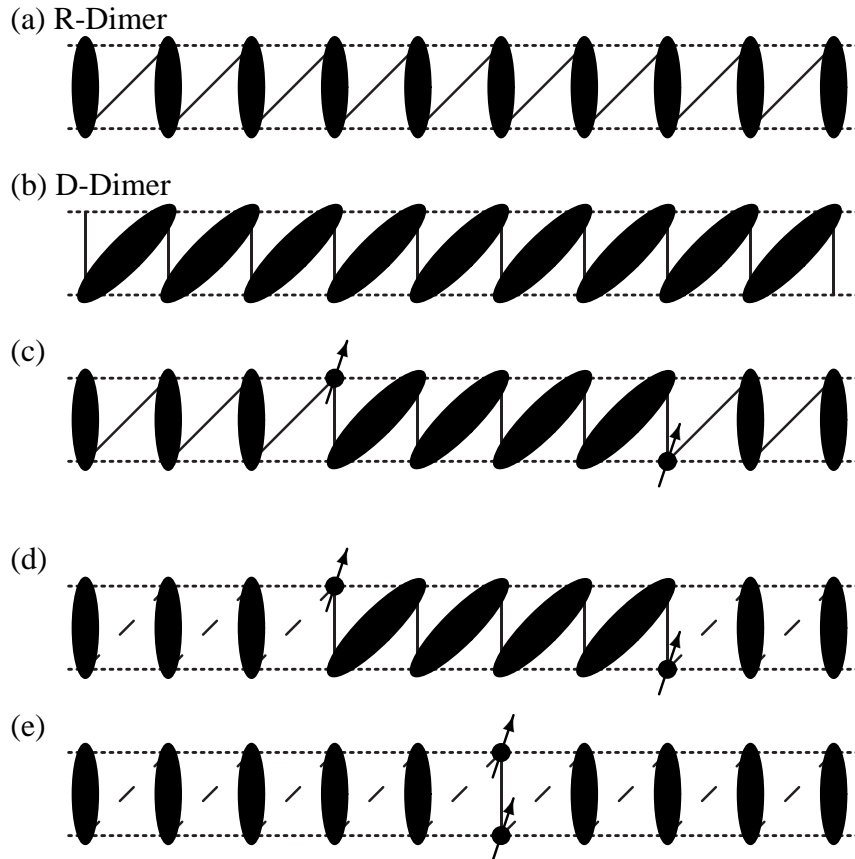


ABBILDUNG 2.3: Darstellung der niederenergetischen Anregungen auf der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie ( $\alpha_L$ ,  $\alpha_D = 2\alpha_L$ ). (a), (b): Entartete Grundzustände am MG-Punkt. (c): Die niedrigsten Anregungen am MG-Punkt, bestehend aus zwei Spinonen, welche sich auf den unterschiedlichen Holmen frei bewegen können. (d), (e): Anregungszustände auf der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie ( $\alpha_D < 1$ ), deren Energie proportional zum Abstand der Spinonen ist.

Der HAFM ist ein hervorragendes Beispiel dafür, dass mit Hilfe von Reihenentwicklungen auch Systeme mit verschwindender Anregungslücke näherungsweise beschrieben werden können. In Abschnitt 2.2 wird dieser Aspekt wieder aufgegriffen.

- Die SHASTRY-SUTHERLAND-Linie ( $\alpha_L$ ,  $\alpha_D = 2\alpha_L$ ): Sie verbindet den MAJUMDAR-GHOSH-Punkt mit dem Dimer-Punkt. Für  $\alpha_D < 1$  ist die R-Dimer-Konfiguration der exakte Grundzustand, während die D-Dimer-Konfiguration kein Eigenzustand des Systems und energetisch sogar ungünstiger ist. Die am MG-Punkt vorhandene Entartung wird damit aufgehoben.

Wird eine Singlett-Bindung aufgebrochen, so entsteht analog zum MG-Modell ein Spinonenpaar (s. Abbildung 2.3(d)). Da die R-Dimer-Konfiguration gegenüber der

D-Dimer-Konfiguration energetisch günstiger ist, können die Spinonen ihre Energie durch Verminderung ihres Abstandes erniedrigen, d.h. die D-Dimer-Konfiguration erzeugt ein Einschlusspotential, welches proportional zur Entfernung der Spinonen ist.<sup>59</sup> Folglich ist die niedrigste Anregung ein auf einer Sprosse lokalisiertes Spinonenpaar (s. Abbildung 2.3(e)), welches auf den Sprossen der Leiter propagieren kann. Dieser Mechanismus ist intuitiv einzusehen, da im Grenzfall  $\alpha_D \rightarrow 0$  isolierte Dimere vorliegen, deren Anregungen Triplets auf den Sprossen sind.

- Kritische Linie ( $\alpha_L, \alpha_D = 1$ ):  
Die Verbindungslinie zwischen dem  $S = 1/2$ -HAFM und dem MAJUMDAR-GHOSH-Punkt ist von besonderem Interesse. Denn für  $0 \leq \alpha_L < \alpha_L^c$  besitzt das System keine Anregungslücke, was der einzige Bereich im gesamten Parameterraum  $\alpha_L \geq 0$  ist. Der zur Zeit genaueste Wert ist  $\alpha_L^c = 0.241167$ .<sup>60,61</sup>
- Der  $S = 1$ -HEISENBERG-Antiferromagnet (HALDANE-Kette) ( $\alpha_L < \infty, \alpha_D \rightarrow -\infty$ ):  
Die Energien der Singletts auf den Diagonalen werden unendlich hoch, sodass sich effektiv eine  $S = 1$ -Kette ergibt. Die elementare Anregung ist das HALDANE-Triplett.

## 2.2 Der HEISENBERG-Antiferromagnet

Wie im vorangegangenen Abschnitt bereits angekündigt bildet der HAFM ein hervorragendes Beispiel dafür, wie man durch Extrapolation von Potenzreihen Systeme mit verschwindender Anregungslücke bzw. mit algebraisch zerfallender Korrelationsfunktionen beschreiben kann. In den anschließenden Abschnitten werden die aus Reihenentwicklungen gewonnenen Grundzustandsenergien bzw. Dispersionen mit den aus dem BETHE-Ansatz gewonnenen, exakten Resultaten verglichen.

Um die Güte der Entwicklungen nicht nur in ausgewählten Punkten zu überprüfen, werden feldtheoretische Resultate (z.B. Bosonisierung) zurate gezogen, die unter anderem Aussagen über kritische Exponenten treffen.

### 2.2.1 Grundzustandsenergie

Betrachten wir zunächst die Grundzustandsenergie. Dazu starten wir mit einer vollständig dimerisierten Kette am Dimer-Punkt: Der Grundzustand ist ein Produkt aus Singletts auf den Sprossen. Schaltet man die Wechselwirkung  $\alpha_D$  zwischen den Sprossen ein, so erzeugt der HAMILTON-Operator Zustände mit Triplets auf den Sprossen. Diese Zustände sind ebenfalls Spinsingletts mit  $S_{\text{tot}} = 0$  und tauchen in einer Störungsentwicklung als virtuelle Zwischenzustände auf. Für die Grundzustandsenergie erhalten wir aus einer Clusterentwicklung die

folgende Potenzreihe:

$$\begin{aligned} \frac{E_0^{\text{HAFM}}}{NJ_{\text{rung}}} = & -\frac{3}{8} - \frac{3}{4}\tilde{\alpha}_D^2 - \frac{3}{4}\tilde{\alpha}_D^3 - \frac{13}{16}\tilde{\alpha}_D^4 - \frac{89}{48}\tilde{\alpha}_D^5 - \frac{463}{96}\tilde{\alpha}_D^6 - \frac{81557}{6912}\tilde{\alpha}_D^7 - \frac{414359}{12960}\tilde{\alpha}_D^8 \\ & - \frac{2354594813}{24883200}\tilde{\alpha}_D^9 - \frac{3775570933}{13235969}\tilde{\alpha}_D^{10} - \dots \quad \text{mit} \quad \tilde{\alpha}_D = \frac{1}{4}\alpha_D. \end{aligned} \quad (2.14)$$

Die Koeffizienten dieser Reihe sind bis zur 28. Ordnung Tabelle C.1 im Anhang zu entnehmen. Bei dieser Entwicklung wurden Cluster mit maximal 14 Kanten verwendet. Dass das Resultat dennoch von höherer Ordnung ist, liegt an der Tatsache, dass ein Cluster mit  $n$  Kanten erst in  $2n$ -ter Ordnung zur Grundzustandsenergie beiträgt. Betrachten wir folgende Sequenz virtueller Zustände, die in vierter Ordnung auf einem Cluster mit zwei Kanten zu finden ist:

$$|s \overset{\downarrow}{-} s - s\rangle \longrightarrow |t_0 - t_0 \overset{\downarrow}{-} s\rangle \longrightarrow |t_0 \overset{\downarrow}{-} s - t_0\rangle \longrightarrow |s - t_0 \overset{\downarrow}{-} t_0\rangle \longrightarrow |s - s - s\rangle.$$

Die Pfeile markieren die Bindungen, an denen die lokalen Anteile des HAMILTON-Operators wirken. Im vorangehenden Kapitel haben wir bereits gesehen, dass nach Durchführung der Subcluster-Subtraktion für das Gewicht eines Clusters  $g$  mit  $n$  Kanten  $W(g) = 0 + \mathcal{O}(\lambda^n)$  gilt. Es bleiben also nur Beiträge übrig, bei denen jede Kante mindestens einmal beteiligt ist, alle anderen sind in den Gewichten der Subcluster enthalten und werden subtrahiert. Aufgrund der Struktur des HAMILTON-Operators werden mindestens zwei virtuelle Zwischenzustände pro Kante benötigt, um eine zur obigen analoge Sequenz zu erzeugen, die zur Störungsentwicklung beiträgt. Für Systeme, welche mittels (2.1) beschrieben werden, gilt somit allgemein:

$$W(g) = 0 + \mathcal{O}(\lambda^{2n}) \quad \text{mit} \quad m(g) = n. \quad (2.15)$$

Ordnung	$E_0^{\text{HAFM}}/NJ$	Ordnung	$E_0^{\text{HAFM}}/NJ$	BETHE-Ansatz
0	-.375000000000	16	-.442386616753	
2	-.421875000000	18	-.442510227481	
4	-.436767578125	20	-.442603476834	
6	-.439755757650	22	-.442675880707	$\frac{1}{4} - \ln 2$
8	-.440963788091	24	-.442733433713	$\approx -.44314718056$
10	-.441596793570	26	-.442780082332	
12	-.441971914016	28	-.442818519391	
14	-.442216734829			

TABELLE 2.2: Aus einer Dimerentwicklung gewonnene Grundzustandsenergie für den HAFM bis zur 28. Ordnung.

Die Reihenentwicklung (2.14) ist bis zur 15. Ordnung konsistent mit früheren Veröffentlichungen<sup>13,62</sup> und stellt eine Erweiterung um 13 Ordnungen dar. Abbildung 2.4 zeigt den

Verlauf der Grundzustandsenergie als Funktion von  $\alpha_D$ . Der aus dem BETHE-Ansatz gewonnene exakte Wert für den HAFM wird mit großer Genauigkeit im Falle  $\alpha_D \rightarrow 1$  erreicht. Tabelle 2.2 bestätigt dieses Ergebnis: In 28. Ordnung beträgt die Abweichung vom exakten Wert lediglich 0.074%.

Folglich stimmt die Reihenentwicklung mindestens im Punkt  $\alpha_D = 1$  mit dem exakten Resultat sehr gut überein. Um die Genauigkeit auch in der Umgebung von  $\alpha_D = 1$  zu überprüfen, wird (2.14) mit feldtheoretischen Resultaten verglichen. Dazu führen wir eine Dimerisierung  $\delta$  ein und betrachten den folgenden HAMILTON-Operator, der im Zusammenhang mit so genannten Spin-PEIERLS-Systemen vielfach untersucht wurde:

$$\tilde{\mathcal{H}} = \tilde{J} \sum_{i=1}^{\mathcal{N}} [1 - (-1)^i \delta] \mathbf{S}_i \mathbf{S}_{i+1}. \quad (2.16)$$

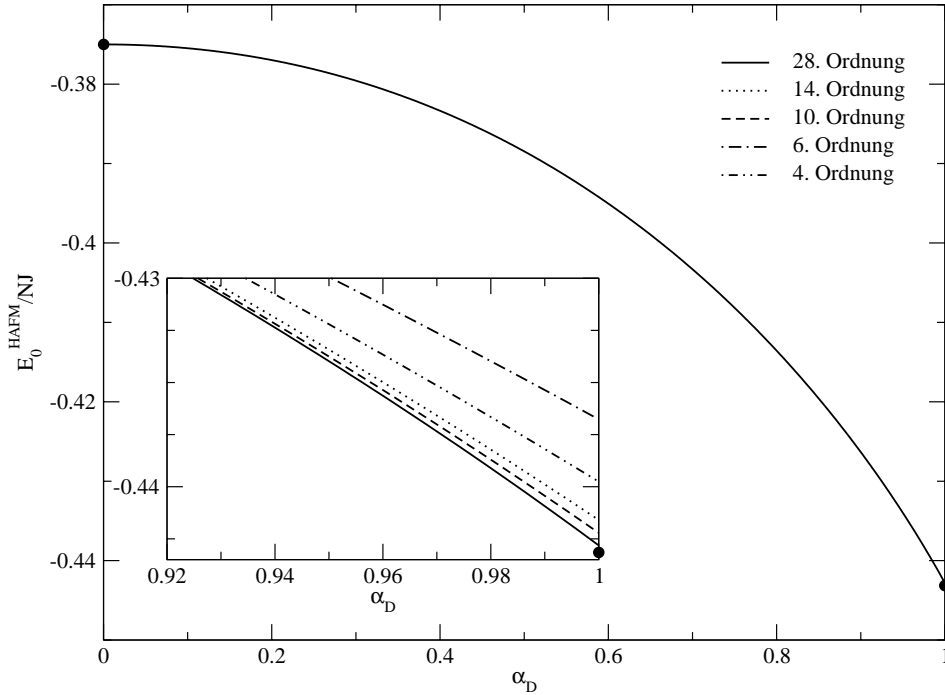


ABBILDUNG 2.4: Verlauf der Grundzustandsenergie auf der Linie  $\alpha_L = 0$  als Funktion der Interdimerwechselwirkung  $\alpha_D$ . Die Punkte markieren die exakten Resultate der vollständig dimerisierten Kette mit  $\alpha_D = 0$  und des HAFM mit  $\alpha_D = 1$ . Der Ausschnitt stellt den Bereich  $\alpha_D = 1$  in verschiedenen Ordnungen vergrößert dar.

Durch Vergleich von (2.16) mit (2.1) erhalten wir die folgenden Beziehungen:

$$\alpha_D = \frac{1 - \delta}{1 + \delta} \quad \text{und} \quad \frac{J_{\text{rung}}}{\tilde{J}} = 1 + \delta. \quad (2.17)$$

Entsprechend skaliert die Grundzustandsenergie  $\tilde{E}_0$  des Modells (2.16):

$$\frac{\tilde{E}_0(\delta)}{\tilde{J}} = \frac{E_0(\delta)}{J_{\text{rung}}}(1 + \delta). \quad (2.18)$$

Die niederenergetischen Anregungen in der NÉEL-geordneten Phase können einerseits mit einem  $\mathcal{O}(3)$  nichtlinearen Sigma-Modell<sup>4,63</sup> beschrieben werden. Andererseits liefert eine JORDAN-WIGNER-Transformation und anschließende Bosonisierung<sup>63–65</sup> Voraussagen über das kritische Verhalten in der Nähe von  $\delta = 0$ . Insbesondere findet man im Kontinuumslimit<sup>63</sup> für die Grundzustandsenergie:

$$\tilde{E}_0(\delta) - \tilde{E}_0(0) \propto \delta^{4/3}. \quad (2.19)$$

Dieses Ergebnis gilt nur für kleine  $\delta$ , und für gewöhnlich gibt es noch logarithmische Korrekturen  $|\ln(\delta)|$ , die von marginalen Operatoren herrühren. Von einer Reihenentwicklung in  $\delta$  kann allerdings eine solche Korrektur nicht erfasst werden.

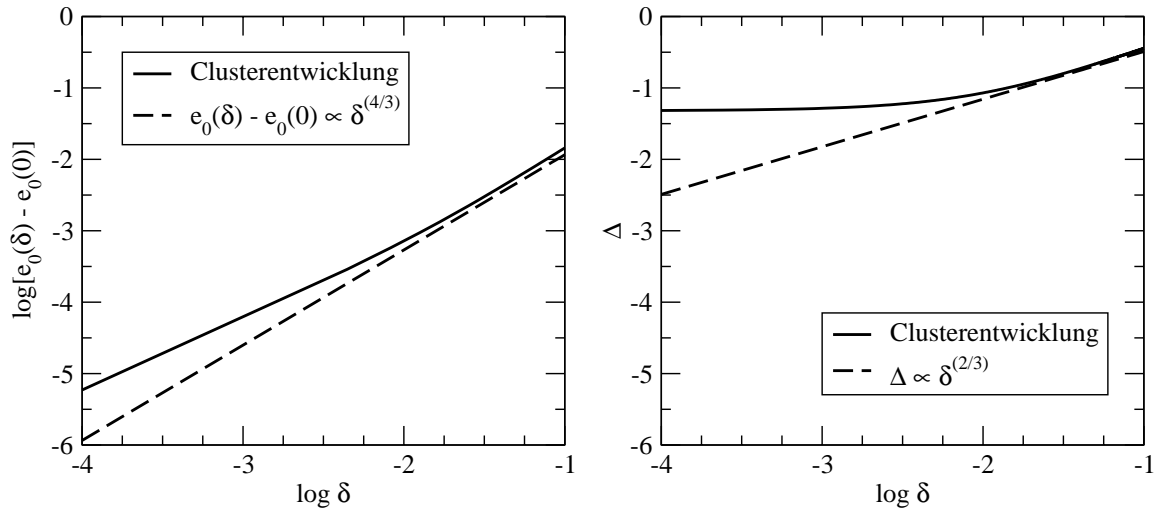


ABBILDUNG 2.5: Doppelt logarithmische Darstellung der Grundzustandsenergie pro Spin (links) und der Anregungslücke (rechts) als Funktion von  $\delta$ .  $e_0$  und  $\Delta$  sind dimensionslose Größen, d. h.  $e_0 = E_0(1 + \delta)/NJ_{\text{rung}}$ . Zum Vergleich ist das jeweilige feldtheoretische Resultat ebenfalls eingezeichnet. Die Abweichungen vom linearen Verlauf entstehen unter anderem aufgrund von Rundungsfehlern bei der Rechnung mit Fließkommazahlen. Besonders deutlich werden die Abweichungen bei  $\Delta$ .

Zum Vergleich setzen wir (2.17) in die Reihenentwicklung (2.14) ein. Abbildung 2.5 zeigt, dass die doppelt logarithmische Auftragung von  $E_0(\delta) - E_0(0)$  nur für  $\log \delta \in [-2.5, -1.0]$  linear verläuft. Der Grund dafür liegt einerseits in der endlichen Genauigkeit der Koeffizienten (ca. zehn signifikante Nachkommastellen bei der Rechnung mit Fließkommazahlen). Andererseits treten Rundungsfehler bei der Auswertung der Potenzreihe auf, sodass Terme



höherer Ordnung für kleiner werdende  $\delta$  keinen Beitrag mehr liefern. Dies hat zur Folge, dass die quadratischen bzw. linearen Anteile in (2.14) zu stark gewichtet werden.

Aus der Steigung kann im Bereich  $-2.5 \leq \log \delta \leq -1.0$  der Exponent berechnet werden:  $1.277 \pm 0.075$ . Somit gibt die Reihenentwicklung im Rahmen der Rechengenauigkeit auch das korrekte Verhalten der Grundzustandsenergie in der Nähe von  $\alpha_D = 1$  bzw.  $\delta = 0$  wieder.

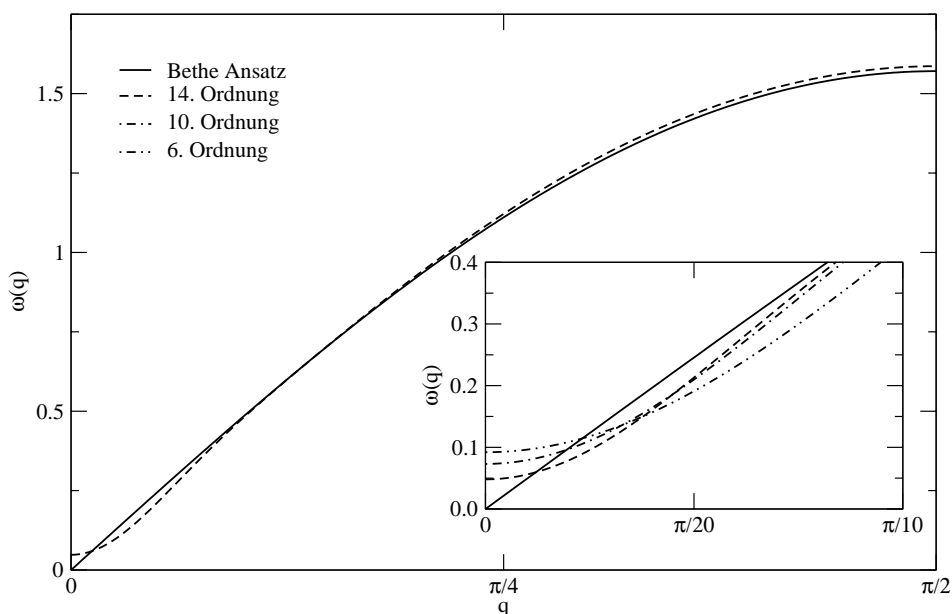


ABBILDUNG 2.6: Verlauf der Dispersionsrelation  $\alpha_L = 0$  und  $\alpha_D = 1$ . Der vergrößerte Ausschnitt stellt den Bereich der Anregungslücke in verschiedenen Ordnungen heraus.

## 2.2.2 Dispersion

In der Nähe des Dimer-Punktes, an dem  $J_{\text{rung}} = 1$  die einzige nicht verschwindende Wechselwirkung ist, kann die Dispersionsrelation der niedrigsten Triplet-Anregung störungstheoretisch untersucht werden. Regt man am Dimer-Punkt ein Singlett zu einem Triplet an, so erhält man die niedrigste Anregung, welche  $\mathcal{N}$ -fach entartet ist. Schaltet man die Wechselwirkung  $\alpha_D$  zwischen den Dimeren ein, so erzeugt der HAMILTON-Operator Zustände, die zwar mehr als eine Tripletanregung enthalten aber immer den Gesamtspin  $S^{\text{tot}} = 1$  besitzen. In einer Störungsentwicklung sind diese virtuellen Zustände für die Propagation der Triplets verantwortlich.

Die am Dimer-Punkt entarteten Triplet-Anregungen können durch Einführung einer Wellenzahl  $q$  (s. (2.7)) unterschieden werden. Wir schreiben also in nullter Näherung die Wellenfunktion der niedrigsten Anregung als Superposition von Produktzuständen mit einem

Tripletts am Platz  $(2n-1, 2n)$ :

$$|\psi\rangle = \sum_{n=1}^{\mathcal{N}/2} e^{iqn} |s\rangle_{1,2} |s\rangle_{3,4} \cdots |s\rangle_{2n-3,2n-2} |t\rangle_{2n-1,2n} |s\rangle_{2n+1,2n+2} \cdots |s\rangle_{\mathcal{N}-1,\mathcal{N}}. \quad (2.20)$$

Aufgrund der Rotationsinvarianz des Systems im Spinraum ist in (2.20) die  $z$ -Projektion des eingefügten Triplets fortgelassen worden. Dieser Zustand ist Ausgangspunkt für eine störungstheoretische Untersuchung mittels Clusterentwicklung. Die resultierende Dispersionsrelation ist eine Funktion in  $\alpha_D$  und lässt sich folgendermaßen schreiben:

$$\omega(q) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{i=0}^n c_i^{(n)} \alpha_D^n \cos(iqa). \quad (2.21)$$

Hier bezeichnet  $a$  den Abstand der Dimerschwepunkte. Die Koeffizienten  $c_i^{(n)}$  konnten bis zur 14. Ordnung als Dezimalzahlen berechnet werden.

Ausgehend vom Dimer-Limit benutzen wir eine Einheitszelle, welche einen Dimer bzw. zwei Spins enthält. Sind die Spins gemäß Abbildung 2.7 auf einer Kette angeordnet und haben einen Abstand  $d = a/2$ , so hat die Einheitszelle im Gegensatz zur kristallographischen eine Länge von  $a$ . Entsprechend sind die erlaubten  $q$ -Werte der ersten BRILLOUIN-Zone  $q_n = 4\pi n/\mathcal{N}a$  mit  $n = 0, \dots, \mathcal{N}/2 - 1$ . Im Falle  $\alpha_D = 1$  wird die Einheitszelle halbiert und enthält nur noch einen Spin, sodass entsprechend die Größe der ersten BRILLOUIN-Zone verdoppelt wird:  $\tilde{q}_m = 4\pi m/\mathcal{N}a$  mit  $m = 0, \dots, \mathcal{N} - 1$ . Man erkennt insbesondere, dass sich die erlaubten  $q$ -Werte in ihrer Anzahl unterscheiden. Dennoch sind beide Darstellungen äquivalent, weil die größere Einheitszelle zwei Spins und daher zwei Moden enthält. Durch Faltung der ersten BRILLOUIN-Zone können die  $q$ -Werte ineinander überführt werden:  $q_n \longrightarrow 2q_n$ .

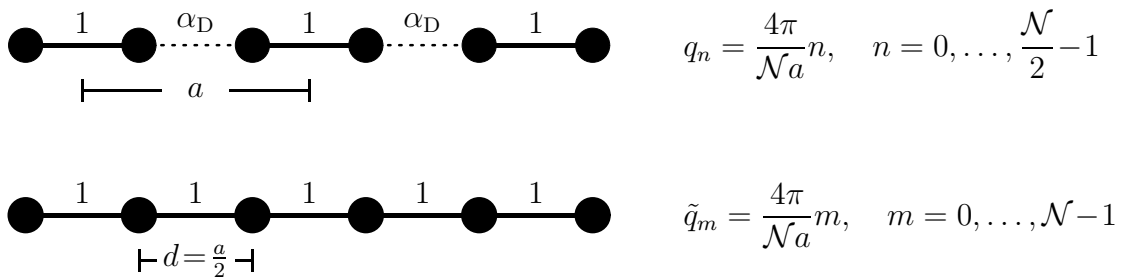


ABBILDUNG 2.7: Halbierung der Einheitszelle und Verdoppelung der 1. BRILLOUIN-Zone beim Übergang  $\alpha_D \rightarrow 1$ .

Wir schreiben unter Benutzung der Koeffizienten aus (2.21) für die Dispersionsrelation mit  $\alpha_D = 1$ :

$$\omega(q) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{i=0}^n c_i^{(n)} \cos(2nqa). \quad (2.22)$$

Abbildung 2.6 zeigt im Vergleich die störungstheoretisch und die aus dem BETHE-Ansatz gewonnene, exakte Dispersion des HAFM.<sup>66,67</sup>

$$\omega^{\text{exakt}}(q) = \frac{\pi}{2} |\sin(qa)|. \quad (2.23)$$

Wie zu erwarten ist, kann die Störungstheorie am kritischen Punkt das lückenlose Verhalten nur bedingt reproduzieren: in 14. Ordnung ist  $\omega(0) = 0.047990$ .

Wir wollen auch hier die Reihenentwicklung mit feldtheoretischen Ergebnissen vergleichen. Dazu benutzen wir analog zum vorangegangenen Abschnitt den Spin-PEIERLS-HAMILTON-Operator (2.16) und betrachten die Anregungslücke  $\Delta$ . Im Kontinuumslimit<sup>68</sup> führt eine Bosonisierung auf einen relevanten Operator mit Skalendimension  $\frac{1}{2}$ , der eine Anregungslücke öffnet:

$$\Delta \propto \delta^{2/3}. \quad (2.24)$$

Eventuell vorhandene logarithmische Korrekturen sind in (2.24) fortgelassen worden. Aus (2.21) erhalten wir bei  $q = 0$  die Anregungslücke als Potenzreihe in  $\alpha_D$ :

$$\begin{aligned} \Delta = 1 - \frac{1}{2}\alpha_D - \frac{3}{8}\alpha_D^2 + \frac{1}{32}\alpha_D^3 - \frac{5}{384}\alpha_D^4 - \frac{761}{12288}\alpha_D^5 + \frac{18997}{1769472}\alpha_D^6 \\ + \frac{80686654}{26270348227}\alpha_D^7 - \frac{1266676963}{40151212588}\alpha_D^8 + \dots - \frac{273356685}{23313049843}\alpha_D^{14}. \end{aligned} \quad (2.25)$$

Die bis zur 14. Ordnung vollständige Reihe ist in Anhang C.1.3 zu finden, in der wir die Relationen (2.17) einsetzen. Eine doppelt logarithmische Auftragung ist in Abbildung 2.5 zu finden. Im Gegensatz zur Grundzustandsenergie treten die Abweichungen von (2.24) wesentlich deutlicher hervor. Auch hier ist als möglicher Grund die mangelnde Genauigkeit bei der Rechnung mit Fließkommazahlen zu nennen, die eine Gewichtung der quadratischen bzw. linearen Terme in (2.25) verstärkt. Auf der anderen Seite könnten insbesondere im Falle der Anregungslücke logarithmische Korrekturen an Bedeutung gewinnen, die zu einem „effektiven“ Exponenten<sup>69</sup> führen, der sich langsam mit der Systemlänge bzw. mit der Ordnung der Reihenentwicklung ändert. Die Existenz von effektiven Exponenten ist auch der Grund dafür, warum Padé-Approximanten auf falsche kritische Exponenten führen.<sup>70</sup>

### 2.2.3 Singlett-Triplett-Übergangsstärken

Die Untersuchung des dynamischen Strukturfaktors ist von vielfältigem Interesse, da er einen Einblick in die mikroskopische Struktur einer Substanz gibt. Magnetische Anregungen können durch Sonden wie beispielsweise Photonen für  $S = 0$  Zustände (RAMAN-Streuung) oder Neutronen für  $S = 1$  Zustände (inelastische Neutronenstreuung) vermessen werden, sodass eine experimentelle Überprüfung des theoretischen Modells durch den Strukturfaktor ermöglicht wird.

Wie im Abschnitt 1.4 erwähnt sind wir an der Singlett-Triplett-Übergangsstärke, d.h. an dem auf die niedrigste ( $S = 1$ ) Anregung beschränkten Strukturfaktor interessiert und wollen

diesen numerisch ermitteln. Wir starten dazu im Dimer-Limit und berechnen die Größen  $A_{ij}^{\alpha\beta}(n)$  mittels Clusterentwicklung. Da das Modell rotationsinvariant ist, genügt es  $A_{ij}^{zz}(n)$  zu entwickeln. Bis einschließlich erster Ordnung erhalten wir:

$$S_{0\rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega_1) = \frac{1}{2} [1 - \cos(2\mathbf{q}\mathbf{d})] \left(1 + \frac{1}{2}\alpha_D \cos(qa)\right) + \mathcal{O}(\alpha_D^2). \quad (2.26)$$

Hier bezeichnet  $q$  die Projektion des Wellenvektors  $\mathbf{q}$  auf die Kettenrichtung. Die Unterdrückung des Strukturfaktors für kleine  $q$  durch  $1 - \cos(2\mathbf{q}\mathbf{d}) \propto \sin^2(\mathbf{q}\mathbf{d})$  ist typisch für Systeme bestehend aus isolierten Dimeren.  $S_{0\rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega_1)$  wird dadurch moduliert, sodass eine Bestimmung von  $\mathbf{d}$  möglich wird. Der zweite Faktor bewirkt ebenfalls eine Modulation, jedoch mit einer größeren Frequenz (solange  $\mathbf{q}\mathbf{d} < qa$ ) und erlaubt die Messung von  $a$ .

Die Korrektur in erster Ordnung stammt von der Störungsentwicklung der Grundzustandsenergie und beschreibt den Einfluss der Zweiquanten-Anregungen auf die niedrigste Anregung. Es wird vermutet, dass diese Wechselwirkung mittels Neutronenstreuung an  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ -Einkristallen sichtbar ist.<sup>71</sup>

Eine systematische Entwicklung des Strukturfaktors zu höheren Ordnungen ergibt, dass sich dieser in drei Teile zerlegen lässt:

$$S_{0\rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega_1) = \frac{1}{2} (1 - \cos(2\mathbf{q}\mathbf{d})) B_c(q, \alpha_D) + \frac{1}{2} \sin(2\mathbf{q}\mathbf{d}) B_s(q, \alpha_D) + \Lambda(\mathbf{q}, \mathbf{d}, \alpha_D). \quad (2.27)$$

Man erkennt insbesondere, dass ein Term  $\propto \sin(2\mathbf{q}\mathbf{d})$  auftritt, der aber erst in zweiter Ordnung beiträgt. Der Strukturfaktor konnte bis zur 10. Ordnung berechnet werden, dessen Entwicklung bis zur vierten folgendermaßen lautet:

$$B_c(q, \alpha_D) = \sum_{i=0}^4 \mu_i \cos(iqa) \quad \text{und} \quad B_s(q, \alpha_D) = \sum_{i=0}^4 \nu_i \sin(iqa) \quad (2.28)$$

mit

$$\begin{aligned} \mu_0 &= 1 - \frac{5}{16}\alpha_D^2 - \frac{3}{32}\alpha_D^3 + \frac{25}{1536}\alpha_D^4, & \nu_0 &= 0, \\ \mu_1 &= \frac{1}{2}\alpha_D - \frac{1}{8}\alpha_D^2 - \frac{5}{192}\alpha_D^3 + \frac{41}{2304}\alpha_D^4, & \nu_1 &= \frac{1}{4}\alpha_D^2 + \frac{7}{96}\alpha_D^3 - \frac{131}{204}\alpha_D^4, \\ \mu_2 &= \frac{3}{16}\alpha_D^2 + \frac{7}{48}\alpha_D^3 + \frac{23}{1024}\alpha_D^4, & \nu_2 &= \frac{1}{48}\alpha_D^3 + \frac{25}{2304}\alpha_D^4, \\ \mu_3 &= \frac{5}{64}\alpha_D^3 + \frac{155}{2304}\alpha_D^4, \quad \mu_4 = \frac{35}{1024}\alpha_D^4, & \nu_3 &= \frac{23}{1152}\alpha_D^4, \quad \nu_4 = 0, \end{aligned}$$

sowie

$$\Lambda(\mathbf{q}, \mathbf{d}, \alpha_D) = \frac{1}{128}\alpha_D^4 (\cos(2\mathbf{q}\mathbf{d}) - \cos(2qa)). \quad (2.29)$$

Die Terme in  $B_c(q, \alpha_D)$  sind konsistent mit früheren Veröffentlichungen.<sup>44</sup> Die Terme in  $B_s(q, \alpha_D)$  bzw.  $\Lambda(\mathbf{q}, \mathbf{d})$  sind zusätzliche Korrekturen und wurden bisher nicht berechnet.

Bei der Berechnung von (2.27) wurden die vollständigen Entwicklungen sowohl des Grundzustandes  $|\psi_0\rangle$  als auch der Einteilchenanregung  $|\psi_1\rangle$  berücksichtigt. Insbesondere unterscheiden sich die Matrixelemente der Spins auf einer Sprosse nicht nur im Vorzeichen, d. h.  $\langle\psi_1|\mathbf{S}_{2i}|\psi_0\rangle \neq -\langle\psi_1|\mathbf{S}_{2i+1}|\psi_0\rangle$ , was auf die zusätzlichen Korrekturen in (2.27) führt.

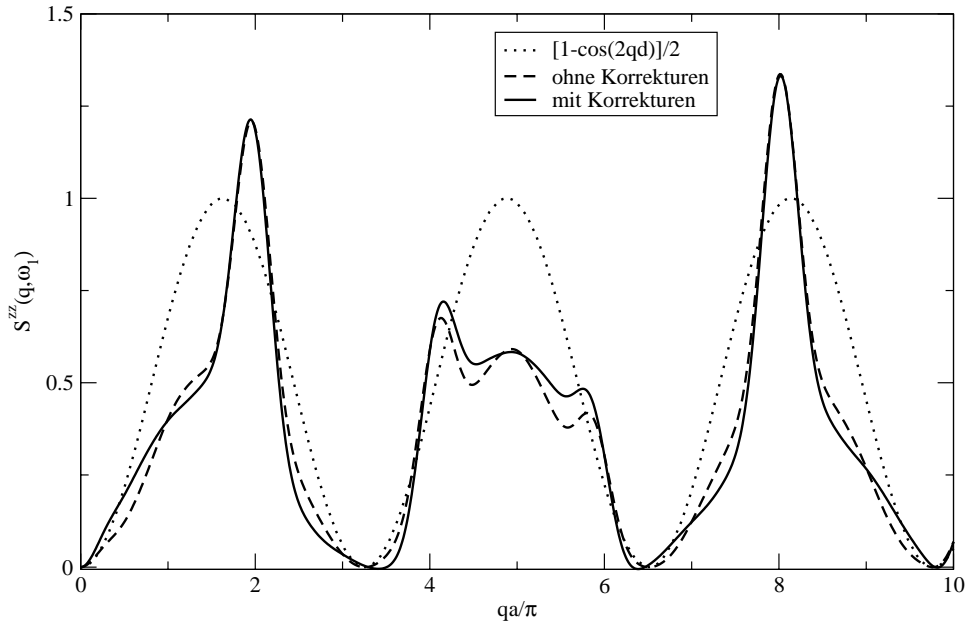


ABBILDUNG 2.8: Singlett-Triplett-Übergangsstärken für  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$  mit  $d = 5.1\text{\AA}$ ,  $a = 8.3\text{\AA}$  und  $\alpha_D = 0.8$ .<sup>72</sup> Die zusätzlichen Korrekturen verändern zwar nicht den prinzipiellen Verlauf, sind aber deutlich zu erkennen. Der Ausschnitt  $qa \in [0, 10\pi]$  wurde gewählt, um Vergleichbarkeit mit Ref. 44 herzustellen.

Ein prominentes Beispiel, welches in diesem Zusammenhang untersucht wurde, ist  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ .<sup>44</sup> Demnach sind in dieser Substanz die magnetischen  $V^{4+}$ -Ionen so in einer Kette angeordnet, dass  $d = |\mathbf{d}| = 5.1\text{\AA}$  und  $a = |\mathbf{a}| = 8.3\text{\AA}$  ist.<sup>72</sup> Diese Längen charakterisieren die oben genannten Modulationen, wodurch der Verlauf des Strukturfaktors sehr empfindlich auf des Verhältnis  $a/d$  reagiert. Abbildung 2.8 zeigt das Ergebnis einer Berechnung bis zur vierten Ordnung mit  $\alpha_D = 0.8$  und  $d/a = 5.1/8.3$  sowohl mit als auch ohne die zusätzlichen Korrekturen. Zum Vergleich ist der Strukturfaktor für isolierte Dimere ebenfalls eingezeichnet. Man erkennt, dass die Korrekturen den prinzipiellen Verlauf nicht verändern. Sie sind aber dennoch deutlich zu erkennen. In Abbildung 2.9 zeigen wir den Strukturfaktor in 10. Ordnung und für verschiedene  $\alpha_D$ . Für anwachsende  $\alpha_D$  ist die Ausbildung von Spitzen bei Vielfachen von  $2\pi$  erkennbar.

Betrachten wir die Übergangsstärken für den Spezialfall  $d = \frac{a}{2}$ , so erhalten wir den in Abbildung 2.10 dargestellten Verlauf. Im Limes  $\alpha_D \rightarrow 1$  erhalten wir die antiferromagnetische HEISENBERG-Kette: Deutlich zu erkennen sind die Ausprägungen von Spitzen bei Viel-

fachen von  $2\pi^*$ . Ähnliche Ergebnisse erhält man mittels Kettenbruchentwicklungen<sup>20,73,74</sup> oder LANCZOS-Diagonalisierungen.<sup>21</sup> Jedoch kann bei diesen Methoden der Strukturfaktor nur für eine kleine Anzahl von  $q$ -Werten ermittelt werden.

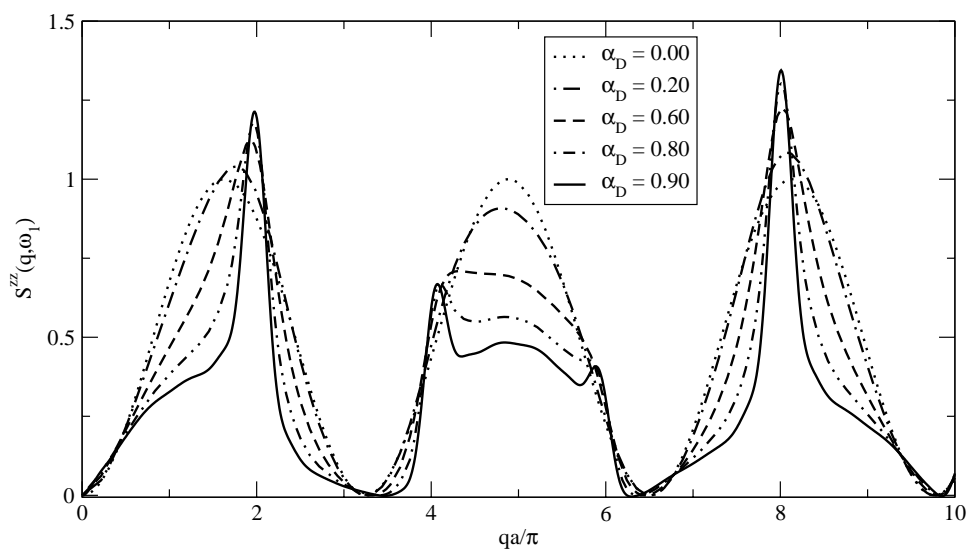


ABBILDUNG 2.9: Singlett-Triplett-Übergangsstärken in 10. Ordnung für  $d = 5.1\text{\AA}$ ,  $a = 8.3\text{\AA}$  und unterschiedliche  $\alpha_D$ .

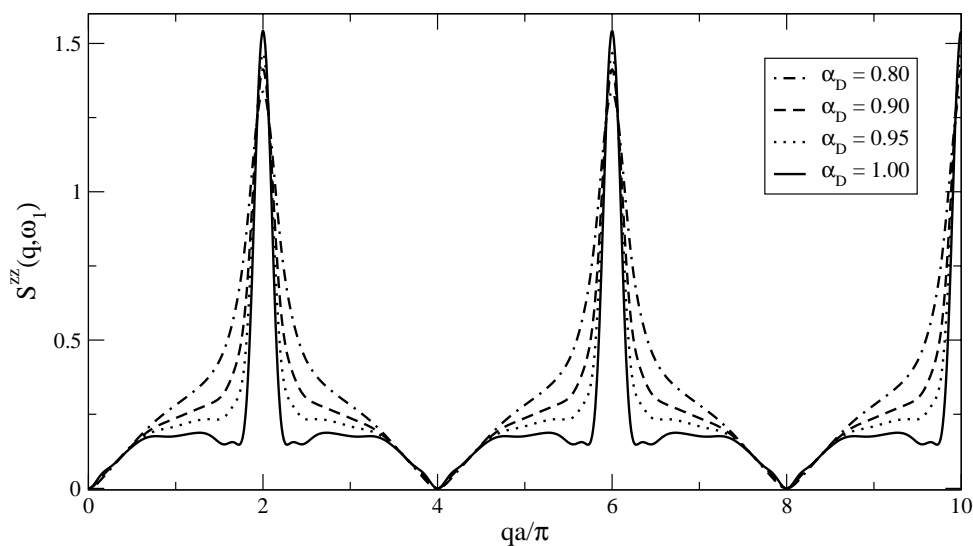


ABBILDUNG 2.10: Singlett-Triplett-Übergangsstärken in 10. Ordnung für  $a/d = 2$  und unterschiedliche  $\alpha_D$ . Deutlich zu erkennen sind die Spitzen bei Vielfachen von  $\pi$ .

\*Man beachte, dass wir mit der doppelten Einheitszelle arbeiten. Im Grenzfall  $\alpha_D = 1$  enthält die Einheitszelle nur noch einen Spin, sodass die Spitzen bei Vielfachen von  $\pi$  zu Enden sind.

## 2.3 Die verallgemeinerte Spinleiter

Im Folgenden soll die verallgemeinerte Spinleiter aus Abschnitt 2.1 mittels Dimerentwicklung genauer untersucht werden. Von besonderem Interesse ist die Dispersionsrelation der niedrigsten Tripletanregung im Bereich, in dem die Anregungslücke vom Impuls  $q = 0$  nach  $q = \pi$  wechselt.

In den letzten Jahren gab es eine Reihe von Arbeiten, welche sich mit dimerisierten Spinketten beschäftigten. Neben Methoden wie *Random Phase Approximation*,<sup>75</sup> exakter Diagonalisierung,<sup>76</sup> Kettenbruchentwicklungen<sup>73</sup> und DMRG<sup>77</sup> spielten Reihenentwicklungen bis zu hohen Ordnungen in der Nähe des Dimerpunktes eine große Rolle: Für reine Spinleitern bis zur 8. Ordnung,<sup>78</sup> für die alternierende HEISENBERG-Kette bis zur 9. Ordnung<sup>44</sup> und für Systeme auf der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie unter Ausnutzung einer besonderen Symmetrie bis zur 28. Ordnung.<sup>70</sup>

### 2.3.1 Dispersion

Da die Dimerwechselwirkung die stärkste ist, nehmen wir für die störungstheoretische Untersuchung folgende Ersetzungen vor:

$$J_{\text{rung}} \longrightarrow 1, \quad J_{\text{leg}} \longrightarrow \alpha_L = J_{\text{leg}}/J_{\text{rung}} \quad \text{und} \quad J_{\text{diag}} \longrightarrow \alpha_D = J_{\text{diag}}/J_{\text{rung}}. \quad (2.30)$$

Untersuchungen mittels eines effektiven Dimermodells,<sup>29,53,79</sup> welches als relevante Wechselwirkung lediglich die Kombination  $\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D$  berücksichtigt, ergeben ein quadratwurzelartiges Verhalten der Dispersion (s. auch 3.1.2):

$$\tilde{\omega}(q) = \sqrt{1 + 2\omega^{(1)}} \quad \text{mit} \quad \omega^{(1)} = (\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D) \cos(q). \quad (2.31)$$

In obiger Gleichung ist  $1 + \omega^{(1)}$  die Dispersion in niedrigster Ordnung, welche eine BLOCH-artige Propagation eines zu einem Triplet angeregten Singletts beschreibt.

Die mittels Clusterentwicklung gewonnene Dispersionsrelation, die wir im Folgenden als *vollständige Dispersionsrelation* bezeichnen, ist eine Funktion der Kopplungskonstanten  $\alpha_L$  und  $\alpha_D$ :

$$\omega(q) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^n a_{i,j}^{(n)} \alpha_L^i \alpha_D^{n-j} \cos(iqa). \quad (2.32)$$

Die Koeffizienten  $a_{i,j}^{(n)}$  können mit Hilfe des in Abschnitt 1.5.1 vorgestellten Verfahrens bis

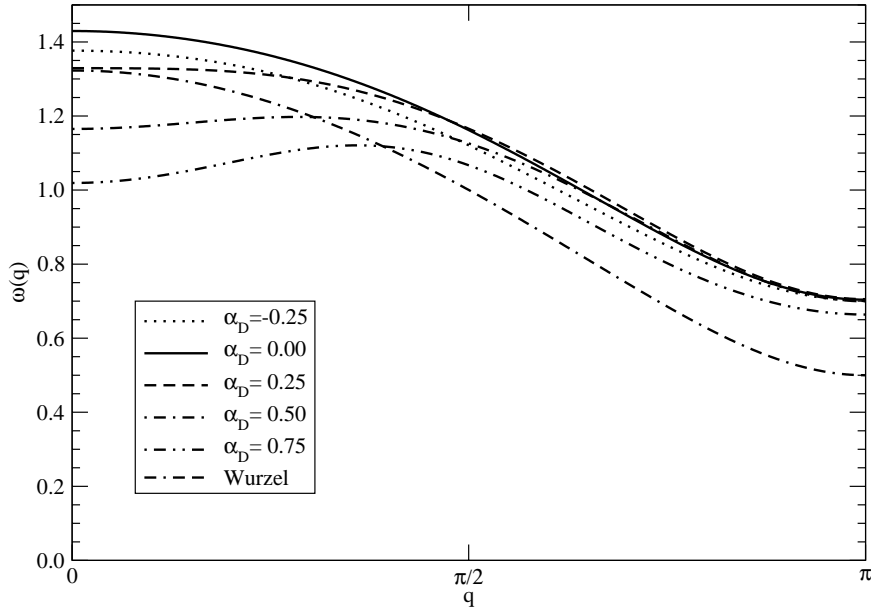


ABBILDUNG 2.11: Vergleich der Anregungsspektren mit fester effektiver Dimerwechselwirkung  $\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D = \frac{3}{8}$ . Die effektive Dimerdispersion (2.31) ist ebenfalls eingezeichnet.

zur 12. Ordnung berechnet werden. Bis einschließlich dritter Ordnung finden wir:

$$\omega^{(3)}(q) = \mu_0 + \mu_1 \cos(qa) + \mu_2 \cos(2qa) + \mu_3 \cos(3qa), \quad (2.33)$$

$$\mu_0 = 1 - \frac{1}{4}\alpha_D^2(1 + \alpha_L) + \frac{3}{8}(\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D)^2(2 + \alpha_L + \frac{1}{2}\alpha_D),$$

$$\mu_1 = \alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D - \frac{1}{4}\alpha_D^2(1 + \alpha_L) - \frac{1}{4}(\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D)^3,$$

$$\mu_2 = -\frac{1}{4}(\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D)^2(1 + \alpha_L + \frac{1}{2}\alpha_D),$$

$$\mu_3 = \frac{1}{8}(\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D)^3.$$

Entwickelt man die Wurzel aus (2.31) für kleine  $\omega^{(1)}$ , so sind alle bis zu einer gegebenen Ordnung entstehenden Terme in der vollständigen Dispersionsrelation (2.32) bereits enthalten. Die aus der Clusterentwicklung stammenden, zusätzlichen Terme höherer Ordnung haben die Form

$$\alpha_L^l \alpha_D^{m-l} \cos(iqa) \quad \text{mit} \quad m > i, \quad l = 0 \dots m \quad (2.34)$$

und berücksichtigen die Wechselwirkung des propagierenden Triplets mit höher angeregten Zuständen.

Fixiert man die effektive Wechselwirkung  $\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D$  auf einen bestimmten Wert, so ist eine der individuellen Wechselwirkungen  $\alpha_L$  und  $\alpha_D$  frei wählbar. Beispielweise zeigt Abbildung 2.11 Dispersionskurven, in denen  $\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D = \frac{3}{8}$  festgelegt ist. Die Unterschiede sind



deutlich zu erkennen. Zur Orientierung ist die effektive Dimerdispersion (2.31) ebenfalls eingezeichnet. Insbesondere im Bereich der Anregungslücke sind große Differenzen zu sehen.

### 2.3.2 Inkommensurabler Bereich

Ausgehend von der Dispersion (2.32) soll die Umgebung der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie ( $\alpha_L = \frac{1}{2}\alpha_D$ ) näher untersucht werden. In erster Ordnung Störungstheorie bzw. im effektiven Dimermodell ist die Dispersion  $\varpi$ ach. Entfernt man sich von dieser Linie, so liegt die Anregungslücke  $\Delta$  für  $\alpha_L < \frac{1}{2}\alpha_D$  bei  $q_{\min} = 0$  und für  $\alpha_L > \frac{1}{2}\alpha_D$  bei  $q_{\min} = \pi$ . In dieser Näherung geht der Wechsel sprunghaft vor sich, sodass  $\Delta$  dort eine unstetige Ableitung besitzt. Ein solches Verhalten wurde zwar mittels exakter Diagonalisierung<sup>21</sup> für  $\alpha_L < 0.5$  nachgewiesen, widerspricht aber dem in Abbildung 2.12 dargestellten Verlauf, der keine Knickpunkte aufweist. Diese aus einer Entwicklung bis zur 12. Ordnung ermittelten Kurven liegen unterhalb derjenigen, die man aus einer Analyse der Dispersion in den Punkten  $q = 0$  bzw.  $q = \pi$  erhält.

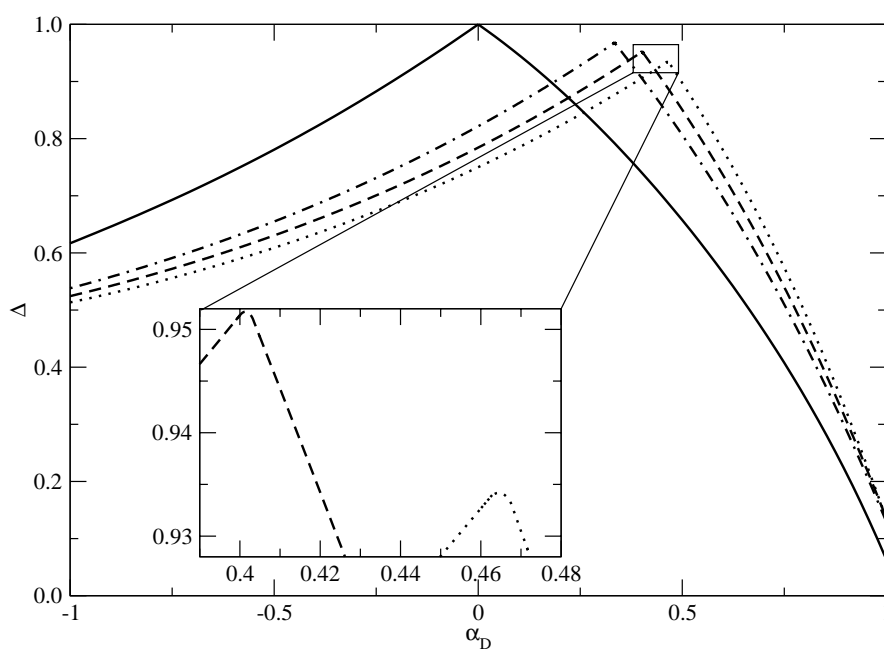


ABBILDUNG 2.12: Verlauf der Anregungslücke  $\Delta$  als Funktion von  $\alpha_D$  für verschiedene  $\alpha_L$ . Der vergrößerte Ausschnitt zeigt deutlich die abgerundeten Verläufe der Kurven im Bereich der Maxima.

Die Vermutung liegt nahe, dass es einen Bereich gibt, in welchem das Minimum der Dispersion nicht bei  $q_{\min} = 0$  oder  $q_{\min} = \pi$  sondern bei  $q_{\min} \in ]0, \pi[$  liegt. Abbildung 2.13 zeigt einige typische Verläufe, die dieses Verhalten widerspiegeln. Obwohl eine geringe Bandbreite der Dispersion vorliegt, ist die Ausprägung der Minima deutlich zu erkennen.

Weiterhin zeigt Abbildung 2.13, dass sich die Lage der Minima für fixierte  $\alpha_L$  und variierende  $\alpha_D$  kontinuierlich von  $q_{\min} = 0$  nach  $q_{\min} = \pi$  verschiebt. Deutlicher wird dieses

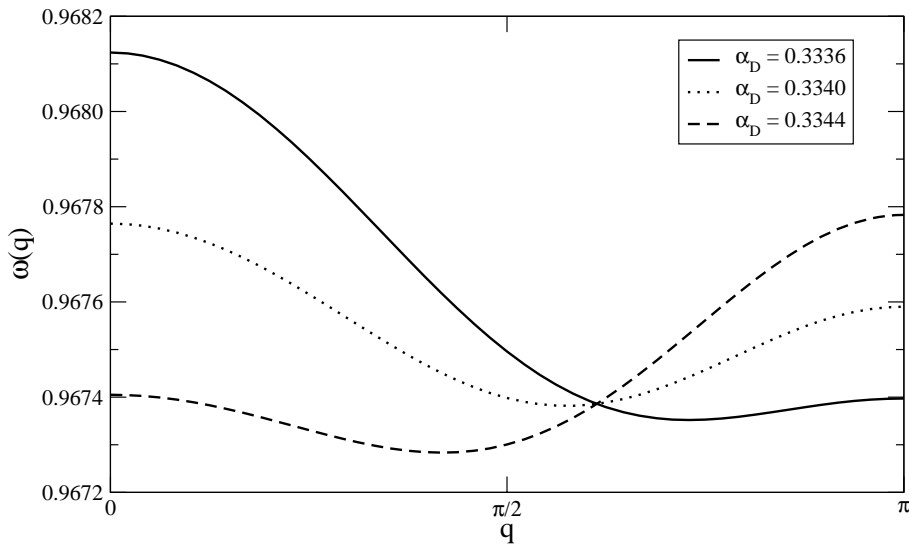


ABBILDUNG 2.13: Dispersionen mit Minimum bei  $q_{\min} \neq 0$ . Die Holmwechselwirkung ist auf  $\alpha_L = 0.2$  fixiert.

Verhalten, wenn man  $q_{\min}$  als Funktion von  $\alpha_D$  für verschiedene  $\alpha_L$  aufträgt. Um gleichzeitig einen Eindruck über die Breite des Übergangsbereichs zu erhalten, sind die Kurven in Abbildung 2.14 so verschoben, dass die Punkte mit  $q_{\min} = \pi$  koinzidieren. Im Folgenden bezeichnen wir den Bereich, in dem  $0 < q_{\min} < \pi$  ist, als *inkommensurabel*.

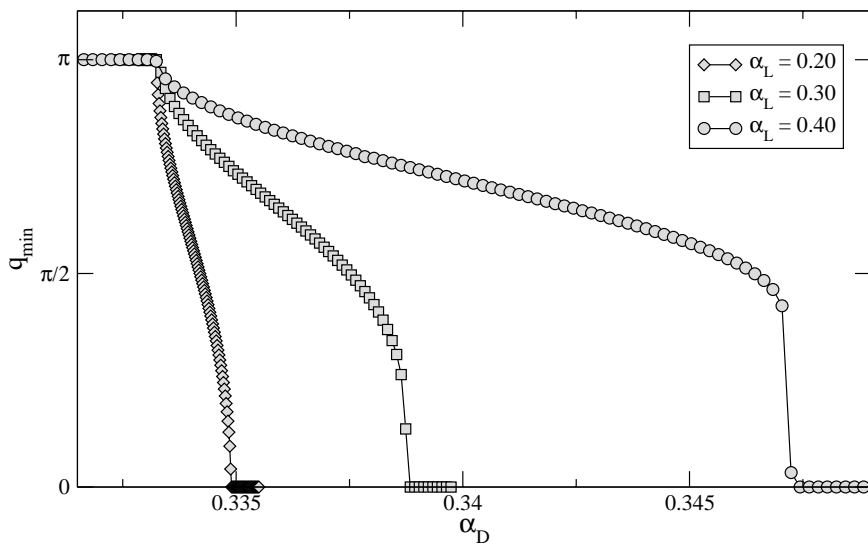


ABBILDUNG 2.14: Verlauf von  $q_{\min}$  in Abhängigkeit von  $\alpha_D$  beim Überschreiten des  $q$ -inkommensurablen Bereichs.

Das Auftreten von inkommensurablen Wellenvektoren, an denen die niedrigste Anregung ein Minimum besitzt, steht in enger Verbindung mit so genannten *Unordnungspunkten* bzw. *-linien* (engl. disorder points, disorder lines), die durch inkommensurable räumliche Spin-

Spin-Korrelationen gekennzeichnet sind. Beispielsweise ist die SHASTRY-SUTHERLAND-Linie zusammen mit dem MAJUMDAR-GHOSH-Punkt eine Unordnungslinie.

Genau genommen liegt die Phasengrenze des inkommensurablen Bereichs in der Nähe von so genannten LIFSHITZ-Punkten bzw. LIFSHITZ-Linien, an denen das Maximum des statischen Strukturfaktors (d. h. der FOURIER-Transformierten der Spin-Spin-Korrelationsfunktion) von 0 nach  $\pi$  zu wandern beginnt. In der Regel liegen im Phasendiagramm LIFSHITZ-Punkte in einer kleinen Umgebung zur Grenze zum inkommensurablen Bereich. LIFSHITZ-Linien und Unordnungslinien fallen gewöhnlich nicht zusammen, enden aber gemeinsam in einem multikritischen Punkt.<sup>80</sup> In Experimenten kann der statische Strukturfaktor vermessen werden, sodass LIFSHITZ-Linien direkt beobachtet werden können.

Bevor wir den inkommensurablen Bereich etwas genauer analysieren, müssen wir ausschließen, dass die Minima nicht aufgrund mangelnder Konvergenz der Störungsreihen auftreten. Dazu betrachten wir sowohl  $q_{\min}$  als auch die dort auftretende Anregungslücke  $\Delta$  in verschiedenen Ordnungen. Abbildung 2.15 zeigt in beiden Größen, dass die Reihen bereits ab der 6. Ordnung konvergent sind. Ebenso geben Daten aus LANZOS-Diagonalisierungen<sup>19,20</sup> Hinweise auf die Existenz eines  $q$ -inkommensurablen Bereichs; jedoch stehen bei dieser Methode nur für eine begrenzte Anzahl von Impulsen  $q$  Energiewerte zur Verfügung.

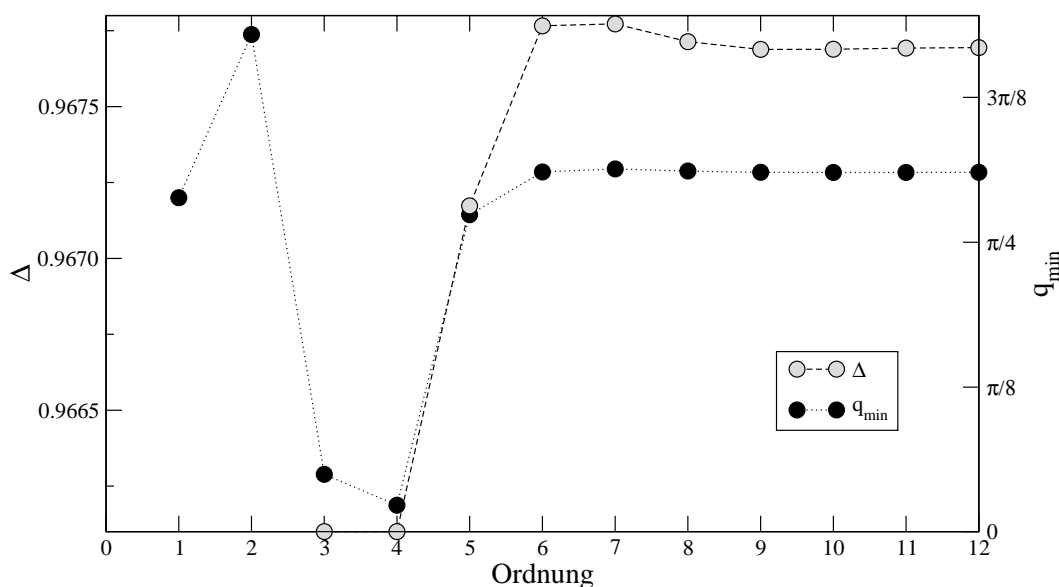


ABBILDUNG 2.15: Größe und Lage der Anregungslücke in verschiedenen Ordnungen. Die Wechselwirkungen sind  $\alpha_L = 0.2000$  und  $\alpha_D = 0.3344$ . Die gepunkteten Linien dienen der Orientierung.

Zur weiteren Charakterisierung des inkommensurablen Bereichs untersuchen wir zunächst die Lage der Kurvenmaxima in Abbildung 2.12. Im effektiven Modell wechselt die Anregungslücke  $\Delta$  sprunghaft von  $q_{\min} = 0$  nach  $q_{\min} = \pi$  auf der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie. Die vollständige Dispersionsrelation (2.32) hingegen zeigt bereits in der 2. Ordnung,

dass dieser Wechsel nicht auf der Linie  $\alpha_L = \frac{1}{2}\alpha_D$  stattfindet, denn es gilt:

$$\Delta = \begin{cases} 1 - \frac{1}{4}\alpha_D^2 + \mathcal{O}(\alpha_D^4) & \alpha_L = \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{4}\alpha_D^2 \\ 1 + \alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{2}(\alpha_L - \frac{1}{2})^2 - \frac{1}{2}\alpha_D^2 & \alpha_L < \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{4}\alpha_D^2 \\ 1 - \alpha_L + \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{2}(\alpha_L - \frac{1}{2})^2 & \alpha_L > \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{4}\alpha_D^2 \end{cases} \quad (2.35)$$

Diese Abschätzungen sind aus einem Vergleich der Anregungsenergien bei  $q=0$  und  $q=\pi$  hervorgegangen. In dieser Näherung sollte demnach ein Knick am Maximalwert der Anregungslücke auftreten, da  $\Delta$  eine unstetige Ableitung bei  $\alpha_L = \frac{1}{2}\alpha_D + \frac{1}{4}\alpha_D^2$  besitzt.

Offenbar tritt eine endliche Breite des inkommensurablen Bereichs erst in höheren Ordnungen auf. Durch Differentiation von (2.32) nach  $q$  und anschließendes Nullsetzen können die Übergangslinien bestimmt werden. Allerdings sind die entstehenden multigraden Gleichungen schwer zu lösen und ergeben keinen analytischen Zusammenhang. Wesentlich einfacher ist die folgende Vorgehensweise. Dazu nutzen wir die Stetigkeit der Dispersionsrelation aus und bemerken, dass ein Minimum für  $0 < q_{\min} < \pi$  auftritt, falls

$$(a) \quad \omega(0) - \omega(x) < 0 \quad \text{und} \quad \omega(0) \leq \omega(\pi),$$

$$(b) \quad \omega(\pi) - \omega(\pi - x) > 0 \quad \text{und} \quad \omega(0) \geq \omega(\pi).$$

Die Ungleichungen werden für kleine  $x$  entwickelt, wobei die erste nicht verschwindende Ordnung  $x^2$  ist. Konstante Terme tauchen aufgrund der obigen Differenzbildungen nicht auf, sodass es ausreichend ist, den Koeffizienten vor  $x^2$  Null zu setzen, der eine Funktion von  $\alpha_D$  und  $\alpha_L$  ist. Zur Lösung benutzen wir für  $\alpha_D^u$  bzw.  $\alpha_D^o$  einen Potenzreihenansatz in  $\alpha_L$  und erhalten schließlich:

$$\alpha_D^u(\alpha_L) \leq \alpha_D \leq \alpha_D^o(\alpha_L) \quad (2.36)$$

$$\alpha_D^u(\alpha_L) = 2\alpha_L - 2\alpha_L^2 + 2\alpha_L^3 - \frac{5}{2}\alpha_L^4 + \frac{21}{4}\alpha_L^5 - \frac{141}{16}\alpha_L^6 + \mathcal{O}(\alpha_L^7) \quad (2.37)$$

$$\alpha_D^o(\alpha_L) = 2\alpha_L - 2\alpha_L^2 + 2\alpha_L^3 - \frac{1}{2}\alpha_L^4 + \frac{3}{4}\alpha_L^5 - \frac{25}{16}\alpha_L^6 + \mathcal{O}(\alpha_L^7). \quad (2.38)$$

Deutlich zu erkennen ist die oben bereits erwähnte Abweichung beider Grenzen von der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie in zweiter Ordnung. Eine endliche Breite des inkommensurablen Bereichs ist erst in vierter Ordnung sichtbar. Abbildung 2.16 zeigt diesen Bereich in der Nähe des Dimerpunktes. Zum Vergleich sind einige numerisch ermittelte Punkte auf den Übergangslinien aus der vollständigen Dispersion (2.32) eingezeichnet: Die Übereinstimmungen treten deutlich hervor.

## 2.4 Ringaustausch

Bei Halbfüllung und für große  $U/t$  können die magnetischen Eigenschaften des HUBBARD-Modells mit Hilfe effektiver Spinwechselwirkungen beschrieben werden.

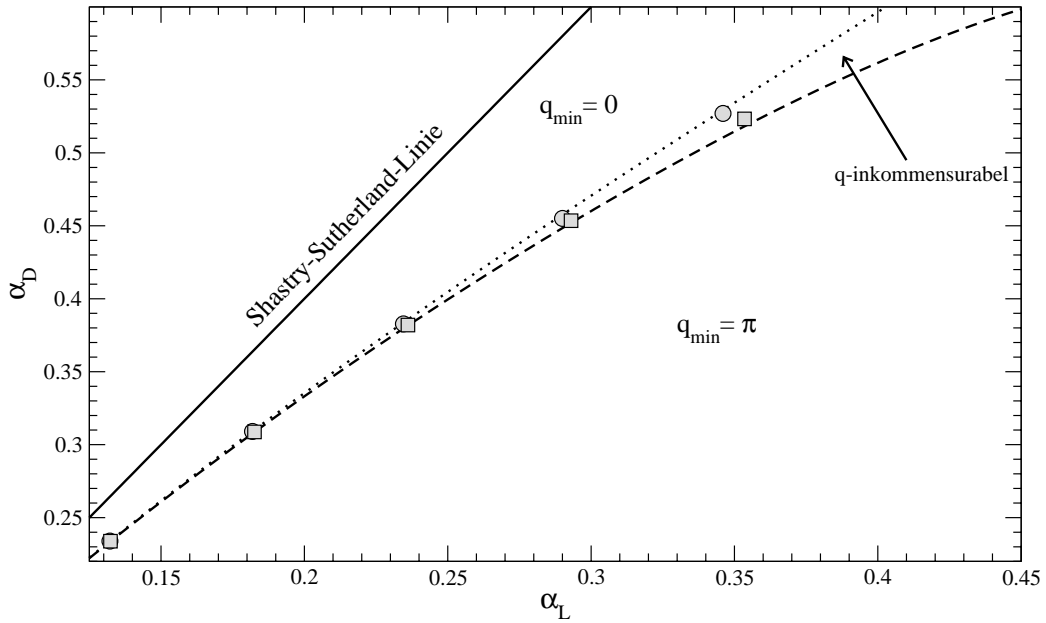


ABBILDUNG 2.16: Darstellung des inkommensurablen Bereichs in der Nähe der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie.

In führender Ordnung erhält man die antiferromagnetische HEISENBERG-Wechselwirkung  $J = 4t^2/U$ . Berücksichtigt man Terme höherer Ordnung bzw. nicht nur Nächste-Nachbar-Wechselwirkungen, so ergeben sich auch biquadratische Spinwechselwirkungsterme.<sup>81–83</sup> Allerdings werden in dieser Beschreibung die bilinearen und biquadratischen Wechselwirkungen nur noch durch zwei Parameter  $t$  und  $U$  dargestellt.

Explizit wurden die biquadratischen Wechselwirkungen in der Beschreibung der magnetischen Eigenschaften von festem  $^3\text{He}$  berücksichtigt.<sup>84</sup> Im Bereich stark korrelierter Elektronensysteme zeigte die Untersuchung der niederenergetischen Anregungen eines d-p-Modells, dass der HAMILTON-Operator, welcher  $\text{CuO}_2$ -Ebenen beschreibt, einen endlichen Wert für den Ringaustausch enthalten sollte.<sup>26,27</sup>

Weiter motiviert werden konnte der Ringaustausch durch elastische Neutronenstreuung<sup>22</sup> sowie durch NMR Experimente<sup>23–25</sup> an den Materialien  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  und  $\text{Ca}_8\text{La}_6\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ . In diesen Substanzen bilden die magnetischen Momente, d.h. die Cu-Atome, eindimensionale Leitersysteme. Berücksichtigt man weder die biquadratischen Terme noch die Diagonalwechselwirkungen  $J_{\text{diag}}$  bzw.  $J'_{\text{diag}}$  in (2.1), so ergibt eine Analyse der Spektren, dass  $J_{\text{leg}} \approx 2J_{\text{rung}}$  sein muss. Dieses Resultat kann weder mit der geometrischen noch mit der elektronischen<sup>85</sup> Struktur der Leiter gerechtfertigt werden. Ferner können durch Hinzunahme einer Diagonalwechselwirkung die experimentellen Daten nicht hinreichend erklärt werden.<sup>86</sup>

Wir beschreiben den Ringaustausch auf einer Plakette bestehend aus vier Spins an den Positionen  $i, j, k$  und  $l$  mit Hilfe einer symmetrischen (hermiteschen) Linearkombination von

Permutationsoperatoren  $P_{ijkl}$ :

$$\mathcal{H}_{\text{ring}} = \frac{J_{\text{ring}}}{2} \sum_{\langle ijkl \rangle} (P_{ijkl} + P_{ijkl}^{-1}). \quad (2.39)$$

In (2.39) bedeutet  $\langle ijkl \rangle$  die Summe über Gruppen von vier Spins auf einer Plakette.  $P_{ijkl}$  nimmt eine zyklische Vertauschung der Spinmomente vor, d.h.

$$P_{ijkl} \begin{vmatrix} i & j \\ l & k \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} l & i \\ k & j \end{vmatrix} \quad \text{bzw.} \quad P_{ijkl}^{-1} \begin{vmatrix} i & j \\ l & k \end{vmatrix} = \begin{vmatrix} j & k \\ i & l \end{vmatrix}. \quad (2.40)$$

Der Bezug zu bilinearen bzw. biquadratischen Wechselwirkungen wird deutlich, wenn man  $P_{ijkl}$  als Produkt von Zweiteilchenpermutationsoperatoren schreibt, die ihrerseits mit Hilfe von Spinoperatoren  $\mathbf{S}$  ausgedrückt werden. Für den HAMILTON-Operator erhalten wir somit:

$$\begin{aligned} \mathcal{H}_{\text{ring}} = & \frac{J_{\text{ring}}}{2} \sum_{\langle ijkl \rangle} \left[ \frac{1}{4} + \mathbf{S}_i \mathbf{S}_j + \mathbf{S}_j \mathbf{S}_k + \mathbf{S}_k \mathbf{S}_l + \mathbf{S}_l \mathbf{S}_i + \mathbf{S}_i \mathbf{S}_k + \mathbf{S}_j \mathbf{S}_l \right] \\ & + 2J_{\text{ring}} \sum_{\langle ijkl \rangle} \left[ (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_j)(\mathbf{S}_k \mathbf{S}_l) + (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_l)(\mathbf{S}_j \mathbf{S}_k) - (\mathbf{S}_i \mathbf{S}_k)(\mathbf{S}_j \mathbf{S}_l) \right]. \end{aligned} \quad (2.41)$$

Für eine spezielle Wahl der Kopplungskonstanten ist der Ringaustausch bereits in (2.1) enthalten:

$$J_{\text{rung}} = J_{\text{rung}}^{\text{bi}} + J_{\text{ring}}, \quad (2.42)$$

$$J_{\text{leg}} = J'_{\text{leg}} = J_{\text{leg}}^{\text{bi}} + \frac{1}{2} J_{\text{ring}}, \quad (2.43)$$

$$J_{\text{diag}} = \frac{1}{2} J_{\text{ring}} \quad (2.44)$$

bzw.

$$J_{\text{RR}} = J_{\text{LL}} = -J_{\text{DD}} = 2J_{\text{ring}}. \quad (2.45)$$

Neben dem Ringaustausch wurden in den obigen Gleichungen zusätzliche bilineare Wechselwirkungen berücksichtigt, die der Geometrie der Spinleiter Rechnung tragen. In Abbildung 2.17 ist die Wechselwirkungsstruktur dargestellt.

## 2.4.1 Dispersion

Die Dispersionsrelation der niedrigsten Triplet-Anregung kann wieder störungstheoretisch mittels Clusterentwicklung in der Nähe des Dimer-Punktes, an dem  $J_{\text{rung}}^{\text{bi}}$  die einzige nicht verschwindende Wechselwirkung ist, bis zu sehr hohen Ordnungen berechnet werden.

Für die störungstheoretische Untersuchung nehmen wir die folgende Ersetzung vor, sodass alle Energien in Einheiten der wesentlichen Wechselwirkung  $J_{\text{rung}}^{\text{bi}}$  gemessen werden:

$$J_{\text{rung}}^{\text{bi}} \longrightarrow 1, \quad J_{\text{leg}}^{\text{bi}} \longrightarrow \alpha_{\text{L}} = J_{\text{leg}}^{\text{bi}} / J_{\text{rung}}^{\text{bi}} \quad \text{und} \quad J_{\text{ring}} \longrightarrow \alpha_{\text{R}} = J_{\text{ring}} / J_{\text{rung}}^{\text{bi}}. \quad (2.46)$$

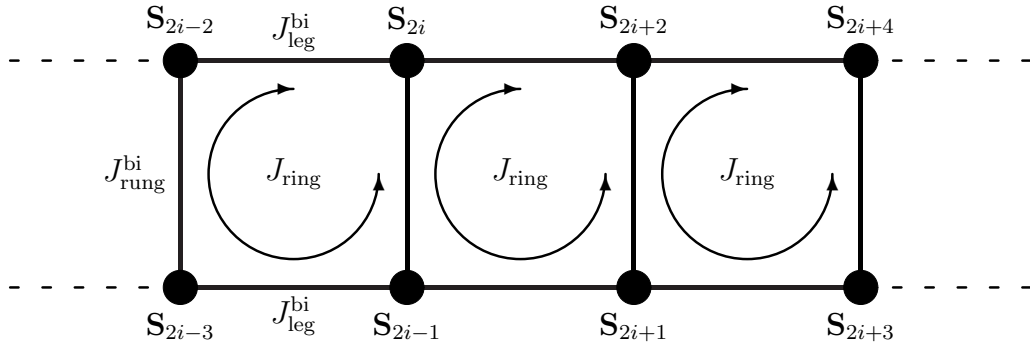


ABBILDUNG 2.17: Schematische Darstellung des Ringaustausches auf einer Spinleiter. Zusätzliche bilineare Terme sind ebenfalls eingezeichnet.

Die Dispersionsrelation ist eine Funktion in  $\alpha_L$  und  $\alpha_R$  und besitzt die folgende Form:

$$\omega(q) = \sum_{n=0}^{\infty} \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^n c_{i,j}^{(n)} \alpha_L^i \alpha_R^{n-j} \cos(iqa). \quad (2.47)$$

Die Koeffizienten  $c_{i,j}^{(n)}$ , welche unter Berücksichtigung von Clustern mit maximal zwölf Kanten berechnet werden konnten, sind im Anhang C.2.1 bis zur sechsten Ordnung tabelliert. Bis einschließlich vierter Ordnung lautet die Dispersionsrelation:

$$\omega^{(3)}(q) = \mu_0 + \mu_1 \cos(qa) + \mu_2 \cos(2qa) + \mu_3 \cos(3qa) + \mu_4 \cos(4qa), \quad (2.48)$$

$$\mu_0 = 1 - 2\alpha_R + \frac{1}{64} (\alpha_L - \alpha_R)^2 (48 + 120\alpha_R + 24\alpha_L + 179\alpha_R^2 + 210\alpha_L\alpha_R - 13\alpha_L^2),$$

$$\mu_1 = \alpha_R + \alpha_L - \frac{1}{16} (\alpha_L - \alpha_R)^2 (\alpha_R + \alpha_L) (4 + 5\alpha_L + 5\alpha_R),$$

$$\mu_2 = -\frac{1}{32} (\alpha_L - \alpha_R)^2 (8 + 8\alpha_R + 8\alpha_L + \alpha_L^2 + 26\alpha_L\alpha_R + \alpha_R^2),$$

$$\mu_3 = \frac{1}{8} (\alpha_L - \alpha_R)^2 (\alpha_R + \alpha_L) (1 + \alpha_L + 3\alpha_R),$$

$$\mu_4 = -\frac{1}{64} (\alpha_L - \alpha_R)^2 (5\alpha_L^2 + 6\alpha_L\alpha_R + 5\alpha_R^2).$$

Man erkennt, dass in der Dispersion der führende Koeffizient  $\mu_1 \propto \alpha_R + \alpha_L$  ist. Ergibt die Analyse von experimentell ermittelten Anregungsspektren ohne Berücksichtigung von  $\alpha_R$  zu große Werte für  $\alpha_L$ , welche aufgrund der geometrischen bzw. der elektronischen Struktur der untersuchten Substanz unphysikalisch erscheinen, so kann die Hinzunahme des Ringaustausches die Holmwechselwirkung reduzieren.

Weiterhin zeigt sich, dass der Ringaustausch nicht nur die Lage sondern auch die Form der Dispersionskurven ändert. Grundsätzlich werden die Kurven für negative  $\alpha_R$  zu höheren und für positive  $\alpha_R$  zu niedrigeren Anregungsenergien verschoben. Die Abbildungen 2.18 und 2.19 zeigen einige Dispersionskurven sowohl für  $\alpha_L = \frac{1}{2}$  als auch für  $\alpha_L = \frac{1}{4}$ .

Für eine weitere Charakterisierung können einerseits die Bandbreite und andererseits die Steigung im Bereich  $\frac{2\pi}{3} \leq q \leq \pi$  herangezogen werden.<sup>87</sup>

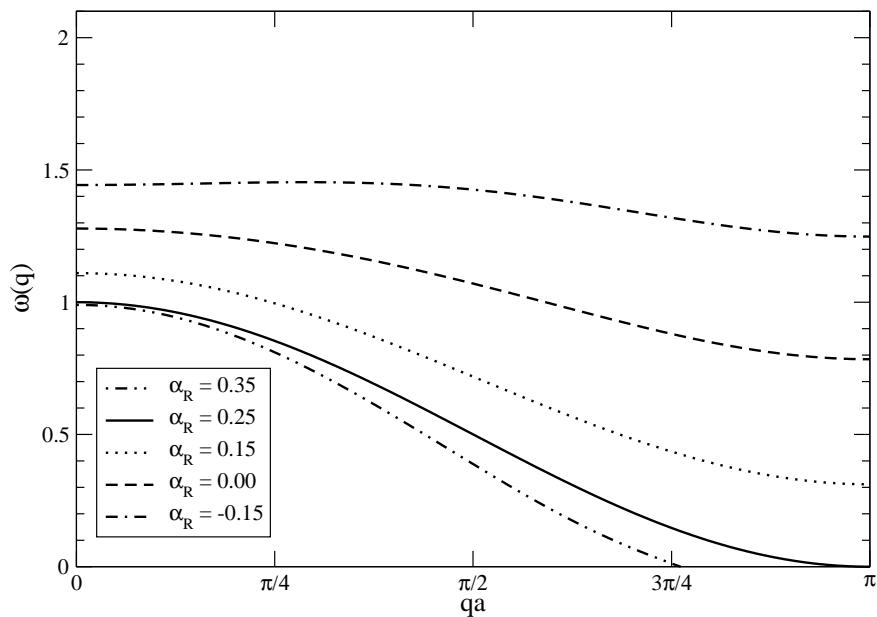


ABBILDUNG 2.18: Ringaustausch für  $\alpha_L = 0.25$  in 14. Ordnung und unterschiedliche  $\alpha_R$ . Die Kurve für  $\alpha_R = 0.35$  zeigt, dass die Anregungsenergie unterhalb der Grundzustandsenergie sinkt. Hier existiert ein Phasenübergang, welcher von der Störungstheorie nicht erfasst werden kann (s. Abschnitt 2.4.2).

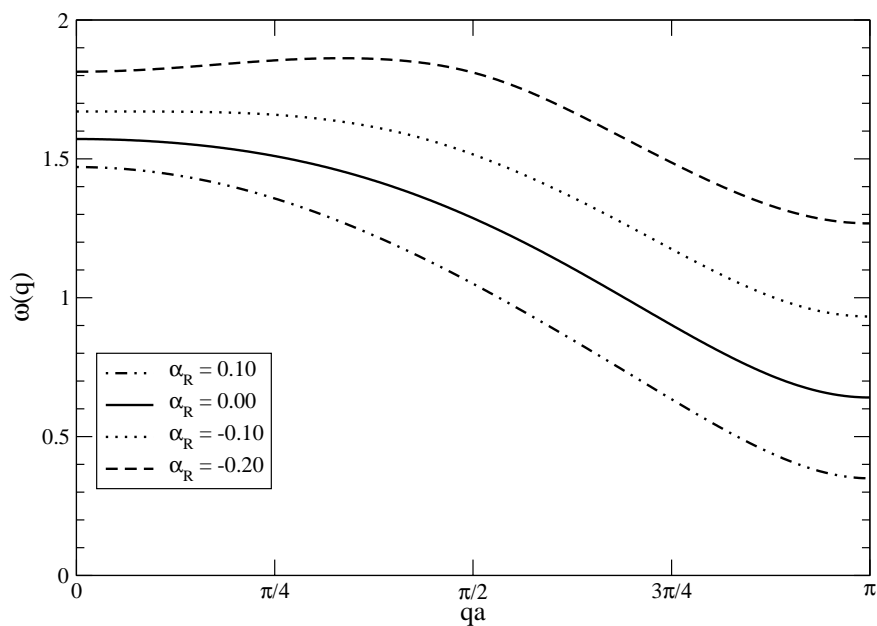


ABBILDUNG 2.19: Ringaustausch für  $\alpha_L = 0.50$  in 14. Ordnung und unterschiedliche  $\alpha_R$ .



### 2.4.2 Phasendiagramm

Mit Hilfe des Matrixprodukt-Ansatzes kann gezeigt werden, dass auf der Linie  $\alpha_L = \alpha_R$  der Grundzustand ein Produkt von Singletts auf den Sprossen<sup>87,88</sup> ist. Weiterhin kann nachgewiesen werden, dass die Wellenfunktion der niedrigsten Anregung, welche analog zu (2.20) eine Superposition von Produktzuständen mit einem Triplet am Platz  $(2n - 1, n)$  darstellt, ein exakter Eigenzustand<sup>88</sup> ist und die Energie

$$\omega_t(q) = 1 - 2\alpha_R + 2\alpha_R \cos(qa) \quad (2.49)$$

besitzt. Dieses Ergebnis ist konsistent mit dem der Störungsentwicklung, da für  $\alpha_L = \alpha_R$  die in (2.48) dargestellten Terme auf ein Abbrechen der Reihe nach der ersten Ordnung hinweisen. Wie aus (2.49) ersichtlich ist, verschwindet die Anregungslücke bei  $q = \pi$  für  $\alpha_R \rightarrow \frac{1}{4}$ . Es wird vermutet, dass dieser Punkt zu einer Übergangslinie in eine dimerisierte Phase gehört, die durch eine spontan gebrochene Translationssymmetrie entlang der Leiter und durch eine Verdoppelung der magnetischen Einheitszelle charakterisiert ist.<sup>87,88</sup>

Ausgehend von diesem Resultat untersuchen wir die Umgebung des Punktes  $\alpha_L = \alpha_R = \frac{1}{4}$  und ermitteln die Übergangslinie, an der sich die Anregungslücke schließt. Hierfür ergänzen wir (2.48) bis zur 12. Ordnung und suchen auf unterschiedlichen Linien im  $\alpha_L$ - $\alpha_R$ -Parameterraum Lösungen, bei denen die Anregungslücke verschwindet. Ohne Ringaustausch besitzt die Leiterdispersion für positive  $\alpha_L$  immer ein Minimum bei  $q_{\min} = \pi$ , sodass wir die beiden folgenden Fälle betrachten:

- (a)  $\alpha_L = \text{const}$  und  $\omega(\pi)$  als Funktion von  $\alpha_R$  und
- (b)  $\alpha_R = \text{const}$  und  $\omega(\pi)$  als Funktion von  $\alpha_L$ .

In Abbildung 2.20 sind die Ergebnisse in Form einer Phasengrenze eingezeichnet. Dabei werden die Nullstellen der Potenzreihen, welche Funktionen von  $\alpha_R$  bzw.  $\alpha_L$  sind, numerisch bestimmt. Teilweise ergeben sich mehrere Lösungen. In diesen Fällen wird nur die Lösung berücksichtigt, welche näher am Dimerpunkt liegt, da die Störungsentwicklung nur Aussagen diesseits der Übergangslinie bzw. der Phasengrenze treffen kann. Jenseits der Phasengrenze existiert kein störungstheoretischer Startpunkt, d. h. es ist zunächst nicht davon auszugehen, dass dort der Grundzustand ein Produktzustand mit Dimeren auf den Sprossen ist und die elementaren Anregungen propagierende Triplets sind.

Um die Übergangslinie näher zu charakterisieren berechnen wir den kritischen Exponenten  $\eta$ , mit dem sich die Anregungslücke  $\Delta_{\text{ring}}$  als Funktion eines Wechselwirkungsparameters schließt:

$$\Delta_{\text{ring}} \propto |\alpha_L - \alpha_L^c|^{\eta(\alpha_R)} \quad \text{bzw.} \quad \Delta_{\text{ring}} \propto |\alpha_R - \alpha_R^c|^{\eta(\alpha_L)}. \quad (2.50)$$

Wir bewegen uns somit im  $\alpha_L$ - $\alpha_R$ -Parameterraum auf horizontalen bzw. vertikalen Linien: Betrachten wir  $\Delta_{\text{ring}}$  für fest vorgegebene  $\alpha_R$  als Funktion von  $\alpha_L$ , so ist  $\eta$  zunächst eine Funktion von  $\alpha_R$  und umgekehrt.

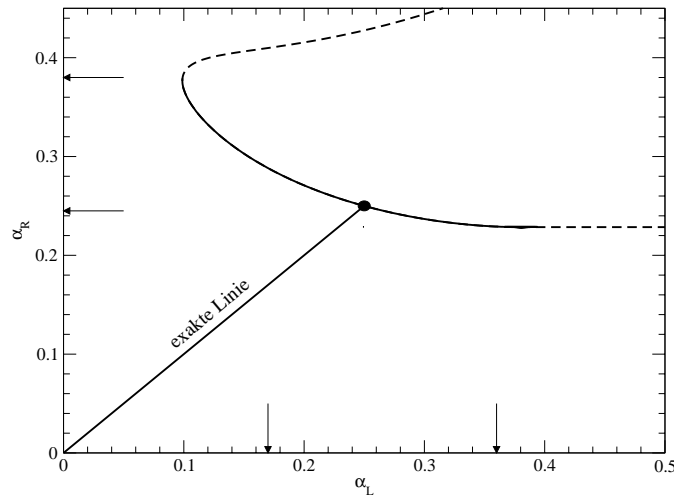


ABBILDUNG 2.20: Phasendiagramm der Spinleiter mit Ringaustausch. Die Pfeile deuten den Konfidenzbereich der Störungstheorie an, der aus Abbildung 2.21 übernommen wurde. Die rechte gestrichelte Linie ist eine Schätzung für den weiteren Verlauf; die obere gestrichelte Linie zeigt den weiteren Verlauf der Phasengrenze, wenn man den Konfidenzbereich ignoriert.

Zur Ermittlung der kritischen Exponenten für Funktionen der Form (2.50) bieten sich sowohl Dlog-Padé-Approximanten (1.70) als auch Approximanten mit höheren Ableitungen der Art (1.72) an. Damit die Berechnung unabhängig vom genauen Wert für  $y_c$  ist, wird letztere Methode benutzt. Abbildung 2.21 zeigt den Verlauf des kritischen Exponenten, welcher aus einer  $\log^2[6, 6]$  Approximante herauspräpariert wurde. Für den störungstheoretisch zugänglichen Bereich ist  $\eta = 1.00 \pm 0.01$ . Der Kurvenverlauf in Abbildung 2.21 zeigt, dass

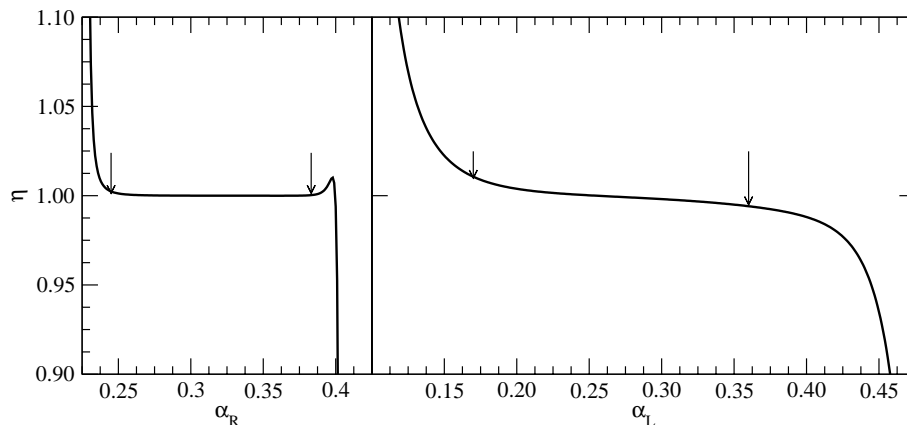


ABBILDUNG 2.21: Kritischer Exponent  $\eta$  als Funktion von  $\alpha_L$  bzw.  $\alpha_R$ . Die Pfeile markieren eine Abschätzung für den störungstheoretisch zugänglichen Bereich.

die Störungstheorie nicht mehr konvergent ist, falls  $\alpha_R$  bzw.  $\alpha_L$  gewisse Werte überschreiten. Die Pfeile in der Abbildung markieren eine großzügige Abschätzung für den störungs-

theoretisch zugänglichen Bereich:  $\alpha_R \in [0.24, 0.38]$  und  $\alpha_L \in [0.36, 0.17]$ . Eine genauere Betrachtung ausgewählter Punkte auf der Übergangslinie in verschiedenen Ordnungen zeigt, dass die Konvergenz der Reihenentwicklung nur innerhalb der oben genannten Bereiche vorhanden ist. Abbildung 2.22 illustriert dieses Ergebnis und deutet gleichzeitig an, dass auch eine Erhöhung der Ordnung den Konvergenzradius nicht vergrößern wird. Allerdings lässt das Phasendiagramm 2.20 einen größeren Konvergenzbereich vermuten. Bei der Berechnung des Exponenten bewegen wir uns auf Geraden, die die Phasengrenze in gewissen Bereichen sehr rasch schneiden. Die Numerik der Padé-Approximanten wird daher sehr anfällig gegenüber kleinen Störungen. Die Folge ist, dass Abbildung 2.21 einen kleineren Konvergenzbereich anzeigt.

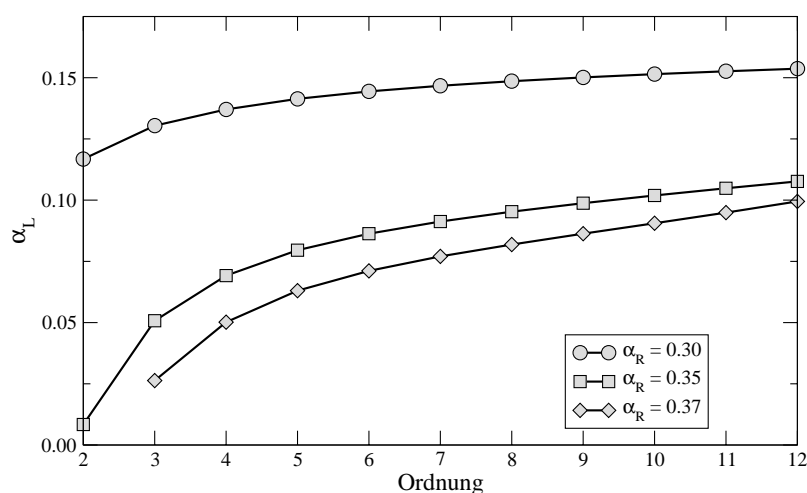


ABBILDUNG 2.22: Konvergenz im Phasendiagramm: Auf Geraden  $\alpha_R = \text{const}$  werden die entsprechenden  $\alpha_L$  auf der Phasengrenze gesucht und in Abhängigkeit von der Ordnung aufgetragen. Die Werte für  $\alpha_R = 0.37$  deuten schon auf einen Verlust der Konvergenz hin.

Der ermittelte Exponent  $\eta = 1$  und somit das lineare Schließen der Anregungslücke ist konsistent mit dem exakten Resultat (2.49) und beweist, dass sich der Phasenübergang nicht ändert, wenn man sich von Punkt  $\alpha_L = \alpha_R = \frac{1}{4}$  entfernt.

Untersucht man die Spinleiter inklusive des Ringaustausches im Grenzfall schwacher Kopplung, d. h.  $J_{\text{rung}}, J_{\text{ring}} \ll J_{\text{leg}}$ , so kann das Modell bosonisiert werden. Insbesondere stellt sich heraus, dass sich die biquadratischen Diagonal- und Holmwechselwirkungen gegenseitig wegheben<sup>89</sup> und dass sich das System auf ein im Zusammenhang mit der Spin-Phonon-Wechselwirkung<sup>90</sup> untersuchtes abbilden lässt.



## KAPITEL 3

### Wechselwirkende dimerisierte Spinketten

Die magnetischen Eigenschaften von einer Reihe in der Natur vorkommender Materialien lassen sich unter der Annahme schwach wechselwirkender  $S = 1/2$ -Spinketten bzw.  $S = 1/2$ -Spinleitern beschreiben. Von besonderem Interesse sind hierbei Substanzen, welche in Analogie zum vorangegangenen Kapitel eine dimerisierte Struktur aufweisen. Sie besitzen eine Anregungslücke zwischen dem unmagnetischen Grundzustand ( $S = 0$ ) und dem ersten angeregten Zustand ( $S = 1$ ). Theoretische Untersuchungen zeigen, dass die Hinzunahme von Wechselwirkungen zwischen den Spinketten die Dispersion nicht nur senkrecht sondern auch parallel zu den Ketten<sup>91</sup> beeinflusst.

Im Folgenden werden die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$ , sowie  $(\text{C}_4\text{H}_{12}\text{N}_2)\text{Cu}_2\text{Cl}_6$  (Piperaziniumhexachlorodikuprat, *kurz*: PHCC) jeweils in Hinblick auf ihre Wechselwirkungen untersucht. Die Materialien, welche vielfach mittels inelastischer Neutronenstreuung untersucht wurden, besitzen eine Anregungslücke und weisen zwei- bzw. dreidimensionale dispersive Moden auf. Weiterhin befinden sich die zu Grunde liegenden Ketten nahe am Dimer-Punkt, sodass die übrigen Wechselwirkungen als kleine Störungen angesehen werden können.

Das Ziel dieser Untersuchung soll die Bestimmung der individuellen Wechselwirkungen zwischen den einzelnen Spins mittels eines Vergleichs der störungstheoretisch ermittelten Dispersionsrelation mit experimentellen Daten sein. Die genaue Kenntnis der Wechselwirkungsstruktur ist von grundlegendem Interesse und kann zur Klärung anderer physikalischer Phänomene beitragen. Hierfür seien zur Verdeutlichung zwei Beispiele angeführt:

- BOSE-EINSTEIN-Kondensation von Magnonen,
- Magnetisierungsplateaus in der isostrukturellen Substanz  $\text{NH}_4\text{CuCl}_3$ .

Messungen der Magnetisierung und der spezifischen Wärme<sup>92,93</sup> zeigen, dass  $\text{TlCuCl}_3$  beim Überschreiten eines kritischen äußeren Magnetfeldes in einen dreidimensional geordneten Zustand übergeht. Die Abhängigkeit des kritischen Magnetfeldes von der Temperatur folgt einem Potenzgesetz:

$$\frac{g}{2}|H_c(T) - H_c(0)| \propto T^\phi. \quad (3.1)$$

Zur Charakterisierung des Phasenübergangs wurden Versuche unternommen, diesen mit Hilfe der BOSE-EINSTEIN-Kondensation (BEK) von Magnonen (Triplets mit  $S^z = 1$ ) zu beschreiben.<sup>16</sup> Die Grundidee dabei ist, dass das chemische Potential vom äußeren Magnetfeld kontrolliert wird und die Magnetisierung proportional zur Anzahl der kondensierten

Magnonen ist. Die genaue Form der Dispersionsrelation wird hierbei nicht berücksichtigt, sondern im Bereich der Anregungslücke quadratisch genähert. Somit könnte unter anderem die Kenntnis der mikroskopischen Wechselwirkungsstruktur zu quantitativ besseren Resultaten führen, zumal der theoretisch berechnete Exponent ( $\phi_{\text{BEK}} = 1.5$ ) vom experimentell ermittelten ( $\phi_{\text{exp}} = 2.2$ ) abweicht.

In einigen Materialien weist die Magnetisierung als Funktion eines äußeren Magnetfeldes so genannte *Plateaus* auf, d. h. es gibt Bereiche, in denen die Magnetisierungskurve horizontal verläuft. An diesen Plateaus ist die Magnetisierung pro Spin ein rationales Vielfaches der Sättigungsmagnetisierung. In reinen eindimensionalen Systemen sind die erlaubten Werte für den Bruchteil der Sättigungsmagnetisierung  $M$ , bei denen Plateaus auftreten können, durch die Bedingung<sup>94</sup>

$$QS(1 - M) \in \mathbb{N} \quad (3.2)$$

gegeben, wobei  $Q$  die Anzahl der magnetischen Ionen mit Spin  $S$  in der magnetischen Einheitszelle bezeichnet. Messungen der Magnetisierung in  $\text{NH}_4\text{CuCl}_3$  bei hohen äußeren Feldern zeigen ausgeprägte Plateaus bei  $M = \frac{1}{4}$  und  $M = \frac{3}{4}$ . Legt man ein eindimensionales Modell (d. h. eine Zickzackkette) mit Spin  $S = 1/2$  zu Grunde, so muss die magnetische Einheitszelle gemäß (3.2) acht Ionen enthalten. Dies impliziert eine spontane Symmetriebrechung, da der HAMILTON-Operator zwei Spins pro Einheitszelle enthält. Berücksichtigt man hingegen zwei- oder dreidimensionale Wechselwirkungen, so ändert sich nicht nur die Symmetrie des Modells, sondern auch die Lage und die Anzahl der Plateaus.<sup>95</sup> Demnach könnte die Kenntnis der Wechselwirkungen in  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  Hinweise auf die Wechselwirkungsstruktur in  $\text{NH}_4\text{CuCl}_3$  geben, da diese drei Substanzen isostrukturell sind.

Im anschließenden Abschnitt 3.1 werden zunächst die niederenergetischen magnetischen Anregungen von  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  untersucht. Dafür wird einerseits ein Modell benutzt, welches die Interdimerwechselwirkungen in einer effektiven Kopplung vereinigt. Andererseits werden die Dispersionsrelationen unter Berücksichtigung individueller Spinwechselwirkungen berechnet und die entsprechenden Werte der Kopplungen angegeben. Ähnliche Untersuchungen werden im Abschnitt 3.2 für die zweidimensionale Substanz PHCC vorgenommen, sodass die Wechselwirkungsstruktur aufgeklärt werden kann.

Zur Herstellung eines direkten Bezugs zum Experiment, wird im Abschnitt 3.3 der dynamische Strukturfaktor dieser Substanzen betrachtet und störungstheoretisch entwickelt.

### 3.1 Magnetische Anregungen in $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TlCuCl}_3$

Sowohl  $\text{KCuCl}_3$  als auch  $\text{TlCuCl}_3$  sind Komplexsalze, welche in einer monoklinen Struktur (Raumgruppe  $P2_1/c$ ) kristallisieren.<sup>96,97</sup> Die Abbildung 3.1 zeigt eine schematische Darstellung der chemischen Struktur. Die kristallographischen Daten sind der Tabelle 3.1 zu entnehmen.

Das Koordinationszentrum beider Substanzen ist ein zweifach positiv geladenes Kupferion. In dieser Oxidationsstufe hat Kupfer die Elektronenkonfiguration  $3d^9$ , sodass  $\text{Cu(II)}$ -

Verbindungen wegen des ungepaarten Elektrons paramagnetisch sind. Jedes Kupfer-Ion wird von sechs Chlor-Ionen oktaedrisch koordiniert. Da das  $d_{x^2-y^2}$ -Orbital unbesetzt bleibt, werden die  $[\text{CuCl}_6]^-$ -Oktaeder aufgrund des JAHN-TELLER-Effekts tetragonal deformiert, was schließlich zu einer Stabilisierung führt. Entlang der  $a$ -Achse sind diese Oktaeder so angeordnet, dass jeweils zwei Kupfer- und vier Chloratome in nahezu einer Ebene liegen und Doppelketten entstehen. Wie Abbildung 3.1 zeigt, wird die  $bc$ -Ebene in der Mitte und an den Ecken einer Einheitszelle von diesen Ketten geschnitten. Allerdings sind jene in der Mitte gegenüber denen an den Ecken um die  $a$ -Achse verdreht. Damit enthält jede Einheitszelle vier Kupferatome.

	$\text{KCuCl}_3$	$\text{TlCuCl}_3$
$a$	4.029Å	3.982Å
$b$	13.785Å	14.144Å
$c$	8.736Å	8.890Å
$\beta$	97.33°	96.32°

TABELLE 3.1: Kristallographische Daten für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$ : Gitterkonstanten  $a$ ,  $b$ ,  $c$  und Winkel  $\beta$  bei Raumtemperatur.<sup>96,97</sup>

Erste Messungen an diesen Materialien konzentrierten sich auf ebendiesen Doppel-Ketten-Charakter. Man nahm daher an, dass die wesentlichen Eigenschaften des Systems mit denen einer  $S = 1/2$  Spinleiter erklärt werden könnten,<sup>98,99</sup> wobei eine starke Kopplung auf den Sprossen vorausgesetzt wurde. Untersuchungen der Magnetisierung und ESR-Messungen zeigten, dass die Spinwechselwirkungen zwischen den Kupfer-Ionen isotrop sind.<sup>100,101</sup>

Erst mit Hilfe von inelastischer Neutronenstreuung konnten die Wechselwirkungen zwischen den Ketten verifiziert werden:<sup>29,102</sup> Entlang aller Richtungen im reziproken Raum wurden dispersive Moden mit einer Energielücke von 2.6 meV in  $\text{KCuCl}_3$  bzw. 0.65 meV in  $\text{TlCuCl}_3$ <sup>93,101</sup> nachgewiesen.

### 3.1.1 Modellierung der Wechselwirkungsstruktur

Die stärkste Wechselwirkung ist zwischen den magnetischen Momenten (Spins) benachbarter Kupferatome zu erwarten, die über die Chlor-Brücken in den planaren  $(\text{Cu}_2\text{Cl}_6)^{2-}$ -Strukturen vermittelt wird. Aufgrund des nahezu rechtwinkligen Bindungswinkels von ca. 96° ist die Wechselwirkung  $J$  positiv, d. h. antiferromagnetisch. Die  $S = 1/2$ -Spins dieser Atome bilden daher im Grundzustand Spinsingletts, sodass in Übereinstimmung mit Magnetisierungs- und Suszeptibilitätsmessungen<sup>93,100,101</sup> der Grundzustand unmagnetisch ist.

Jede kristallographische Einheitszelle enthält zwei Dimere  $D_1$  und  $D_2$ , zwischen denen aufgrund ihrer unterschiedlichen Orientierungen differenziert werden muss. Innerhalb der Einheitszelle befindet sich  $D_1$  bei  $\mathbf{R}_1 = (0, 0, 0)$  und  $D_2$  bei  $\mathbf{R}_2 = (0, \frac{1}{2}\mathbf{b}, \frac{1}{2}\mathbf{c})$ . Die einzelnen

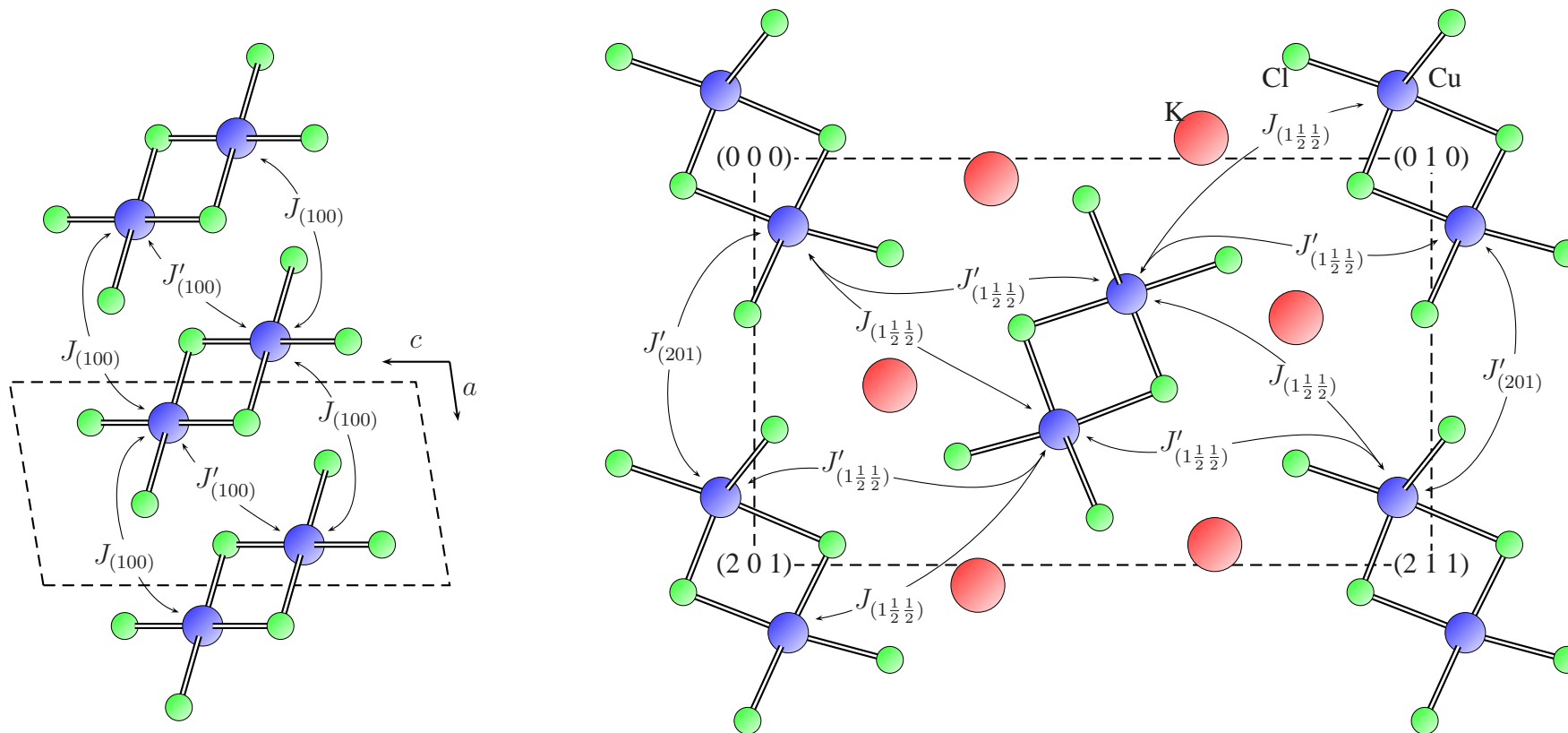


ABBILDUNG 3.1: Schematische Darstellung der kristallinen Struktur und der magnetischen Wechselwirkungen in  $\text{KCuCl}_3$ . Links: Anordnung der  $(\text{Cu}_2\text{Cl}_6)^{2-}$ -Dimere entlang der  $a$ -Achse. Rechts: Darstellung eines Schnitts durch die  $[20\bar{1}]$ -Ebene. Die Zickzackketten schneiden die Einheitszelle in den Ecken und in der Mitte. Zwischen diesen Ebenen gibt es nur die links angedeuteten Wechselwirkungen  $J_{(100)}$  bzw.  $J'_{(100)}$ .



Spins auf den Dimeren werden mit  $\mathbf{R}_i - \frac{\mathbf{d}_i}{2}$  bzw.  $\mathbf{R}_i + \frac{\mathbf{d}_i}{2}$  adressiert, wobei  $\mathbf{d}_i$  für eine eindeutige Bezeichnung im Folgenden von Spin 1 nach Spin 2 zeige. Für die Vektoren  $\mathbf{d}_i$  gilt:

$$\begin{aligned} \text{KCuCl}_3: \quad \mathbf{d}_1 &= 0.48\mathbf{a} + 0.10\mathbf{b} + 0.32\mathbf{c}, & \text{TlCuCl}_3: \quad \mathbf{d}_1 &= 0.46\mathbf{a} + 0.10\mathbf{b} + 0.31\mathbf{c}, \\ \mathbf{d}_2 &= 0.48\mathbf{a} - 0.10\mathbf{b} + 0.32\mathbf{c}. & \mathbf{d}_2 &= 0.46\mathbf{a} - 0.10\mathbf{b} + 0.31\mathbf{c}. \end{aligned}$$

Zur Beschreibung der magnetischen Anregungen verwenden wir ein dimerisiertes Spin-1/2-HEISENBERG-Modell mit isotropen Nächste-Nachbar-Wechselwirkungen. Der HAMILTON-Operator lässt sich in zwei Anteile zerlegen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1, \quad (3.3)$$

wobei

$$\mathcal{H}_0 = J \sum_{\substack{\mathbf{n} \\ i=1,2}} \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\mathbf{R}_i}^1 \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\mathbf{R}_i}^2 \quad (3.4)$$

die Intradimerwechselwirkungen und

$$\mathcal{H}_1 = \frac{1}{2} \sum'_{\substack{\mathbf{m}, \mathbf{n} \\ k, l=1,2}} h(\mathbf{m} + \mathbf{R}_k, \mathbf{n} + \mathbf{R}_l), \quad (3.5)$$

$$h(\mathbf{r}, \mathbf{r} + \mathbf{g}) = \sum_{i,j=1,2} J_{(mnp)}^{(ij)} \mathbf{S}_{\mathbf{r}}^i \mathbf{S}_{\mathbf{r}+\mathbf{g}}^j \quad \text{mit} \quad \mathbf{g} = m\mathbf{a} + n\mathbf{b} + p\mathbf{c} \neq \mathbf{0}$$

die Interdimerwechselwirkungen beschreiben. In dieser Darstellung sind  $\mathbf{m}$  und  $\mathbf{n}$  Gittervektoren, die auf eine Einheitszelle zeigen, während  $\mathbf{g}$  aufgrund von möglichen Wechselwirkungen zwischen unterschiedlich orientierten Dimeren kein echter Gittervektor ist. Somit enthält das Tripel  $(mnp)$  nicht nur ganzzahlige, sondern auch halbzahlige Werte. Der Strich an der Summe deutet an, dass  $\mathbf{m} + \mathbf{R}_k \neq \mathbf{n} + \mathbf{R}_l$  ist.

Der HAMILTON-Operator (3.1.1) ist sehr allgemein und enthält Wechselwirkungen zwischen beliebigen Dimerpaaren. Neben der Wechselwirkungsstärke stellt sich deshalb die Frage, welche Kopplungen überhaupt zu berücksichtigen sind. Einen Zugang bietet die Betrachtung möglicher Austauschpfade in der chemischen Struktur.<sup>103</sup> Demnach gibt es einerseits Wechselwirkungen  $J_{(100)}^{(ij)}$  entlang der  $\mathbf{a}$ -Achse, die ähnlich denen innerhalb der Dimere über Cu-Cl-Cu-Austauschpfade vermittelt werden. Andererseits können diese Doppelketten über Cu-Cl-Cl-Cu-Austauschpfade miteinander wechselwirken. Hier werden die Kopplungen  $J_{(201)}^{(ij)}$  zwischen äquivalent orientierten Dimeren, sowie  $J_{(1, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  und  $J_{(1, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  zwischen verschiedenen orientierten Dimeren favorisiert. Daneben sind auch die Wechselwirkungen  $J_{(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  und  $J_{(0, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  denkbar. In den anschließenden Analysen wurden diese Wechselwirkungen zwar explizit mit einbezogen, jedoch stellt sich heraus, dass sie in allen Fällen vernachlässigbar klein sind. Deshalb werden sie im Folgenden nicht weiter betrachtet.

Abbildung 3.1 zeigt schematisch die berücksichtigten bilinearen Wechselwirkungen zwischen benachbarten Dimeren. Aufgrund der Kristallsymmetrie wird zwischen den Wechselwirkungen  $J_{(1, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  und  $J_{(1, \frac{1}{2}, \frac{1}{2})}^{(ij)}$  nicht unterschieden. Für eine übersichtlichere Darstellung

haben wir die Bezeichnungen der Spinpaare  $(ij)$  fortgelassen. Stattdessen tragen die Bezeichnungen der Wechselwirkungen zwischen nicht äquivalenten Spins  $(i \neq j)$  einen zusätzlichen Strich.<sup>104</sup> In Tabelle 3.2 sind alle für die anschließenden Untersuchungen relevanten Wechselwirkungen aufgeführt.

Abstand der Dimerschwerpunkte $\mathbf{g}_k$	Wechselwirkungen zwischen	
	äquivalenten Spins $(i = j)$	nicht äquivalenten Spins $(i \neq j)$
$\mathbf{g}_1 = \mathbf{a}$	$J_{(100)}$	$J'_{(100)}$
$\mathbf{g}_2 = 2\mathbf{a} + \mathbf{c}$	—	$J'_{(201)}$
$\mathbf{g}_3 = \mathbf{a} + \frac{1}{2}(\mathbf{b} + \mathbf{c})$	$J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$	$J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$
$\mathbf{g}_4 = \mathbf{a} - \frac{1}{2}(\mathbf{b} - \mathbf{c})$	$J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$	$J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$
$\mathbf{g}_5 = \frac{1}{2}(\mathbf{b} + \mathbf{c})$	—	—
$\mathbf{g}_6 = \frac{1}{2}(\mathbf{b} - \mathbf{c})$	—	—

TABELLE 3.2: Bezeichnungen der berücksichtigten Wechselwirkungen für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TiCuCl}_3$ . Die Vektoren  $\mathbf{g}_k$  geben den Abstand der Dimerschwerpunkte an.

Da die kristallographische Einheitszelle zwei Dimere enthält, besitzt das Gitter eine Basis. Es gibt daher zwei Anregungszweige für jeden Wellenvektor  $\mathbf{q}$  in der ersten BRILLOUIN-Zone:

$$-\pi < \mathbf{q}_a \mathbf{a}, \mathbf{q}_b \mathbf{b}, \mathbf{q}_c \mathbf{c} \leq \pi \quad (\text{kristallographische Zone}), \quad (3.6)$$

wobei  $\mathbf{q}_a$  die Projektion von  $\mathbf{q}$  auf die  $\mathbf{a}^*$ -Achse des reziproken Gitters ist (entsprechend für  $\mathbf{q}_b$  und  $\mathbf{q}_c$ ).

Zur Beschreibung der magnetischen Anregungen benutzen wir eine so genannte *erweiterte Darstellung* für die erlaubten  $\mathbf{q}$ -Werte. Aufgrund der Symmetrie der Wechselwirkungen im HAMILTON-Operator ist bei der Berechnung der Dispersionsrelation eine Unterscheidung, ob sich eine Anregung auf  $D_1$  oder  $D_2$  befindet, nicht möglich. Wir können deshalb eine Beschreibung verwenden, bei der die Einheitszelle nur einen Dimer enthält. Entsprechend wird die erste BRILLOUIN-Zone in der  $\mathbf{bc}$ -Ebene verdoppelt:

$$-\pi < \mathbf{q}_a \mathbf{a} \leq \pi, \quad -2\pi < \mathbf{q}_b \mathbf{b} \pm \mathbf{q}_c \mathbf{c} \leq 2\pi \quad (\text{erweiterte Zone}). \quad (3.7)$$

Die Abbildung 3.2 zeigt die Lage der erweiterten Zone im Vergleich zur kristallographischen. Durch die Abbildungen  $\mathbf{q}_b \mathbf{b} \rightarrow \mathbf{q}_b \mathbf{b} + 2\pi$  oder  $\mathbf{q}_c \mathbf{c} \rightarrow \mathbf{q}_c \mathbf{c} + 2\pi$  wird der zweite Anregungszweig so verschoben, dass in der erweiterten Zone jedem  $\mathbf{q}$ -Wert nur noch eine Anregung zugeordnet wird.

### 3.1.2 Effektives Modell für $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TiCuCl}_3$

Obwohl die Anzahl der möglichen Kopplungen aufgrund der vorangegangenen Betrachtungen erheblich eingeschränkt werden konnte, bleiben aus Sicht des ursprünglichen

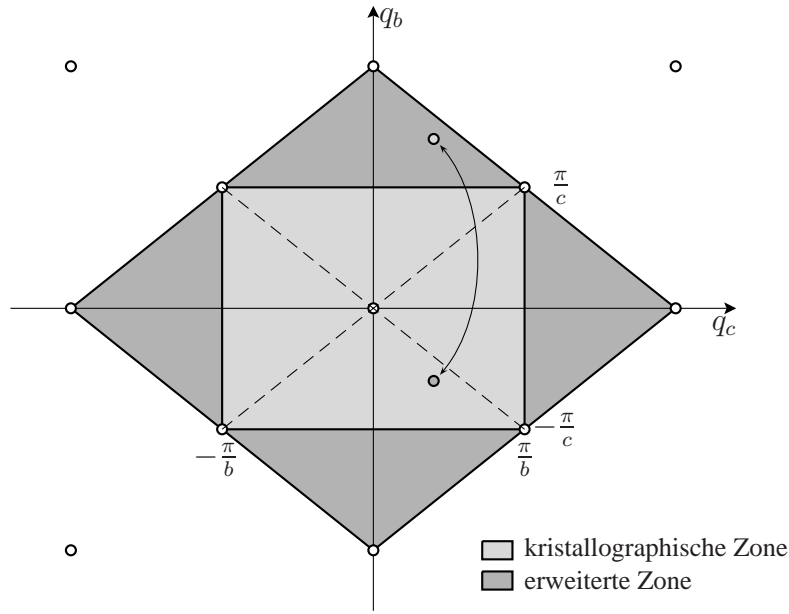


ABBILDUNG 3.2: Konstruktion der verwendeten BRILLOUIN-Zonen für das Gitter von  $\text{KCuCl}_3$ : Die hell schraffierte Fläche resultiert aus der kristallographischen Einheitszelle, welche zwei Dimere enthält. Die dunkel schraffierte Fläche ist die erweiterte Zone mit einem Dimer pro Einheitszelle.

HAMILTON-Operators (3.1.1) immer noch vier Kopplungen pro Richtung (d. h. insgesamt 16) übrig. Weiterhin ist noch die Intradimerkopplung  $J$  zu berücksichtigen.

Einen ersten Einblick in die Wechselwirkungsstärken gibt ein so genanntes *effektives Modell*.<sup>105</sup> Dabei werden vier Kopplungen zu einer effektiven zusammengefasst:

$$J_{(mnp)}^{\text{eff}} = \frac{1}{4} \left( J_{(mnp)}^{(11)} + J_{(mnp)}^{(22)} - J_{(mnp)}^{(12)} - J_{(mnp)}^{(21)} \right). \quad (3.8)$$

Dieses Ergebnis erhält man durch Einführung so genannter *Dimerspins*  $\mathbf{K}_r^\pm = \mathbf{S}_r^1 \pm \mathbf{S}_r^2$  auf jedem Dimer. Nimmt man weiterhin an, dass  $J_{(mnp)}^{(12)} = J_{(mnp)}^{(21)} = \frac{1}{2}(J_{(mnp)}^{(12)} + J_{(mnp)}^{(21)})$  und  $J_{(mnp)}^{(11)} = J_{(mnp)}^{(22)} = \frac{1}{2}(J_{(mnp)}^{(11)} + J_{(mnp)}^{(22)})$  gilt, was bei gleichen Spinabständen sinnvoll ist, so lässt sich der HAMILTON-Operator (3.1.1) auf die folgende Form bringen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}^0 + \mathcal{H}^+ + \mathcal{H}^-, \quad (3.9)$$

wobei

$$\mathcal{H}^0 = \frac{J}{2} \sum_{\mathbf{r}} (\mathbf{K}_r^+ \mathbf{K}_r^+ - \mathbf{K}_r^- \mathbf{K}_r^-), \quad (3.10)$$

$$\mathcal{H}^+ = \frac{1}{2} \left( J_{(mnp)}^{(11)} + J_{(mnp)}^{(12)} \right) \sum_{\mathbf{r}, \mathbf{g}} \mathbf{K}_r^+ \mathbf{K}_{\mathbf{r}+\mathbf{g}}^+, \quad (3.11)$$

$$\mathcal{H}^- = \frac{1}{2} \left( J_{(mnp)}^{(11)} - J_{(mnp)}^{(12)} \right) \sum_{\mathbf{r}, \mathbf{g}} \mathbf{K}_r^- \mathbf{K}_{\mathbf{r}+\mathbf{g}}^-, \quad (3.12)$$

gilt. Der Anteil  $\mathcal{H}^0$  des HAMILTON-Operators ist in der Dimerbasis bereits diagonal und gibt die Singlett-Triplett-Aufspaltung des ungestörten Systems wieder. Für positive  $J$  ist der Grundzustand ein Singlett und der erste angeregte Zustand ein Triplett mit der Anregungsenergie  $J$ . Weiterhin bleibt festzustellen, dass der Operator  $\mathbf{K}^+$  nicht aus dem Raum der Dimer-Singletts bzw. der Dimer-Tripletts herausführt, während  $\mathbf{K}^-$  diese mischt. Für die  $i$ -te Komponente der Operatoren  $\mathbf{K}^\pm$  gilt:

$$K_i^+ |s\rangle = 0, \quad K_i^+ |t^j\rangle = i\epsilon^{ijk} |t^k\rangle, \quad (3.13)$$

$$K_i^- |s\rangle = |t^i\rangle, \quad K_i^- |t^j\rangle = \delta^{ij} |s\rangle. \quad (3.14)$$

Zur Vereinfachung wurde für die Triplettzustände die kartesische Darstellung\* verwendet. Die Dispersion wird somit durch  $\mathcal{H}^-$  produziert, und  $\mathcal{H}^+$  kann folglich vernachlässigt werden. Die weitere Analyse wird auf  $\mathcal{H}^0$  und  $\mathcal{H}^-$  beschränkt bleiben, wobei die vier Interdimerwechselwirkungen  $J_{(mnp)}^{(ij)}$  zwischen benachbarten Dimeren durch effektive  $J_{(mnp)}^{\text{eff}}$  ersetzt werden. An dieser Stelle wird die Bezeichnung „effektives“ Modell deutlich: Einerseits wird der HAMILTON-Operator auf die dispersiven Anteile reduziert, andererseits werden die vier einzelnen Spin-Spin-Wechselwirkungen durch eine gemittelte Dimer-Dimer-Wechselwirkung ersetzt.

Mit Hilfe einer Random-Phase Approximation (RPA) kann die Dispersionsrelation für das effektive Modell gewonnen werden:

$$\omega^\pm(\mathbf{q}) = J \sqrt{1 + \frac{2(n_0 - n_1)}{J} \mathcal{J}^\pm(\mathbf{q})}. \quad (3.15)$$

Hier bezeichnen  $n_i$  die Besetzungszahlen des Singlettzustandes bzw. der Triplettzustände. Allerdings kann für tiefe Temperaturen dieser Faktor vernachlässigt werden, denn für  $T \rightarrow 0$  ist  $(n_0 - n_1) = 1$ . Die FOURIER-Transformierte  $\mathcal{J}^\pm(\mathbf{q})$  der im vorangegangenen Abschnitt genannten Wechselwirkungen ist folgendermaßen zu schreiben:

$$\begin{aligned} \mathcal{J}^\pm(\mathbf{q}) &= J_{(100)}^{\text{eff}} \cos(2\pi h) + J_{(201)}^{\text{eff}} \cos(4\pi h + 2\pi l) \\ &\pm 2J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}^{\text{eff}} \cos(2\pi h + \pi l) \cos(\pi k). \end{aligned} \quad (3.16)$$

Hier und im Folgenden benutzen wir die in der Festkörperphysik übliche Notation. Demnach ist beispielsweise  $2\pi h = \mathbf{q}_a \mathbf{a}$ , wobei  $\mathbf{q}_a$  die Projektion des Wellenvektors  $\mathbf{q}$  auf die  $\mathbf{a}^*$ -Richtung des reziproken Gitters ist.

In (3.16) haben wir die in Abschnitt 3.1.1 diskutierte erweiterte Darstellung der Wellenvektoren gewählt. Demnach gelangt man von der ersten zur zweiten BRILLOUIN-Zone durch den Übergang  $k \rightarrow k + 1$  oder  $l \rightarrow l + 1$ . Durch einen Vorzeichenwechsel in (3.16) vor  $J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}^{\text{eff}}$  wird ein aus der ersten BRILLOUIN-Zone stammender Anregungszweig in die zweite verschoben. Welche dieser Moden mittels inelastischer Neutronenstreuung sichtbar ist, hängt

---

\*Der Zusammenhang dieser kartesischen Darstellung mit den Zuständen, die auch  $S^z$ -Eigenzustände sind, ist  $|t^x\rangle = 1/\sqrt{2}(|t^- \rangle - |t^+ \rangle)$ ,  $|t^y\rangle = i/\sqrt{2}(|t^- \rangle + |t^+ \rangle)$  und  $|t^z\rangle = |t^0\rangle$ .

von der Beobachtungsrichtung ab und spiegelt sich im dynamischen Strukturfaktor wieder, der in Abschnitt 3.3 näher untersucht wird.

Um die effektiven Wechselwirkungskonstanten zu ermitteln, kann man Gleichung (3.15) an experimentell gewonnene Daten anpassen. Hierfür wird die *Methode der kleinsten Quadrate* (least square fit, kurz: LSF) benutzt, welche die Summe der mit den Fehlerbalken gewichteten Fehlerquadrate minimiert:

$$\chi^2 = \sum_{i=1}^M \left( \frac{y_i + f(x_i; a_1, \dots, a_N)}{\sigma_i} \right)^2 \longrightarrow \min, \quad (3.17)$$

wobei  $(x_i, y_i \pm \sigma_i)$  die fehlerbehafteten Messwerte sind, während  $f(x_i; a_1, \dots, a_N)$  die mit den Parametern  $a_1, \dots, a_N$  anzupassende Dispersion ist. Zur Bestimmung des Minimums von  $\chi^2$  kann entweder eine Gradientenmethode oder ein Abtasten kleiner Ausschnitte des Parameterraums benutzt werden.

Die Ergebnisse der Anpassung der experimentellen Daten aus den Referenzen [103] und [79] sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst. Die Intradimerwechselwirkungen wurden hierbei auf  $J = 4.25$  meV bzw.  $J = 5.68$  meV fixiert. Deutliche Unterschiede ergeben sich im Vergleich der beiden Substanzen: Während die Kopplungen von  $\text{KCuCl}_3$  betragsmäßig ähnlich sind und 10% der Dimerwechselwirkung  $J$  nicht überschreiten, weisen die von  $\text{TlCuCl}_3$  größere Unterschiede auf und reichen an 25% der Dimerwechselwirkung heran. Insbesondere dominiert  $J_{(201)}^{\text{eff}}$  in  $\text{TlCuCl}_3$ .

In den Abbildungen 3.3 und 3.4 sind die resultierenden Dispersionskurven und die entsprechenden experimentellen Daten eingezeichnet. Man erkennt, dass das Modell trotz seiner starken Vereinfachungen die Messwerte gut reproduzieren kann.

$J_{(mnp)}^{\text{eff}}$	$\text{KCuCl}_3$		$\text{TlCuCl}_3$	
	absolut in meV	relativ	absolut in meV	relativ
$J_{(100)}^{\text{eff}}$	-0.200	-0.047	-0.386	-0.068
$J_{(201)}^{\text{eff}}$	-0.408	-0.096	-1.500	-0.264
$J_{(1\pm\frac{1}{2}\frac{1}{2})}^{\text{eff}}$	0.332	0.078	0.460	0.081
$J$	4.250	1.000	5.680	1.000

TABELLE 3.3: Aus einem LSF gewonnene, absolute und relative Kopplungskonstanten  $J_{(mnp)}^{\text{eff}}$  für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$ .

### 3.1.3 Mikroskopisches Modell für $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TlCuCl}_3$

Im vorangegangenen Abschnitt wurde ein Modell vorgestellt, welches die experimentellen Resultate gut reproduzieren kann, aber die mikroskopische Struktur nur näherungsweise

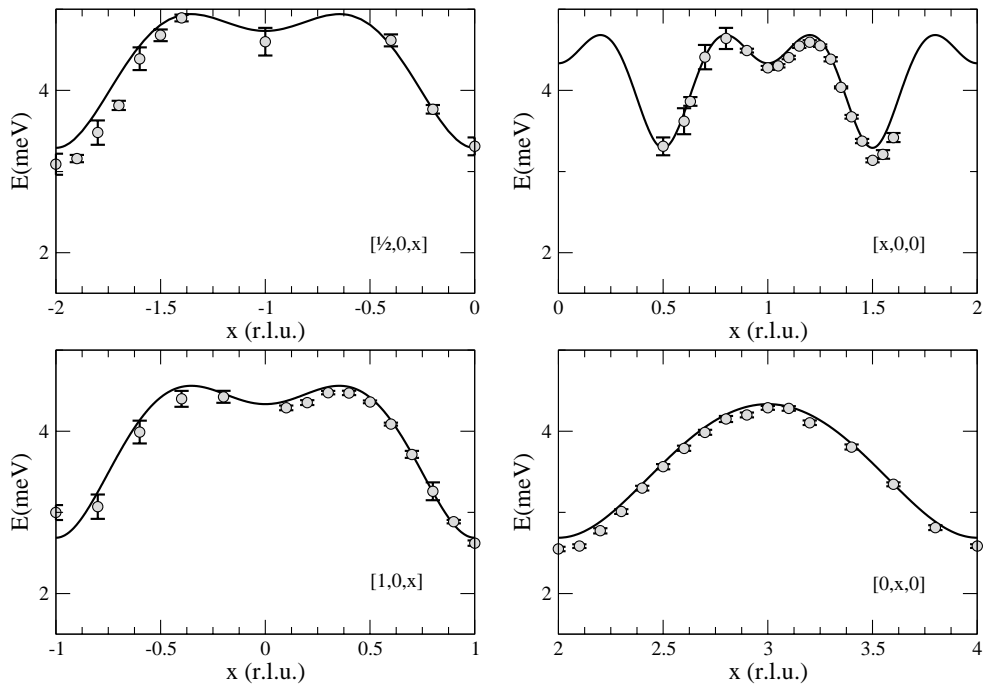


ABBILDUNG 3.3: Darstellung der Dispersionskurven für  $\text{KCuCl}_3$  mit effektiver Wechselwirkung. Die Wechselwirkungsparameter stammen aus einem LSF an experimentellen Daten<sup>103</sup> und sind in Tabelle 3.3 angeführt.

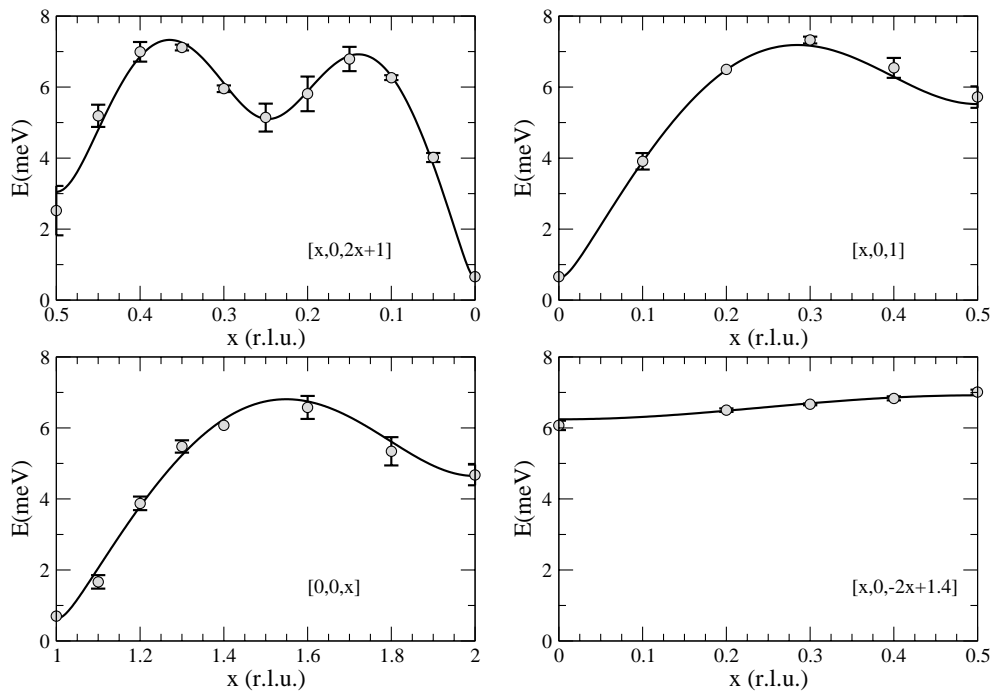


ABBILDUNG 3.4: Darstellung der Dispersionskurven für  $\text{TiCuCl}_3$  mit effektiver Wechselwirkung. Die Wechselwirkungsparameter stammen aus einem LSF an experimentellen Daten<sup>93</sup> und können Tabelle 3.3 entnommen werden.

berücksichtigt. Wir haben bereits in Kapitel 2 gesehen, dass die individuelle Berücksichtigung der Spinwechselwirkungen zu unterschiedlichen Dispersionskurven führt. Insbesondere das effektive Modell kann die Anregungslücke nur unzureichend wiedergeben.

In Abbildung 3.1 sind alle zu berücksichtigenden Spinwechselwirkungen angegeben. Für eine störungstheoretische Untersuchung nehmen wir folgende Ersetzungen vor und messen alle Kopplungen und Energien in Einheiten der Intradimerwechselwirkung  $J$ :

$$\begin{aligned} J &\longrightarrow 1, & J'_{(201)} &\longrightarrow \alpha_1 = \frac{J'_{(201)}}{J}, & J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} &\longrightarrow \alpha_4 = \frac{J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}}{J}, \\ J_{(100)} &\longrightarrow \alpha_2 = \frac{J_{(100)}}{J}, & J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} &\longrightarrow \alpha_5 = \frac{J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}}{J}. \\ J'_{(100)} &\longrightarrow \alpha_3 = \frac{J'_{(100)}}{J}, \end{aligned} \quad (3.18)$$

Mit Hilfe der Clusterentwicklung erhalten wir die Dispersionsrelation, die wir analog zum vorangegangenen Kapitel als *vollständig* bezeichnen wollen. Sie ist eine Funktion in den Variablen  $\alpha_1 \dots \alpha_5$  und besitzt folgende Form:

$$\omega(\mathbf{q}) = 1 + \sum_{\substack{p_1 \geq 0 \dots p_5 \geq 0 \\ (n_h, n_k, n_l)}} C_{n_h, n_k, n_l}^{p_1, \dots, p_5} \prod_{j=0}^5 \alpha_j^{p_j} \cos(2\pi n_h h + \pi n_l l) \cos(\pi n_k k). \quad (3.19)$$

In der Darstellung (3.19) schlägt sich die bereits eingangs erwähnte Halbierung der kristallographischen Einheitszelle nieder, da sich die Periode der Kosinusterme in b- bzw. c-Richtung verdoppelt.

Wir wollen untersuchen, inwieweit das effektive Modell in der vollständigen Dispersionsrelation wiederzufinden ist. Dazu benutzen wir die Ergebnisse aus Abschnitt 2.3 und schreiben (3.19) in der folgenden Form:

$$\omega(\mathbf{q}) = \sqrt{1 + 2\omega^{(1)}(\mathbf{q})} + \Delta(\mathbf{q}), \quad (3.20)$$

wobei

$$\begin{aligned} \omega^{(1)}(\mathbf{q}) &= -\frac{\alpha_1}{2} \cos(2\pi h + \pi l) + \frac{2\alpha_2 - \alpha_3}{2} \cos(2\pi h) \\ &\quad + (\alpha_5 - \alpha_5) \cos(2\pi h + \pi l) \cos(\pi k) \end{aligned} \quad (3.21)$$

die Entwicklung der Anregungsenergie in erster Ordnung ist. Die Korrekturterme in  $\Delta(\mathbf{q})$  haben eine zu (3.19) ähnliche Gestalt:

$$\Delta(\mathbf{q}) = \sum_{\substack{p_1 \geq 0 \dots p_5 \geq 0 \\ (n_h, n_k, n_l)}} \Delta_{n_h, n_k, n_l}^{p_1, \dots, p_5} \prod_{j=1}^5 \alpha_j^{p_j} \cos(2\pi n_h h + \pi n_l l) \cos(\pi n_k k). \quad (3.22)$$

Die Koeffizienten  $\Delta_{n_h, n_k, n_l}^{p_1, \dots, p_5}$  konnten bis zur vierten Ordnung, d. h.  $\sum_j p_j \leq 4$ , explizit berechnet werden. Da die Anzahl der von Null verschiedenen Koeffizienten 624 beträgt, wurden diese für höhere Ordnungen nicht mehr ermittelt.

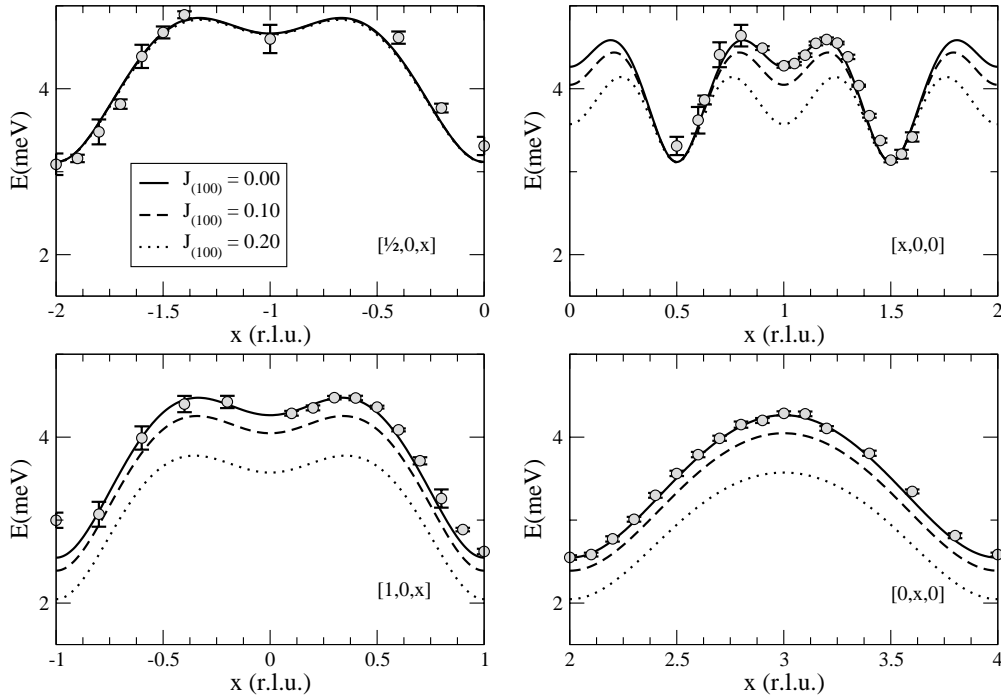


ABBILDUNG 3.5: Variation bei konstanter effektiver Wechselwirkung  $J_{100}^{\text{eff}} = -0.050$  für  $\text{KCuCl}_3$  und unterschiedlichen  $J_{100}$ . Die übrigen Wechselwirkungskonstanten sind Tabelle 3.4 zu entnehmen.

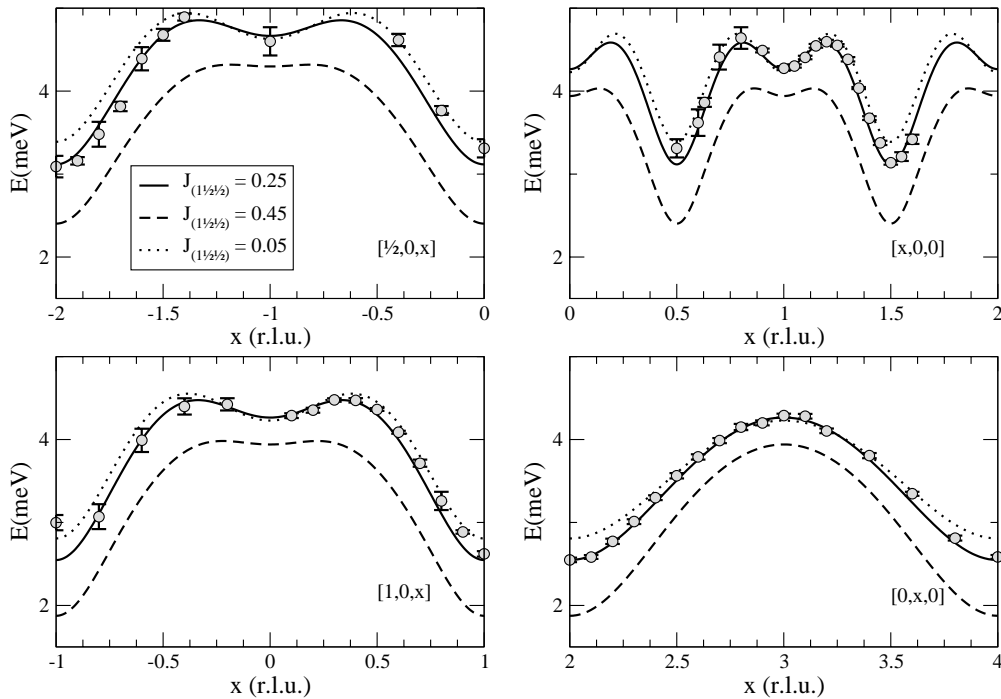


ABBILDUNG 3.6: Variation bei konstanter effektiver Wechselwirkung  $J_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}}^{\text{eff}} = 0.125$  für  $\text{KCuCl}_3$  und unterschiedlichen  $J_{\frac{1}{2}, \frac{1}{2}}$ . Die übrigen Wechselwirkungskonstanten sind Tabelle 3.4 zu entnehmen.



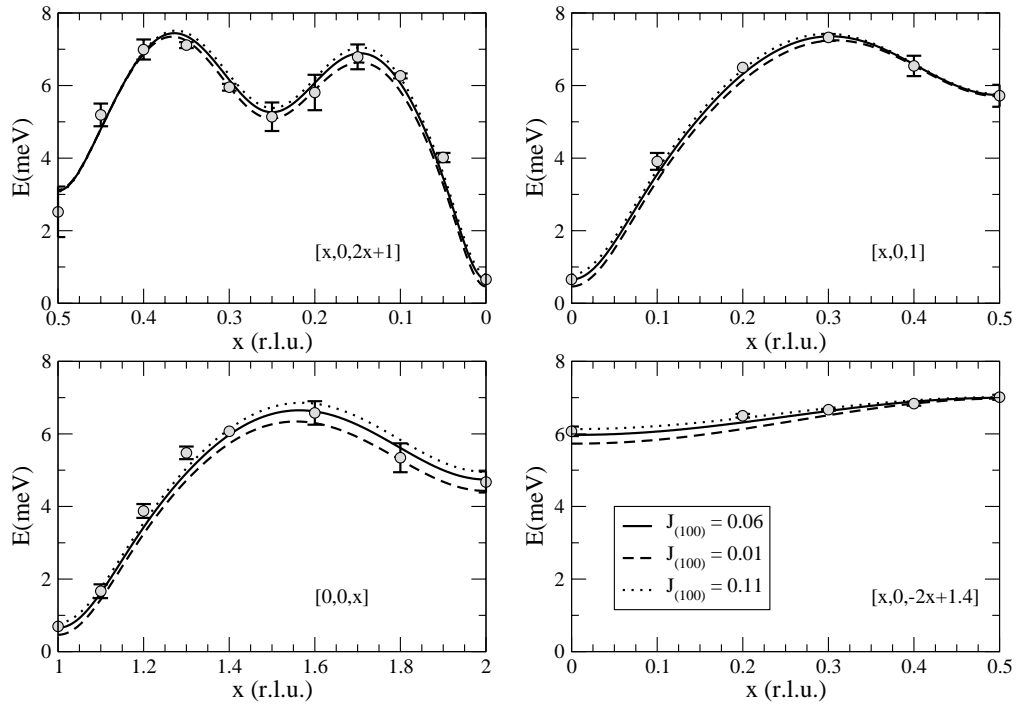


ABBILDUNG 3.7: Variation bei konstanter effektiver Wechselwirkung  $J_{100}^{\text{eff}} = -0.090$ . für  $\text{TlCuCl}_3$  und unterschiedlichen  $J_{100}$ . Die übrigen Wechselwirkungskonstanten sind Tabelle 3.4 zu entnehmen.

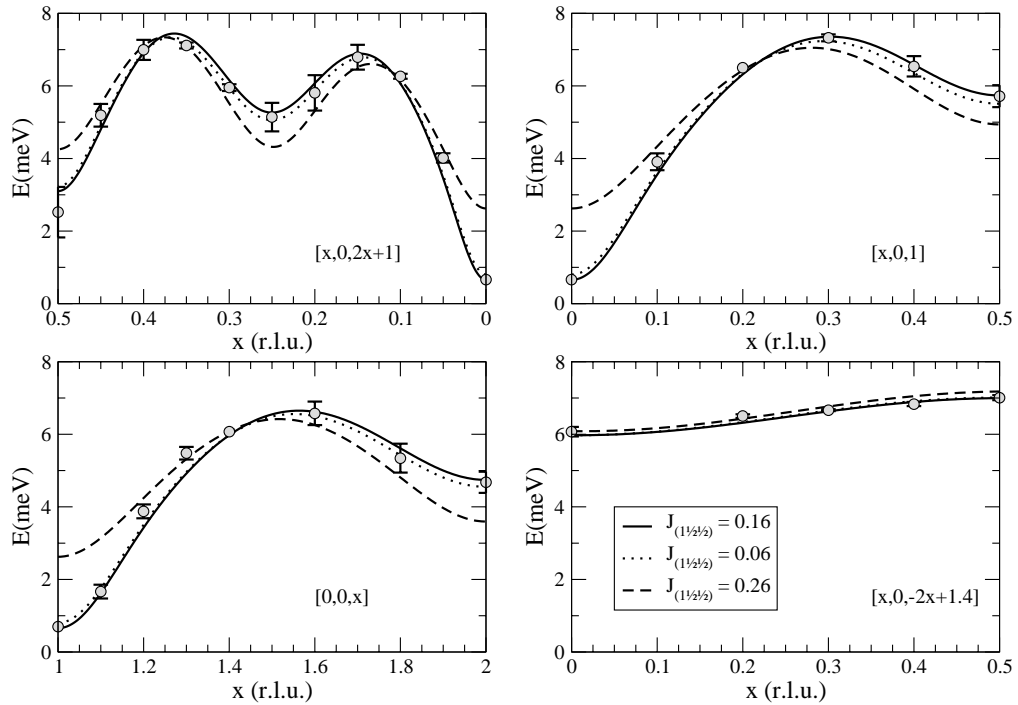


ABBILDUNG 3.8: Variation bei konstanter effektiver Wechselwirkung  $J_{1\frac{1}{2}\frac{1}{2}}^{\text{eff}} = 0.260$ . für  $\text{TlCuCl}_3$  und unterschiedlichen  $J_{1\frac{1}{2}\frac{1}{2}}$ . Die übrigen Wechselwirkungskonstanten sind Tabelle 3.4 zu entnehmen.

$J_{(mnp)}$	KCuCl <sub>3</sub>			TlCuCl <sub>3</sub>		
	absolut in meV	relativ	effektiv	absolut in meV	relativ	effektiv
$J_{(100)}$	0.00	0.00	} - 0.05	0.34	0.06	} - 0.09
$J'_{(100)}$	0.43	0.10		1.70	0.30	
$J'_{(201)}$	0.77	0.18	-0.09	2.56	0.45	-0.23
$J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$	0.85	0.20	} 0.08	0.91	0.16	} 0.13
$J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}$	0.21	0.05		-0.57	-0.10	
$J$	4.25	1.00		5.68	1.00	

TABELLE 3.4: Individuelle Spinwechselwirkungen für KCuCl<sub>3</sub> und TlCuCl<sub>3</sub> in absoluten und relativen, in Einheiten von  $J$  gemessenen Kopplungskonstanten. Zum Vergleich sind die resultierenden effektiven Konstanten angegeben.

Bereits in zweiter Ordnung gibt es Korrekturen, die nicht nur für eine Verschiebung der Dispersionskurve, sondern auch durch zusätzliche Kosinusterme für eine Veränderung der Form sorgen:

$$\begin{aligned} \Delta^{(2)}(\mathbf{q}) = & \alpha_2(\alpha_2 - \alpha_3) - \alpha_4\alpha_5 - \frac{\alpha_1^2}{4} \cos(4\pi h + 2\pi l) \\ & - \frac{\alpha_3^2}{4} \cos(2\pi h) + \frac{\alpha_4^2 - \alpha_5^2}{2} \cos(2\pi h + \pi l) \cos(\pi k). \end{aligned} \quad (3.23)$$

Man erkennt an (3.23) sehr deutlich, dass die Wechselwirkungen nicht mehr in Kombinationen auftreten, wie sie aus dem effektiven Modell bekannt sind. Vielmehr gibt es Terme, die individuelle Spin-Spin-Wechselwirkungen berücksichtigen: z.B.  $\frac{\alpha_3^2}{4} \cos(2\pi h)$ . Der Einfluss dieser Terme wird direkt sichtbar, wenn man die effektiven Wechselwirkungen zwar konstant hält, die individuellen aber variiert. Zur Identifikation der effektiven Wechselwirkungen vergleichen wir (3.16) mit (3.21) und erhalten:

$$J_{(201)}^{\text{eff}} = -\frac{1}{2}J'_{(201)} = -\frac{1}{2}J\alpha_1. \quad (3.24)$$

$$J_{(100)}^{\text{eff}} = \frac{1}{2}(2J_{(100)} - J'_{(100)}) = \frac{1}{2}J(2\alpha_2 - \alpha_3). \quad (3.25)$$

$$J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}^{\text{eff}} = \frac{1}{2}(J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} - J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}) = \frac{1}{2}J(\alpha_4 - \alpha_5). \quad (3.26)$$

Die Abbildungen 3.5 bis 3.8 zeigen einige Dispersionskurven sowohl für KCuCl<sub>3</sub> als auch für TlCuCl<sub>3</sub>, bei denen die effektiven Wechselwirkungen konstant gehalten werden. Die entsprechenden Werte sind in Tabelle 3.4 eingetragen bzw. in den Abbildungen zu finden.

Zur Ermittlung der Wechselwirkungskonstanten muss die Dispersionsrelation (3.19) an experimentell ermittelte Daten angepasst werden. Dazu gehen wir in zwei Schritten vor: Da die Koeffizienten  $\Delta_{n_h, n_k, n_l}^{p_1, \dots, p_5}$  bis zur vierten Ordnung explizit berechnet wurden, können zunächst

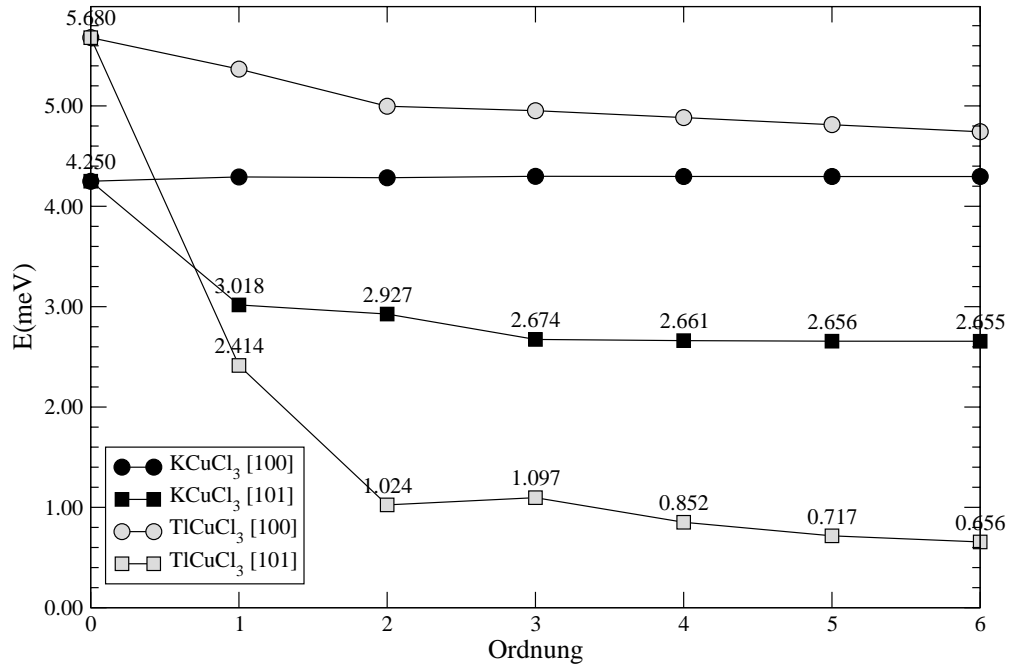


ABBILDUNG 3.9: Darstellung der Konvergenz der Clusterentwicklung. Für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  ist jeweils der Verlauf der Energie bei  $\mathbf{q} = [101]$  (Anregungslücke) und bei  $\mathbf{q} = [100]$  eingezeichnet. Die Zahlen an den Datenpunkten geben die absoluten Werte an.

die Kopplungen für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  mittels eines LSF's bestimmt werden. Anschließend werden die daraus erhaltenen Resultate verwendet, um die Dispersionsrelationen bis zur sechsten Ordnung zu berechnen. Das Problem dabei ist, dass dafür ein fester Parametersatz  $\{\alpha_i\}$  vorgegeben werden muss. Da beim Übergang von der vierten zur sechsten Ordnung Änderungen der Dispersionskurven zu erwarten sind, kann der aus der vierten Ordnung ermittelte Parametersatz nicht übernommen werden, sondern sollte modifiziert werden.

Einen Eindruck über die Veränderungen gibt Abbildung 3.9, in der für ausgewählte  $\mathbf{q}$ -Werte die Energien in Abhängigkeit von der Ordnung aufgetragen sind. Von besonderem Interesse ist die Anregungslücke, welche bei beiden Substanzen bei  $\mathbf{q} = [101]$  liegt. Man erkennt, dass die Konvergenz für  $\text{KCuCl}_3$  hervorragend ist. Bereits ab der vierten Ordnung sind die auftretenden Veränderungen marginal, sodass die aus dem LSF ermittelten Kopplungskonstanten bereits die endgültigen sind (s. Tabelle 3.4). Insbesondere ist  $J_{(100)} = 0$ , d. h. in  $\mathbf{a}$ -Richtung handelt es sich um eine alternierende Spinkette.

Für  $\text{TlCuCl}_3$  stellt sich die Situation anders dar: Die Änderungen der Anregungslücke von der vierten zur sechsten Ordnung sind deutlicher zu erkennen. Allerdings ist dies nicht überraschend, da die gegenüber  $\text{KCuCl}_3$  kleinere Anregungslücke größere Wechselwirkungen erfordert. Einen Hinweis darauf, welchen Einfluss eine Änderung der Wechselwirkungskonstanten auf den Verlauf der Dispersionskurve ausübt, zeigen die Abbildungen 3.7 und 3.8. Aufgrund dessen können die Kopplungen für eine verbesserte Anpassung verändert werden.

Jedoch betragen diese Änderungen jeweils nicht mehr als  $\pm 0.05$  (in Einheiten von  $J$ ). Das Ergebnis ist in Tabelle 3.4 eingetragen und in den Abbildungen 3.7 bzw. 3.8 mit durchgezogenen Linien dargestellt.

## 3.2 Magnetische Anregungen in PHCC

Piperaziniumhexachlorodikuprat (PHCC) ist eine metall-organische Komplexverbindung, welche in einer triklinen Struktur (Raumgruppe  $P\bar{1}$ ) kristallisiert. Die kristallographischen Daten bei Raumtemperatur sind Tabelle 3.5 zu entnehmen.

Gitterkonstante		Winkel	
$a$	7.984Å	$\alpha$	111.23°
$b$	7.054Å	$\beta$	99.95°
$c$	6.104Å	$\gamma$	81.26°

TABELLE 3.5: Kristallographische Daten für PHCC: Gitterkonstanten und Winkel bei Raumtemperatur.<sup>31</sup>

Die Struktur von PHCC besteht im Wesentlichen aus  $\text{CuCl}_3^-$ -Anionen und Piperaziniumkationen, die mittels schwacher Cl-N-Brücken miteinander verbunden sind. Jedes Kupferatom ist von fünf Chloratomen umgeben, wobei vier in etwa gleicher, kurzer Entfernung liegen. Zwei benachbarte Kupferatome werden über zwei Chlor-Brücken verknüpft, sodass in Analogie zu  $\text{KCuCl}_3$  die bekannten  $(\text{Cu}_2\text{Cl}_6)^{2-}$ -Strukturen entstehen. Diese Dimere sind entlang der  $a$ -Achse angeordnet und bilden Zickzackketten in der  $ac$ -Ebene. Abbildung 3.2 zeigt eine schematische Darstellungen dieser Struktur.

Die organischen Piperaziniumionen übernehmen zwei Aufgaben: Einerseits vermitteln sie die Wechselwirkung zwischen den Dimerketten in der  $ac$ -Ebene und sorgen andererseits für eine Entkopplung der Ebenen in der  $b$ -Richtung. Eine solche zweidimensionale Wechselwirkungsstruktur wird beispielsweise auch in  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  beobachtet.<sup>17</sup> Allerdings sind die Tripletanregungen aufgrund einer symmetrischen Frustration der Interdimerwechselwirkungen stark lokalisiert, was zu einer raschen Dispersionskurve führt.<sup>106,107</sup>

Im Gegensatz dazu ist die Dispersion der magnetischen Anregungen in PHCC, die mittels inelastischer Neutronenstreuung gemessen wurden,<sup>31</sup> in der  $ac$ -Ebene stark ausgeprägt (Bandbreite ca. 1.5 meV). Die Anregungslücke liegt bei  $\mathbf{q} = [\frac{1}{2} 0 \frac{3}{2}]$  und beträgt 1.0 meV.

### 3.2.1 Wechselwirkungsstruktur

Analog zu  $\text{KCuCl}_3$  ist die stärkste Wechselwirkung zwischen den Kupferatomen in den  $(\text{Cu}_2\text{Cl}_6)^{2-}$ -Strukturen zu erwarten, weil die sechs in nahezu einer Ebene liegenden Chlor-

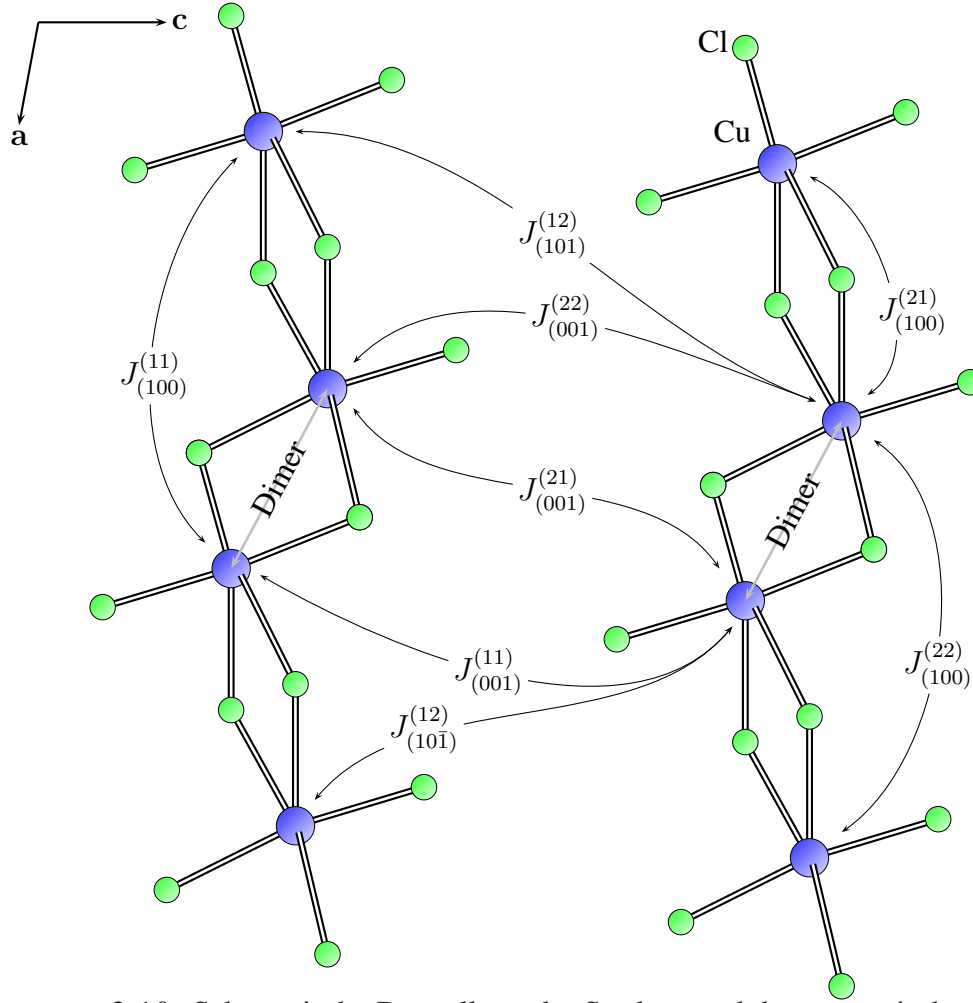


ABBILDUNG 3.10: Schematische Darstellung der Struktur und der magnetischen Wechselwirkungen in PHCC.

atome für eine hohe Elektronendichte sorgen. Die resultierende Kopplung ist positiv und somit antiferromagnetisch.

Zur Beschreibung der magnetischen Eigenschaften benutzen wir deshalb ein Spin-1/2-HEISENBERG-Modell mit isotropen Nächste-Nachbar-Wechselwirkungen:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_1 = J \sum_{\mathbf{n}} \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^1 \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^2 + \frac{1}{2} \sum_{\mathbf{n}, \mathbf{g}} h(\mathbf{n}, \mathbf{n} + \mathbf{g})$$

$$h(\mathbf{n}, \mathbf{n} + \mathbf{g}) = \sum_{i,j=1,2} J_{(m0p)}^{(ij)} \mathbf{S}_{\mathbf{n}}^i \mathbf{S}_{\mathbf{n}+\mathbf{g}}^j, \quad \mathbf{g} = m\mathbf{a} + p\mathbf{c} \neq \mathbf{0}. \quad (3.27)$$

In (3.27) schlägt sich der zweidimensionale Charakter des Modells in den Wechselwirkungskonstanten  $J_{(m0p)}^{(ij)}$  nieder, da  $\mathbf{g}$  ein in der  $ac$ -Ebene liegender Gittervektor ist. Im Gegensatz zu den Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TiCuCl}_3$  besitzt das Gitter von PHCC keine Basis, d. h. jede Einheitszelle enthält einen Dimer. Somit läuft die Summation in (3.27) über die Dimer-schwerpunkte  $\mathbf{n}$ . Die einzelnen Spins auf den Dimeren werden über  $\mathbf{n} \pm \frac{\mathbf{d}}{2}$  angesprochen, wobei  $\mathbf{d} = -0.19\mathbf{a} + 0.12\mathbf{b} + 0.51\mathbf{c}$  für eine eindeutige Bezeichnung im Folgenden von Spin 1 nach Spin 2 zeige.<sup>31</sup>

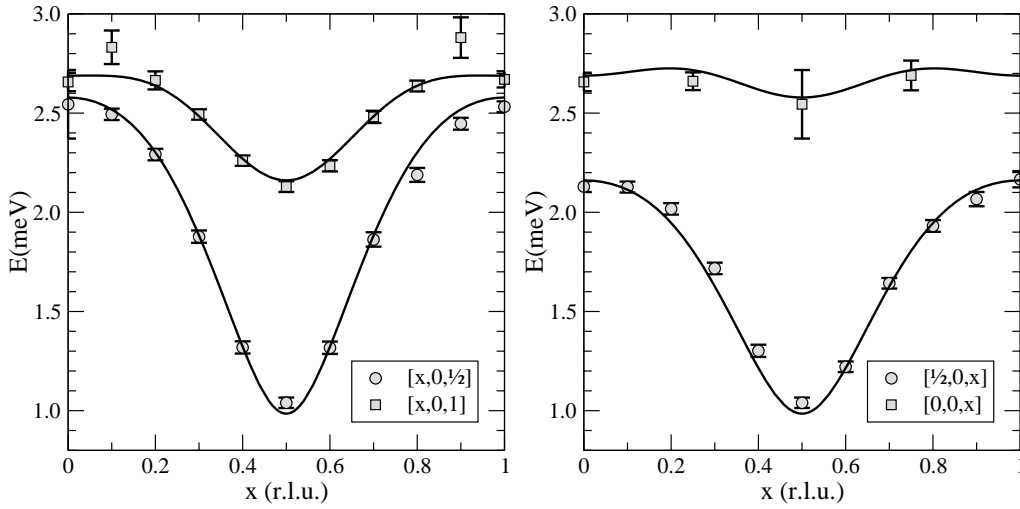


ABBILDUNG 3.11: Dispersionskurven des effektiven Modells (3.28) für PHCC. Die entsprechenden Wechselwirkungskonstanten sind in Tabelle 3.6 zu finden.

Die Wechselwirkungen  $J_{(100)}^{(ij)}$  zwischen den Dimeren entlang der  $[100]$ -Richtung werden über Cu-Cl-Cu-Austauschpfade realisiert. Im Vergleich zur Intradimerkopplung sind diese Pfade länger, so dass die beteiligten Spins schwächer miteinander koppeln. Zwischen den Ketten wird die Wechselwirkung durch die Piperazinium-Gruppe, d. h. über kurze Wasserstoffbrücken der Form N-H $\cdots$ Cl, vermittelt, wobei das Chloratom zu keiner Cu-Cl-Cu-Brücke gehört. Demnach gibt es die Wechselwirkungen  $J_{(001)}^{(ij)}$ ,  $J_{(101)}^{(ij)}$  und  $J_{(10\bar{1})}^{(ij)}$ , die in Abbildung 3.2 wiederzufinden sind.

### 3.2.2 Effektives Modell für PHCC

Zur Beschreibung der magnetischen Anregungen in PHCC wurden Versuche unternommen, diese mit Hilfe eines effektiven Modells zu beschreiben, welches eine BLOCH-artige Propagation einer Tripletanregung zu Grunde legt.<sup>31</sup> Um eine angemessene Übereinstimmung mit experimentellen Daten herstellen zu können, werden neben den oben erwähnten Wechselwirkungen weitere benötigt. Diese Wechselwirkungen können aus der Struktur der Substanz nicht motiviert werden, da sie sich über zwei Gitterlängen in a- bzw. c-Richtung erstrecken:  $J_{200}^{(ij)}$  und  $J_{002}^{(ij)}$ . Analog zu (3.15) ergibt sich der folgende Ausdruck für die Dispersion:

$$\omega(\mathbf{q}) = \sqrt{J^2 + 2J\mathcal{J}(\mathbf{q})}. \quad (3.28)$$

Hierbei ist  $\mathcal{J}(\mathbf{q})$  die FOURIER-Transformierte der Wechselwirkungskonstanten, für die wir

$$\begin{aligned} \mathcal{J}(\mathbf{q}) = & J_{(100)}^{\text{eff}} \cos(2\pi h) + J_{(001)}^{\text{eff}} \cos(2\pi l) + J_{(101)}^{\text{eff}} \cos(2\pi h + 2\pi l) \\ & + J_{(10\bar{1})}^{\text{eff}} \cos(2\pi h - 2\pi l) + J_{(200)}^{\text{eff}} \cos(4\pi h) + J_{(002)}^{\text{eff}} \cos(4\pi l) \end{aligned} \quad (3.29)$$

erhalten.

Die Anpassung der Dispersionsrelation (3.28) an experimentelle Daten aus inelastischer Neutronenstreuung ergibt die in Tabelle 3.6 eingetragenen Wechselwirkungen. Dabei wurde  $J_{(101)}^{\text{eff}} = J_{(10\bar{1})}^{\text{eff}}$  angenommen. Wie zu erwarten sind die stärksten Interdimerkopplungen entlang der **a**- bzw. **c**-Richtung zu finden. Allerdings liefern auch die übrigen, darunter insbesondere  $J_{(200)}^{\text{eff}}$  und  $J_{(002)}^{\text{eff}}$ , nicht zu vernachlässigende Dispersionsbeiträge.

$J_{(mnp)}^{\text{eff}}$	absolut in meV	relativ	$J_{(mnp)}^{\text{eff}}$	absolut in meV	relativ
$J_{(100)}^{\text{eff}}$	0.442	0.095	$J_{(10\bar{1})}^{\text{eff}}$	-0.084	-0.018
$J_{(001)}^{\text{eff}}$	0.229	0.049	$J_{(200)}^{\text{eff}}$	-0.073	-0.016
$J_{(101)}^{\text{eff}}$	-0.084	-0.018	$J_{(002)}^{\text{eff}}$	-0.047	-0.010
$J$	2.332	1.000			

TABELLE 3.6: Absolute und relative effektive Kopplungskonstanten  $J_{(mnp)}^{\text{eff}}$  für PHCC. Für die Anpassung wurde  $J_{(101)}^{\text{eff}} = J_{(10\bar{1})}^{\text{eff}}$  angenommen.

In Abbildung 3.11 sind die Resultate eingezeichnet. Innerhalb der Fehlerbalken ist eine gute Übereinstimmung mit den experimentellen Daten zu erzielen.

### 3.2.3 Mikroskopisches Modell für PHCC

Im Folgenden wollen wir ein mikroskopisches Modell etablieren, welches insbesondere ohne die Wechselwirkungen  $J_{(200)}^{(ij)}$  und  $J_{(002)}^{(ij)}$  auskommt. Dazu berücksichtigen wir die folgenden individuellen Spin-Spin-Wechselwirkungen und ermitteln die Anregungsenergien für PHCC mittels Störungstheorie. Wir messen alle Kopplungen in Einheiten der Dimerwechselwirkung  $J$  und schreiben:

$$\begin{aligned}
 J \longrightarrow 1, \quad J_{(100)}^{(12)} \longrightarrow \beta_2 &= \frac{J_{(100)}^{(12)}}{J}, & J_{(100)}^{(11)} = J_{(100)}^{(22)} \longrightarrow \beta_3 &= \frac{J_{(100)}^{(11)}}{J}, & (3.30) \\
 J_{(001)}^{(21)} \longrightarrow \beta_4 &= \frac{J_{(001)}^{(21)}}{J}, & J_{(001)}^{(11)} = J_{(001)}^{(22)} \longrightarrow \beta_6 &= \frac{J_{(001)}^{(11)}}{J}, \\
 J_{(001)}^{(12)} \longrightarrow \beta_8 &= \frac{J_{(001)}^{(12)}}{J}, & J_{(101)}^{(12)} \longrightarrow \beta_7 &= \frac{J_{(101)}^{(12)}}{J}, \\
 J_{(10\bar{1})}^{(12)} \longrightarrow \beta_5 &= \frac{J_{(10\bar{1})}^{(12)}}{J}.
 \end{aligned}$$

Die vollständig Dispersionsrelation ist eine Funktion in den Parametern  $\beta_2, \dots, \beta_8$  und besitzt die Form:

$$\omega(\mathbf{q}) = 1 + \sum_{\substack{p_2 \geq 0 \dots p_8 \geq 0 \\ (n_h, n_l)}} C_{n_h, n_l}^{p_2, \dots, p_8} \prod_{j=2}^8 \beta_j^{p_j} \cos(2\pi n_h h + 2\pi n_l l). \quad (3.31)$$

Richtung ( $nmp$ )	Spinpaar ( $ij$ )	absolut in meV	relativ	effektiv
(100)	(11), (22)	0.74	0.36	} 0.250
	(12), (21)	0.23	0.11	
(001)	(11), (22)	0.37	0.18	} 0.135
	(12)	0.18	0.09	
(101)	(12)	0.10	0.05	-0.025
(10 $\bar{1}$ )	(12)	0.10	0.05	-0.025
(000)		2.05	1.00	-

TABELLE 3.7: Absolute und relative Kopplungskonstanten  $J_{(mnp)}^{(ij)}$  für PHCC. Zum Vergleich sind die resultierenden effektiven Wechselwirkungen gemäß (3.36) angegeben.

Um Vergleichbarkeit mit dem effektiven Modell aus Abschnitt 3.2.2 herzustellen, schreiben wir (3.31) folgendermaßen:

$$\omega(\mathbf{q}) = \sqrt{1 + 2\omega^{(1)}(\mathbf{q})} + \Delta(\mathbf{q}), \quad (3.32)$$

wobei

$$\begin{aligned} \omega^{(1)}(\mathbf{q}) = & \frac{1}{2}(2\beta_6 - \beta_4 - \beta_8) \cos(2\pi h) + \frac{1}{2}(2\beta_3 - \beta_2) \cos(2\pi l) \\ & - \frac{1}{2}\beta_5 \cos(2\pi h - 2\pi l) - \frac{1}{2}\beta_7 \cos(2\pi h + 2\pi l) \end{aligned} \quad (3.33)$$

die Entwicklung der Anregungsenergie in erster Ordnung ist. Daraus ergibt sich für die Korrekturterme:

$$\Delta(\mathbf{q}) = \sum_{\substack{p_2 \geq 0 \dots p_8 \geq 0 \\ (n_h, n_l)}} \Delta_{n_h, n_l}^{p_2, \dots, p_8} \prod_{j=2}^8 \beta_j^{p_j} \cos(2\pi n_h h + 2\pi n_l l). \quad (3.34)$$

Die Koeffizienten  $\Delta_{n_h, n_l}^{p_2, \dots, p_8}$  konnten mit Hilfe der in Abschnitt 1.5.1 beschriebenen Methode bis zur dritten Ordnung, d. h.  $\sum_{i=2}^8 p_i \leq 3$ , ermittelt werden. Aufgrund der hohen Anzahl von Parametern erscheint die Berechnung weiterer Ordnungen als nicht sinnvoll. In zweiter Ordnung finden wir:

$$\begin{aligned} \Delta^{(2)}(\mathbf{q}) = & \beta_3(\beta_3 - \beta_2) + \beta_6(\beta_6 - \beta_4 - \beta_8) - \frac{1}{4}(\beta_4 - \beta_8)^2 \cos(2\pi h) \\ & - \frac{1}{4}\beta_2^2 \cos(2\pi l) - \frac{1}{4}\beta_5^2 \cos(2\pi h - 2\pi l) - \frac{1}{4}\beta_7^2 \cos(2\pi h + 2\pi l). \end{aligned} \quad (3.35)$$

Ausgangspunkt für die weitere Analyse ist die Anpassung der vollständigen Dispersion (3.31) in dritter Ordnung an experimentelle Daten.



Zunächst vernachlässigen wir die Korrekturterme  $\Delta(\mathbf{q})$  in (3.32). Damit erhalten wir ein zum effektiven ähnliches Modell, wenn wir die Kopplungskonstanten in der folgenden Weise identifizieren:

$$\begin{aligned} J_{(100)}^{\text{eff}} &= \frac{1}{2}(2\beta_6 - \beta_4 - \beta_8), & J_{(10\bar{1})}^{\text{eff}} &= -\frac{1}{2}\beta_5, \\ J_{(001)}^{\text{eff}} &= \frac{1}{2}(2\beta_3 - \beta_2), & J_{(101)}^{\text{eff}} &= -\frac{1}{2}\beta_7, \\ J_{(200)}^{\text{eff}} &= 0, & J_{(002)}^{\text{eff}} &= 0. \end{aligned} \quad (3.36)$$

Um entscheiden zu können, inwieweit höhere Terme einer Potenzreihenentwicklung der Wurzel die Dispersion beeinflussen, stellen wir die sechste Ordnung der vollständigen Wurzel gegenüber. Abbildung 3.12 zeigt diesen Vergleich: Für die in Tabelle 3.7 angegebenen Kopplungen sind keine signifikanten Unterschiede zu erkennen. Da die Clusterentwicklung die Wurzel bis zu einer bestimmten Ordnung (hier bis zur sechsten) reproduziert, können größere Veränderungen der Dispersionskurve nur von  $\Delta(\mathbf{q})$  herrühren. Die Einbeziehung

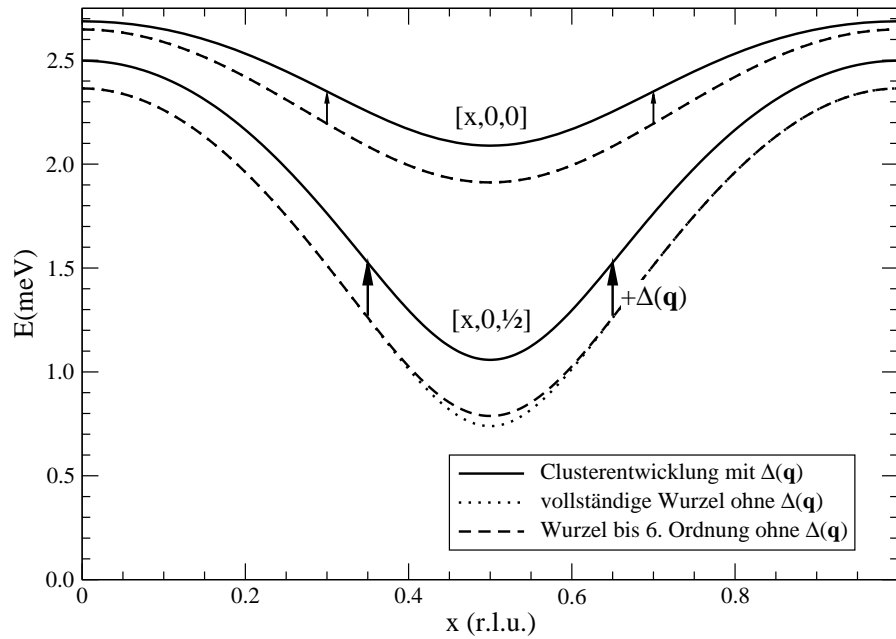


ABBILDUNG 3.12: Einfluss der Korrekturen  $\Delta(\mathbf{q})$  auf die Dispersionskurven. Dargestellt ist die Potenzreihenentwicklung der Wurzel in (3.32) bis zur sechsten Ordnung im Vergleich zur vollständigen Wurzel. Die Hinzunahme der Korrekturen führt im Wesentlichen zu einer Verschiebung.

der Korrekturen  $\Delta(\mathbf{q})$  führt im Wesentlichen zu einer Verschiebung der Dispersionskurve zu höheren Energiewerten. Wie Abbildung 3.12 zeigt wird der prinzipielle Verlauf nicht berührt. Damit zeigt sich, dass die Korrekturterme für eine angemessene Übereinstimmung mit den experimentellen Daten unbedingt erforderlich sind. Offenbar können diese im effektiven Modell durch die Hinzunahme von  $J_{(200)}^{\text{eff}}$  und  $J_{(002)}^{\text{eff}}$  kompensiert werden, sodass die Datenpunkte ähnlich gut reproduziert werden.

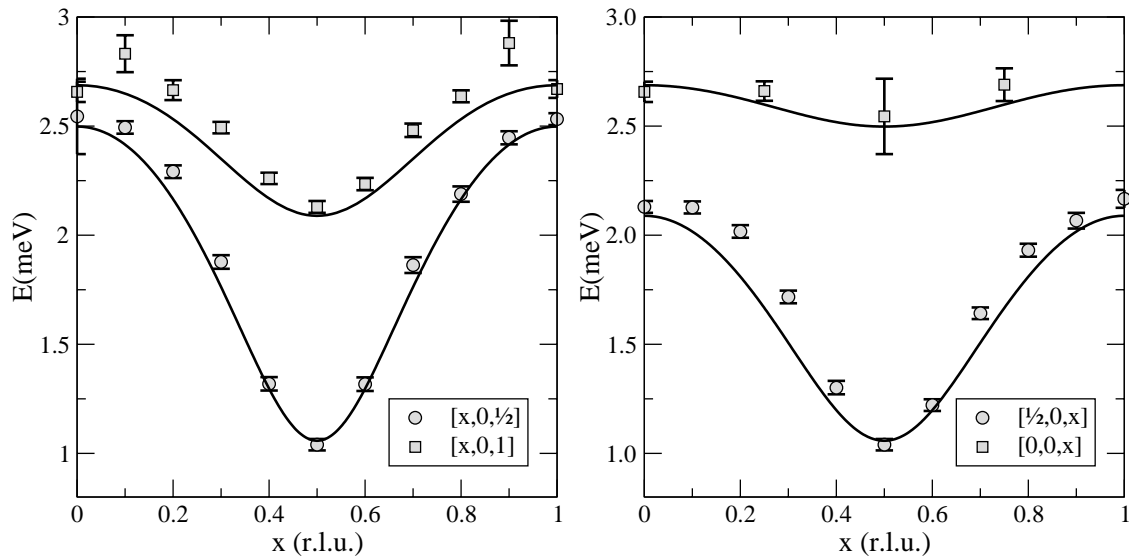


ABBILDUNG 3.13: Mit dem mikroskopischen Modell berechneten Dispersionskurven für PHCC in sechster Ordnung. Die verwendeten Wechselwirkungen sind Tabelle 3.7 zu entnehmen.

Eine Untersuchung der Anregungsenergien einzelner Punkte in Abhängigkeit von der Ordnung zeigt, dass ab der vierten Ordnung keine größeren Veränderungen auftreten. Somit kann mit den in Tabelle 3.7 angeführten Wechselwirkungen die bestmögliche Anpassung des Modells an die experimentellen Daten erzielt werden. Die Abbildung 3.13 zeigt einige Dispersionskurven in sechster Ordnung.

### 3.3 Der dynamische Strukturfaktor

Grundlage der Untersuchungen in den vorangegangenen Abschnitten waren Messungen von Anregungsenergien mittels inelastischer Neutronenstreuung, sodass die Kopplungskonstanten des mikroskopischen Modells durch Vergleich mit den experimentellen Daten ermittelt werden konnten. Inelastische Neutronenstreuung misst direkt den Übergang vom Singlett-Grundzustand in den Triplet-Anregungszustand, sodass der dynamische Strukturfaktor von besonderem experimentellem Interesse ist, da er proportional zum differentiellen Streuquerschnitt ist (s. Abschnitt 1.4).

Im Folgenden wollen wir den dynamischen Strukturfaktor für die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  bzw.  $\text{TlCuCl}_3$  störungstheoretisch berechnen. Wir beschränken uns hierbei auf den Singlett-Triplett-Übergang. Da eine dimerbasierte Clusterentwicklung hierfür nicht geeignet ist (s. Anhang B.2), wollen wir die Entwicklung bis zur zweiten Ordnung explizit durchführen.

Grundsätzlich gibt es vier unterschiedliche Richtungen  $\mathbf{g}_k$ , in denen die Wechselwirkungen in periodischer Abfolge zu finden sind (s. Tabelle 3.2). Für eine übersichtlichere Darstellung führen wir deshalb die folgenden Abkürzungen ein, die bestimmte Kombinationen der

Wechselwirkungen zusammenfassen:

$$\begin{aligned}
\beta_1 &= \frac{1}{4}(2J_{(100)} - J'_{(100)}), & \varepsilon_1 &= \frac{1}{4}(2J_{(100)} + J'_{(100)}), & \gamma_1 &= \frac{1}{4}J'_{(100)}, \\
\beta_2 &= -\frac{1}{4}J'_{(201)}, & \varepsilon_2 &= \frac{1}{4}J'_{(201)}, & \gamma_2 &= -\frac{1}{4}J'_{(201)}, \\
\beta_3 &= \frac{1}{4}(J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} - J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}), & \varepsilon_3 &= \frac{1}{4}(J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} + J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}), & \gamma_3^\pm &= \frac{1}{4}(\pm J_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})} + J'_{(1\frac{1}{2}\frac{1}{2})}), \\
\beta_4 &= \beta_3, & \varepsilon_4 &= \varepsilon_3, & \gamma_4^\pm &= \gamma_3^\pm.
\end{aligned} \tag{3.37}$$

Für die Berechnung von Matrixelementen benötigen wir zunächst die Entwicklung der Grundzustandswellenfunktion. Der Eigenzustand des ungestörten HAMILTON-Operators  $\mathcal{H}_0$  ist ein direktes Produkt von Dimer-Spin-Singletts mit  $S = 0$ , den wir wie folgt schreiben:

$$|G\rangle^{(0)} = \prod_{\mathbf{n}} |s_{\mathbf{n}+\mathbf{R}_1}\rangle |s_{\mathbf{n}+\mathbf{R}_2}\rangle = |S\rangle, \tag{3.38}$$

wobei  $\mathbf{n}$  Gittervektoren sind und das Produkt über alle Einheitszellen läuft. Die Vektoren  $\mathbf{R}_i$  beschreiben die Lage der Dimere innerhalb der Einheitszelle.

Die Anwendung des Störanteils  $\mathcal{H}_1$  auf  $|S\rangle$  liefert Zustände mit zwei Tripletanregungen auf benachbarten Dimeren:

$$\mathcal{H}_1|S\rangle = -\sqrt{3} \sum_{i=1}^4 \sum_{k=1,2} \sum_{\mathbf{n}} \beta_i |\mathbf{n}+\mathbf{R}_k, \mathbf{n}+\mathbf{R}_k+\mathbf{g}_i\rangle^{(0,0)}, \tag{3.39}$$

wobei

$$|\mathbf{r}, \mathbf{r}'\rangle^{(0,0)} = \frac{1}{\sqrt{3}} (|\mathbf{r}\rangle^{(1)} |\mathbf{r}'\rangle^{(-1)} - |\mathbf{r}\rangle^{(0)} |\mathbf{r}'\rangle^{(0)} + |\mathbf{r}\rangle^{(-1)} |\mathbf{r}'\rangle^{(1)}) \tag{3.40}$$

ein normierter Zustand mit  $(S_{\text{tot}}, S_{\text{tot}}^z) = (0, 0)$  ist, bei dem sich zwei Triplet-Anregungen (die hochgestellten Zahlen bezeichnen die  $S^z$ -Komponente des jeweiligen Triplets) auf den Dimeren bei  $\mathbf{r}$  und  $\mathbf{r}'$  befinden. Alle übrigen Dimere sind mit Singletts belegt.

Während der systematischen Entwicklung der Grundzustandsenergie bis zur zweiten Ordnung ergibt ein zweimaliges Anwenden von  $\mathcal{H}_1$  auf  $|S\rangle$  Zustände, welche drei oder vier Triplet-Anregungen beinhalten. Allerdings tragen diese Zustände bei der Berechnung des dynamischen Strukturfaktors erst in dritter Ordnung bei, sodass wir sie im Folgenden nicht weiter betrachten. Wir erhalten somit in zweiter Ordnung:

$$\begin{aligned}
|G\rangle^{(2)} &= \alpha_0 |S\rangle + \frac{\sqrt{3}}{2} \sum_{i=1}^4 \sum_{k=1}^2 \sum_{\mathbf{n}} \beta_i (1 + \varepsilon_i) |\mathbf{n}+\mathbf{R}_k, \mathbf{n}+\mathbf{R}_k+\mathbf{g}_i\rangle^{(0,0)} \\
&\quad - \frac{\sqrt{3}}{2} \sum_{i,j=1}^4 \sum_{k=1}^2 \sum_{\mathbf{n}} \beta_i \beta_j |\mathbf{n}+\mathbf{R}_k, \mathbf{n}+\mathbf{R}_k+\mathbf{g}_i+\mathbf{g}_j\rangle^{(0,0)} \\
&\quad - \frac{\sqrt{3}}{2} \sum_{\substack{i,j=1 \\ i \neq j}}^4 \sum_{k=1}^2 \sum_{\mathbf{n}} \beta_i \beta_j |\mathbf{n}+\mathbf{R}_k, \mathbf{n}+\mathbf{R}_k+\mathbf{g}_i-\mathbf{g}_j\rangle^{(0,0)} \\
&\quad + \text{Zustände mit drei oder vier Triplet-Anregungen,}
\end{aligned} \tag{3.41}$$

wobei  $\alpha_0$  dafür sorgt, dass der Zustand bis einschließlich zweiter Ordnung normiert ist, d. h.

$$\alpha_0 = 1 - \frac{3}{4}N \sum_{i=1}^4 \beta_i^2. \quad (3.42)$$

Hier bezeichnet  $N$  die Anzahl der Einheitszellen ( $2N$  ist die Anzahl der Dimere). In (3.41) sind einige Zustände doppelt aufgeführt, die durch Vertauschen von  $i$  und  $j$  ineinander übergehen.

Als nächsten Schritt müssen wir die Wellenfunktion der Triplet-Anregungen entwickeln. Hierfür verwenden wir in nullter Ordnung einen translationsinvarianten Ansatz in der folgenden Form:

$$|\mathbf{q}\rangle^{(0)} = \frac{1}{\sqrt{2N}} \sum_{k=1}^2 \sum_{\mathbf{n}} c_k e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_k)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_k\rangle^{(0)}. \quad (3.43)$$

Da die kristallographische Einheitszelle zwei Dimere enthält, besitzt das Gitter eine Basis, sodass sich die Translationsinvarianz nicht von Dimer zu Dimer, sondern von Zelle zu Zelle erstreckt. Deshalb wurden die Koeffizienten  $c_k$  eingeführt, die so bestimmt werden, dass die Einheiten  $c_1|\mathbf{n} + \mathbf{R}_1\rangle + c_2|\mathbf{n} + \mathbf{R}_2\rangle$  im Raum der Ein-Triplett-Anregungen diagonal sind. Wir erhalten zwei Lösungen:

$$(c_1^+, c_2^+) = (1, 1) \quad \text{oder} \quad (c_1^-, c_2^-) = (1, -1). \quad (3.44)$$

Formal erhält man den Ansatz (3.43) mit den Koeffizienten  $c_i^-$  aus jenen mit  $c_i^+$  indem man entweder  $\mathbf{q}_b \mathbf{b} \rightarrow \mathbf{q}_b \mathbf{b} + 2\pi$  oder  $\mathbf{q}_c \mathbf{c} \rightarrow \mathbf{q}_c \mathbf{c} + 2\pi$  setzt, was gleichbedeutend mit einem Wechsel von der ersten in die erweiterte kristallographische BRILLOUIN-Zone ist. Da wir gemäß (3.7) mit einer erweiterten Darstellung arbeiten, können wir dem Ansatz mit  $c_i^+$  die Dispersionsrelation  $\omega^+(\mathbf{q})$  und dem mit  $c_i^-$  die Dispersionsrelation  $\omega^-(\mathbf{q})$  zuordnen. Schließlich bemerken wir, dass somit  $\omega^-(\mathbf{q}) = \omega^+(\mathbf{q} + \mathbf{b}^*)$  bzw.  $\omega^-(\mathbf{q}) = \omega^+(\mathbf{q} + \mathbf{c}^*)$  ist.

Für die Berechnung der Korrekturen in erster Ordnung müssen wir den Störanteil  $\mathcal{H}_1$  auf diesen Zustand anwenden. Dabei entstehen sowohl Zustände mit zwei als auch mit drei Triplet-Anregungen. Insbesondere die Zwei-Triplett-Anregungen  $|\mathbf{r}, \mathbf{r}'\rangle^{(1,0)}$  mit  $(S_{\text{tot}}, S_{\text{tot}}^z) = (1, 0)$  weisen aufgrund der alternierenden Wechselwirkungsstruktur in den Richtungen  $\mathbf{g}_3$  und  $\mathbf{g}_4$  eine komplizierte Zusammensetzung auf.

Eine explizite Berechnung der zweiten Ordnung erweist sich als nicht notwendig, da die daraus entstehenden Korrekturen erst in dritter Ordnung zum Strukturfaktor beitragen. Dennoch muss die Wellenfunktion bis einschließlich zweiter Ordnung normiert werden.

Wir erhalten also für die Entwicklung der Anregungswellenfunktion, die alle für die Berech-

nung des Strukturfaktors relevanten Korrekturen enthält, den folgenden Ausdruck:

$$\begin{aligned}
|\mathbf{q}\rangle_{\pm}^{(2)} &= \frac{\alpha_1}{\sqrt{2N}} \sum_{k=1}^2 c_k^{\pm} \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_k)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_k\rangle^0 \\
&- \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{i=1}^2 \sum_{k=1}^2 c_k^{\pm} \gamma_i (1 + e^{-i\mathbf{q}\mathbf{g}_i}) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_k)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_k, \mathbf{n} + \mathbf{R}_k + \mathbf{g}_i\rangle^{(1,0)} \\
&- \frac{1}{\sqrt{N}} c_1^{\pm} (\gamma_3^- + \gamma_3^+ e^{-i\mathbf{q}\mathbf{g}_3}) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_1)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_1, \mathbf{n} + \mathbf{R}_1 + \mathbf{g}_3\rangle^{(1,0)} \\
&- \frac{1}{\sqrt{N}} c_1^{\pm} (\gamma_4^+ + \gamma_4^- e^{-i\mathbf{q}\mathbf{g}_4}) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_1)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_1, \mathbf{n} + \mathbf{R}_1 + \mathbf{g}_4\rangle^{(1,0)} \\
&- \frac{1}{\sqrt{N}} c_2^{\pm} (\gamma_3^+ + \gamma_3^- e^{-i\mathbf{q}\mathbf{g}_3}) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_2)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_2, \mathbf{n} + \mathbf{R}_2 + \mathbf{g}_3\rangle^{(1,0)} \\
&- \frac{1}{\sqrt{N}} c_2^{\pm} (\gamma_4^- + \gamma_4^+ e^{-i\mathbf{q}\mathbf{g}_4}) \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_2)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_2, \mathbf{n} + \mathbf{R}_2 + \mathbf{g}_4\rangle^{(1,0)} \\
&+ \frac{1}{2} \sqrt{\frac{3}{2N}} \sum_{i=1}^4 \sum_{j,k=1}^2 c_k^{\pm} \beta_i \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_k)} |\mathbf{n} + \mathbf{R}_k\rangle^0 |\mathbf{n} + \mathbf{R}_j, \mathbf{n} + \mathbf{R}_j + \mathbf{g}_i\rangle^{(0,0)} \\
&+ \text{Zustände, die zur Entwicklung des Strukturfaktors in zweiter} \\
&\quad \text{Ordnung **nicht** beitragen.}
\end{aligned} \tag{3.45}$$

Der Strich an der Summe deutet an, dass nur über Zustände summiert wird, bei denen keine zwei Triplets denselben Dimer belegen. Der Faktor  $\alpha_1$  wird so gewählt, dass  $|\mathbf{q}\rangle^{(2)}$  bis einschließlich zweiter Ordnung normiert ist:

$$\begin{aligned}
\alpha_1 &= 1 - \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^4 \beta_i \beta_j \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i) \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_j) - \frac{3}{4} \left(N - \frac{4}{3}\right) \sum_{i=1}^4 \beta_i^2 \\
&- 2 \sum_{i=1}^2 \gamma_i^2 [1 + \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i)] - \sum_{i=3}^4 [\gamma_i^{+2} + \gamma_i^{-2} + 2\gamma_i^+ \gamma_i^- \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i)].
\end{aligned} \tag{3.46}$$

Schließlich benötigen wir die FOURIER-Transformierte des Spinoperators. Da das betrachtete System rotationsinvariant im Spinraum ist, beschränken wir die folgenden Untersuchungen auf die  $z$ -Komponente:

$$S^z(\mathbf{q}) = \frac{1}{\sqrt{2N}} \sum_{\mathbf{n}} \sum_{k=1}^2 e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{n}+\mathbf{R}_k)} \left[ e^{-i\frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_k}{2}} S^z(\mathbf{n} + \mathbf{R}_k + \frac{\mathbf{d}_k}{2}) + e^{i\frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_k}{2}} S^z(\mathbf{n} + \mathbf{R}_k - \frac{\mathbf{d}_k}{2}) \right]. \tag{3.47}$$

Damit haben wir die wesentlichen Elemente zur Berechnung des dynamischen Strukturfaktors in der Hand. Die konsistente Berücksichtigung aller Terme bis einschließlich zweiter

Ordnung ergibt:

$$\begin{aligned}
I_{\pm}^{zz}(\mathbf{q}) &= \left| \langle \pm | S^z(\mathbf{q}) | G \rangle^{(2)} \right|^2 \\
&= \frac{1}{4} \left( \sin \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_1}{2} \pm \sin \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_2}{2} \right)^2 \left( 1 - \Omega(\mathbf{q}) + \Omega(\mathbf{q})^2 - \Sigma_1(\mathbf{q}) - \Sigma_2(\mathbf{q}) \right) \\
&\quad + \frac{1}{2} \left( \sin \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_1}{2} \pm \sin \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_2}{2} \right) \left( \Delta_1^{\pm}(\mathbf{q}) \cos \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_1}{2} + \Delta_2^{\pm}(\mathbf{q}) \cos \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_2}{2} \right)
\end{aligned} \tag{3.48}$$

mit

$$\Omega(\mathbf{q}) = 2 \sum_{i=1}^4 \beta_i \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i), \tag{3.49}$$

$$\Sigma_1(\mathbf{q}) = \sum_{i=1}^4 \left[ 3\beta_i^2 + 2\beta_i \varepsilon_i \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i) - \beta_i^2 \cos(2\mathbf{q}\mathbf{g}_i) \right], \tag{3.50}$$

$$\Sigma_2(\mathbf{q}) = 4 \sum_{i=1}^2 \gamma_i^2 [1 + \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i)] - 2 \sum_{i=3}^4 \left[ \gamma_i^{+2} + \gamma_i^{-2} + 2\gamma_i^+ \gamma_i^- \cos(\mathbf{q}\mathbf{g}_i) \right], \tag{3.51}$$

$$\Delta_1^+(\mathbf{q}) = 2 \sum_{i=1}^2 \beta_i \gamma_i \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_i) + 2\beta_3 \gamma_3^+ \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_3) + 2\beta_4 \gamma_4^- \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_4), \tag{3.52}$$

$$\Delta_2^+(\mathbf{q}) = 2 \sum_{i=1}^2 \beta_i \gamma_i \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_i) + 2\beta_3 \gamma_3^- \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_3) + 2\beta_4 \gamma_4^+ \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_4), \tag{3.53}$$

$$\Delta_1^-(\mathbf{q}) = \Delta_2^-(\mathbf{q}) = 2 \sum_{i=1}^2 \beta_i \gamma_i \sin(\mathbf{q}\mathbf{g}_i). \tag{3.54}$$

Der dynamische Strukturfaktor enthält Beiträge von beiden Moden  $\omega^+(\mathbf{q})$  und  $\omega^-(\mathbf{q})$  und setzt sich in der folgenden Weise zusammen:

$$S_{0 \rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega) = I_+^{zz}(\mathbf{q}) \delta(\omega - \omega^+(\mathbf{q})) + I_-^{zz}(\mathbf{q}) \delta(\omega - \omega^-(\mathbf{q})). \tag{3.55}$$

Im Allgemeinen können somit beide Anregungswege mittels inelastischer Neutronenstreuung gemessen werden. Allerdings gibt es Streuanordnungen, die nur für eine Mode sensitiv sind, falls  $\mathbf{q}$

1. in der  $\mathbf{a}^*\mathbf{c}^*$ -Ebene liegt: Dann ist  $I_-^{zz} = 0$ , und nur der Zweig  $\omega^+(\mathbf{q})$  ist messbar.
2. parallel zur  $\mathbf{b}^*$ -Achse ist: Hier ist  $I_+^{zz} = 0$ , sodass nur  $\omega^-(\mathbf{q})$  sichtbar ist.

Vernachlässigen wir in (3.48) die Terme  $\Sigma_i(\mathbf{q})$  und  $\Delta_i^{\pm}(\mathbf{q})$ , so ist das Resultat bis zur vorliegenden Ordnung konsistent mit RPA-Rechnungen, welche  $I_{\pm}^{zz}(\mathbf{q}) \propto 1/\omega^{\pm}(\mathbf{q})$  ergeben.<sup>108</sup>

Die Störungsentwicklung liefert jedoch weitere Korrekturen. Neben  $\Sigma_i(\mathbf{q})$  gibt es insbesondere die Terme  $\propto \sin \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_i}{2} \cos \frac{\mathbf{q}\mathbf{d}_j}{2}$ , die in Analogie zur den Übergangsstärken für den HAFM

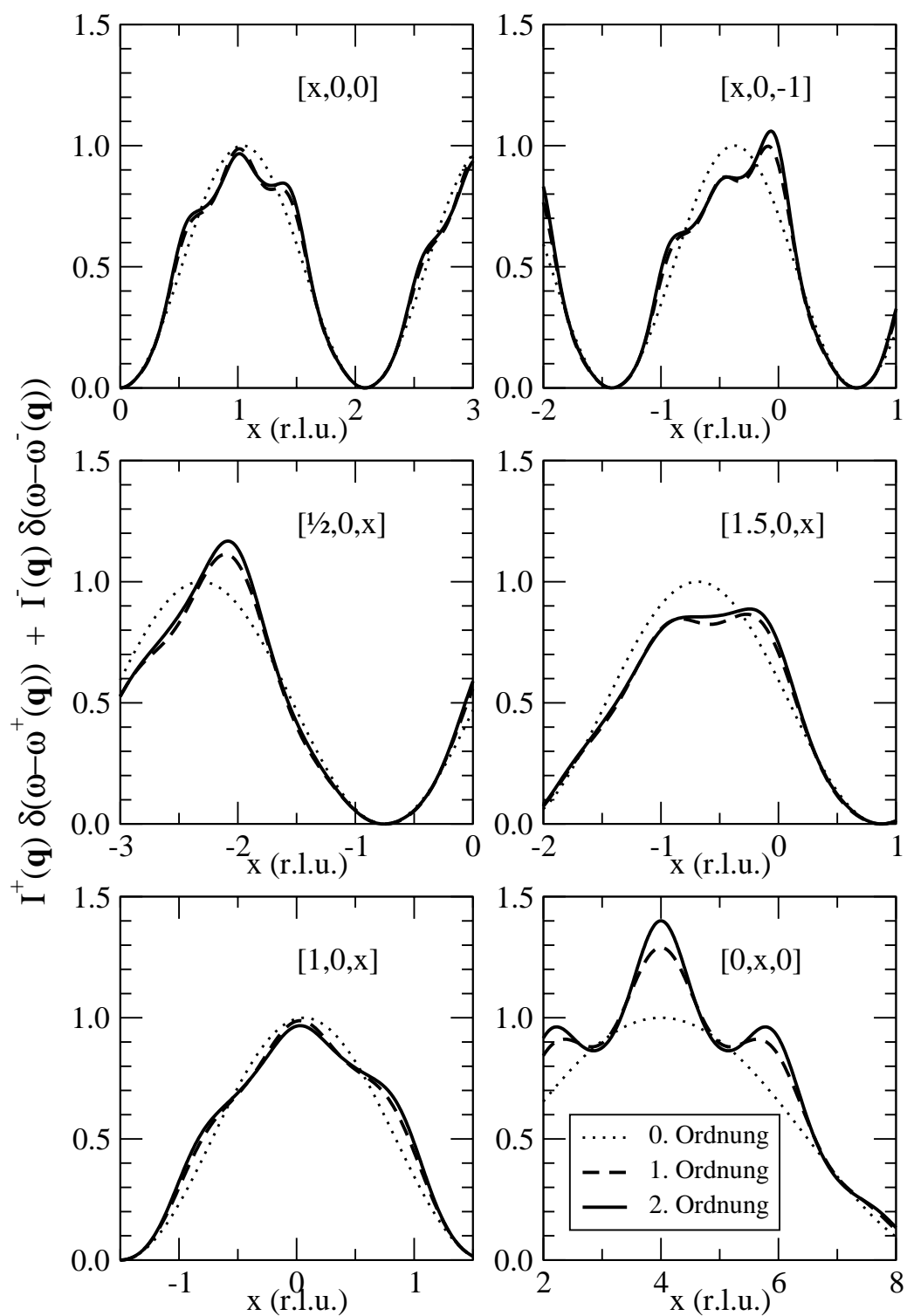


ABBILDUNG 3.14: Strukturfaktor für  $\text{KCuCl}_3$ , berechnet mit den Kopplungskonstanten aus Tabelle 3.4

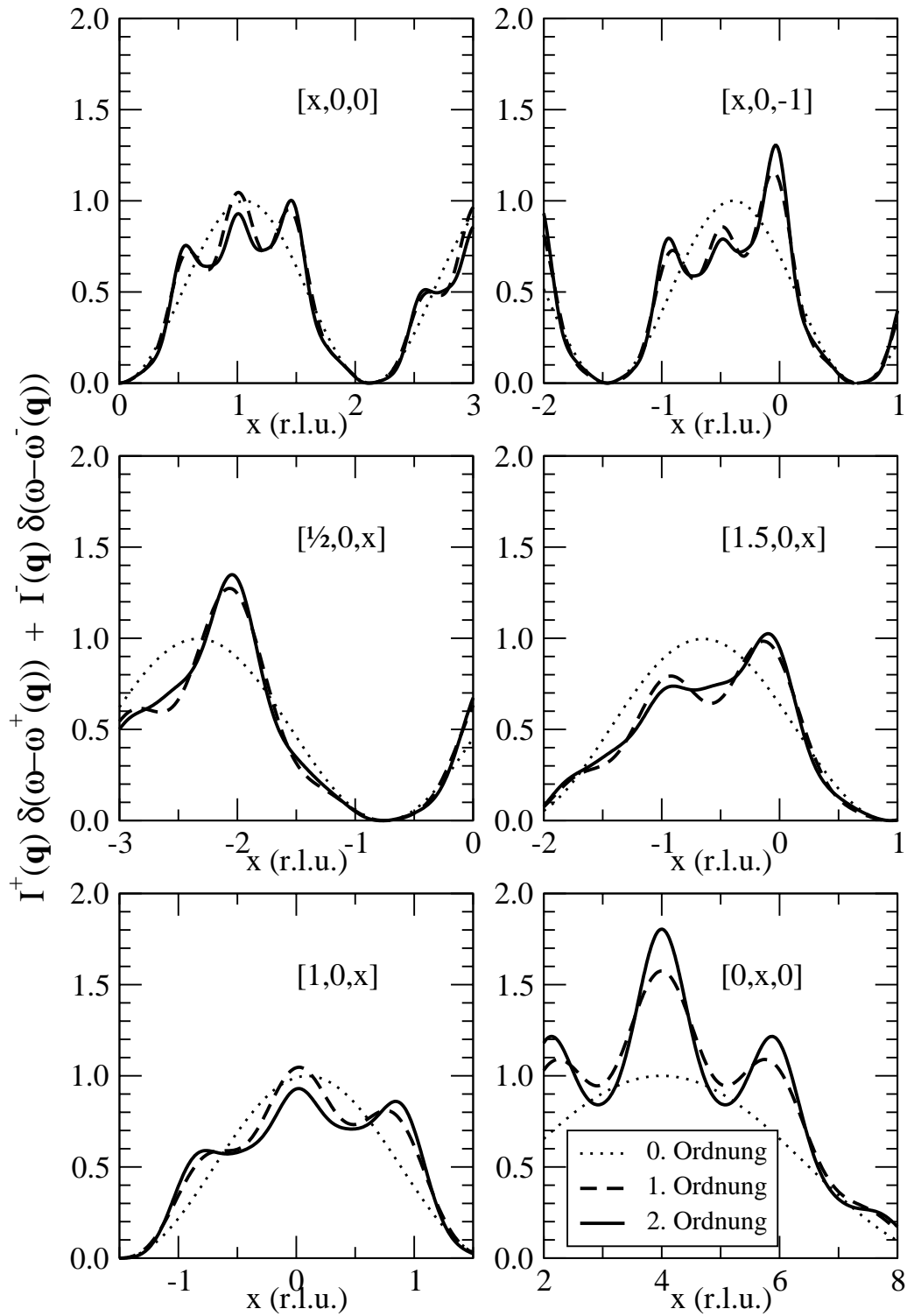


ABBILDUNG 3.15: Strukturfaktor für  $\text{TiCuCl}_3$ , berechnet mit den Kopplungskonstanten aus Tabelle 3.4



(s. Abschnitt 2.2.3) aufgrund der vollständigen Entwicklung der  $S = 1$ -Anregungswellenfunktion auftreten. Bemerkenswert ist, dass diese Korrekturen davon abhängen, welcher Ansatz in (3.43) gewählt wurde. Während  $\Delta_i^+(\mathbf{q})$  von allen berücksichtigten Wechselwirkungen abhängig ist, enthält  $\Delta_i^-(\mathbf{q})$  nur die Kopplung zwischen gleich orientierten Dimeren. Offenbar führt der Ansatz mit  $c_i^-$  in (3.43) zu destruktiver Interferenz zwischen den unterschiedlich orientierten Dimeren.

In den Abbildungen 3.14 und 3.15 stellen wir den Strukturfaktor für die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$  bzw.  $\text{TlCuCl}_3$  dar. Hierbei wurden die Kopplungen aus Tabelle 3.4 verwendet. Da die nullte Ordnung unabhängig von den Wechselwirkungskonstanten ist, sind die größten Unterschiede beim Übergang zur ersten Ordnung zu erkennen. Die Hinzunahme der zweiten Ordnung verändert zwar nicht den prinzipiellen Verlauf der Kurven, allerdings sind die Korrekturen deutlich zu erkennen und sollten nicht vernachlässigt werden.



## Zusammenfassung und Ausblick

Gegenstand der vorliegenden Arbeit sind dimerisierte  $S = 1/2$  Spinsysteme in einer, zwei und drei Dimensionen. Zur Untersuchung dieser Systeme wurde überwiegend die Clusterentwicklung verwendet. Mit dieser Methode war es möglich, die Grundzustandsenergie sowie die niederenergetischen Anregungen verschiedener Spinmodelle mit Hilfe von Störungsreihen zu berechnen. Außerdem konnten Singlett-Triplett-Übergangsstärken explizit berechnet werden.

Um die algorithmische Umsetzung transparenter erscheinen zu lassen, wurde zunächst auf die wesentlichen Begrifflichkeiten und Theoreme eingegangen, die im Zusammenhang mit der Clusterentwicklung auftraten. Besonderer Wert wurde dabei auf die Darstellung und topologische Charakterisierung von Graphen gelegt, da dies eine wesentliche Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Clusterentwicklung auf höherdimensionale Systeme ist. Es ließ sich zeigen, dass diese Methode prinzipiell zur Berechnung des dynamischen Strukturfaktors verwendet werden kann, solange das untersuchte System nur einen Basisknoten besitzt. Hingegen ist eine dimerbasierte Clusterentwicklung auf Substanzen, deren kristallographische Einheitszelle mehr als einen Dimer enthält, nicht anwendbar.

Zur Überprüfung der Validität der berechneten Störungsreihen wurden zuerst verschiedene eindimensionale Systeme behandelt. Dabei ließen sich sowohl die Grundzustandsenergie als auch die Dispersion des HEISENBERG-Antiferromagneten (HAFM) bis zur 14. Ordnung entwickeln. Prinzipiell ist die Clusterentwicklung nicht geeignet den HAFM zu untersuchen, da dieser langreichweitige räumliche Korrelationen besitzt. Dennoch war die Übereinstimmung mit exakten Resultaten wie beispielweise dem BETHE-Ansatz sehr gut.

Ebenso konnte das aus feldtheoretischen Abbildungen (z. B. Bosonisierung) bekannte kritische Verhalten der alternierenden  $S = 1/2$  Spinkette näherungsweise reproduziert werden. Die auftretenden Abweichungen vom feldtheoretischen Resultat können auf die folgenden Gründe zurückgeführt werden: Auf der einen Seite kann die Reihenentwicklung eventuell vorhandene logarithmische Korrekturen nicht korrekt wiedergeben. Auf der anderen Seite werden Ungenauigkeiten beim Rechnen mit Fließkommazahlen dafür verantwortlich gemacht, das lineare und quadratische Beträge in der Reihenentwicklung zu stark gewichtet werden.

Die Untersuchung des HEISENBERG-Antiferromagneten wurde mit der Berechnung des dynamischen Strukturfaktors fortgeführt. Hierbei waren ausschließlich die Singlett-Triplett-Übergangsstärken  $S_{0 \rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega_1)$  von Interesse, da diese den Übergang vom Grundzustand ( $S = 0$ ) in den ersten angeregten Zustand ( $S = 1$ ) charakterisieren. Eine systematische Berechnung von  $S_{0 \rightarrow 1}^{zz}(\mathbf{q}, \omega_1)$  bis zur 10. Ordnung ergab, dass sich dieser in drei Anteile zerlegen lässt: Auf der einen Seite treten Terme  $\propto (1 - \cos(2\mathbf{q}\mathbf{d}))$  auf, die typisch für dimerisierte

Systeme sind. Auf der anderen Seite konnten erstmalig auch Terme  $\propto \sin(2q\mathbf{d})$  nachgewiesen werden, die schon ab der zweiten Ordnung beitragen und für deutliche Veränderungen im Kurvenverlauf der Übergangsstärken sorgen. Schließlich gibt es ab der vierten Ordnung Terme, die keiner der beiden obigen Strukturen zugeordnet werden können.

Mittels der Clusterentwicklung konnte gezeigt werden, dass das Phasendiagramm der verallgemeinerten Spinleiter einen zwar kleinen, aber endlichen inkommensurablen Bereich aufweist, in welchem der Wellenvektor der niedrigsten Anregung von  $q = 0$  nach  $q = \pi$  wechselt. Interessanterweise geht dieser Wechsel nicht sprunghaft vor sich, sondern, wie anhand von Dispersionsrelationen gezeigt wurde, kontinuierlich. Da sich die Potenzreihe der Anregungsenergie in expliziter Form bis zur 12. Ordnung berechnen ließ, konnten in der Nähe des Dimer-Punktes die Bereichsgrenzen erstmals in geschlossener Form angegeben werden. Dabei stellte sich heraus, dass der inkommensurable Bereich erst ab der vierten Ordnung eine endliche Breite besitzt.

Zur weiteren Untersuchung wurden biquadratische Wechselwirkungen insbesondere in Kombination einer zyklischen Vier-Spin-Wechselwirkung (Ringtausch) hinzugenommen. Diese neuartige Wechselwirkung konnte durch Messungen mittels inelastischer Neutronenstreuung an Leitermaterialien wie etwa  $\text{Ca}_8\text{La}_6\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  motiviert werden. Berücksichtigt man keine biquadratischen Wechselwirkungen, so ergibt eine Analyse des Anregungsspektrums, dass  $J_{\text{leg}} \approx 2J_{\text{rung}}$  sein sollte. Dieses Verhältnis kann weder mit der geometrischen noch mit der elektronischen Struktur der Leiter in Verbindung gebracht werden, aber die Hinzunahme des Ringtausches beseitigt diese Inkonsistenz.

Die Berechnung von Störungsreihen, die für die niedrigste Anregungsmode bis zur 12. Ordnung ermittelt werden konnten, ermöglichte es, das Phasendiagramm der Spinleiter mit zusätzlichem Ringtausch näher zu untersuchen. Insbesondere ließ sich eine Phasenlinie innerhalb des störungstheoretisch zugänglichen Bereichs angeben, bei der sich die Anregungslücke schließt. Zur weiteren Charakterisierung dieses Phasenübergangs wurden Padé-Approximanten ausgewertet und damit kritische Exponenten angegeben. Es stellte sich heraus, dass sich die Anregungslücke als Funktion der Wechselwirkungsparameter linear schließt. Dieses Ergebnis stützt die Vermutung, dass die Übergangslinie in eine dimerisierte Phase führt, die durch eine spontan gebrochene Translationssymmetrie entlang der Leiter und Verdoppelung der magnetischen Einheitszelle gegeben ist.

Im Bereich der höherdimensionalen Substanzen konzentrierte sich die Untersuchung auf die Substanzen  $\text{KCuCl}_3$ ,  $\text{TlCuCl}_3$  und PHCC in Hinblick auf ihre Wechselwirkungsstruktur. Hierfür wurde zunächst ein effektives Modell verwendet, d.h. die vier möglichen Spin-Spin-Wechselwirkungen zwischen benachbarten Dimeren werden durch eine effektive Dimer-Dimer-Wechselwirkung ersetzt. Bereits mit diesem vereinfachten Modell konnte eine gute Übereinstimmung mit experimentellen Daten erzielt werden. Um jedoch die mikroskopische Wechselwirkungsstruktur aufklären zu können, wurden für  $\text{KCuCl}_3$  bzw.  $\text{TlCuCl}_3$  neun und für PHCC zehn individuelle Spinkopplungen verwendet. Mit Hilfe der Clusterentwicklung konnte die Berechnung der Dispersionsrelation bis zur sechsten Ordnung vorangetrieben

werden. Um die Größen der Wechselwirkungen bestimmen zu können, wurden die Dispersionsrelationen an experimentelle Daten angepasst, welche aus Messungen mittels inelastischer Neutronenstreuung zur Verfügung standen. Für die oben genannten Substanzen konnten erstmalig alle relevanten Kopplungskonstanten angegeben werden, sodass die Messdaten mit hoher Genauigkeit wiedergegeben werden.

Darüberhinaus konnte für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  der dynamische Strukturfaktor für den Singlett-Triplett Übergang bis zur zweiten Ordnung in expliziter Form berechnet werden. Dies stellte insofern eine Herausforderung dar, weil die kristallographische Einheitszelle dieser Substanzen zwei unterschiedlich orientierte Dimere (charakterisiert durch die Vektoren  $\mathbf{d}_1$  und  $\mathbf{d}_2$ ) enthält. Das Resultat beinhaltet Terme, die mit den gängigen Methoden wie etwa der „random phase approximation“ (RPA) für das effektive Modell nicht erfasst werden können: Neben den für Dimersysteme üblichen Beiträgen  $\propto [\sin(\mathbf{q}\mathbf{d}_1/2) \pm \sin(\mathbf{q}\mathbf{d}_2/2)]^2$  konnten auch solche der Form  $\propto \sin(\mathbf{q}\mathbf{d}_i/2) \cos(\mathbf{q}\mathbf{d}_j/2)$  nachgewiesen werden.

Insgesamt stellt sich folgendes Bild dar: Die Clusterentwicklung ist hervorragend für schwach gekoppelte Dimersysteme geeignet. Im Gegensatz zu anderen üblichen numerischen Methoden ist sie momentan die einzige, mit der auch höherdimensionale Systeme untersucht werden können. Deshalb sollte die Untersuchung von Anregungsspektren auf weitere Materialien ausgedehnt werden. Beispielsweise wird vermutet, dass die Substanz  $\text{Cu}_2(1,4\text{-Diazacycloheptan})_2\text{Cl}_4$  aus schwach wechselwirkenden Dimeren aufgebaut ist.

Schließlich ließe eine Modifikation von einer dimerbasierten zu einer plakettenbasierten Clusterentwicklung die Berechnung von Singlett-Triplett-Übergangsstärken auch für Systeme mit zwei Basisknoten zu.

Teile dieser Arbeit wurden aus Prioritätsgründen in [30], [87] und [104] veröffentlicht.



## ANHANG A

### Numerische Methoden

#### A.1 Basisimplementierung

Zur algorithmischen Umsetzung der Clusterentwicklung müssen für jeden Cluster die entsprechenden Basiszustände in geeigneter Form vorliegen. Die Effizienz des Programms bezüglich Geschwindigkeit und Speicherbedarf hängt entscheidend von der Art und Weise ab, wie Zustände abgelegt werden und wie auf diese wieder zugegriffen wird.

##### A.1.1 Basisdarstellung

Da die darzustellenden Zustände in der Regel Produktzustände sind, deren HILBERT-Räume endlich sind, bietet sich eine p-adische Darstellung an. Im Falle der Dimerentwicklung besteht der HILBERT-Raum aus 4 Zuständen, einem Singlett und drei Triplets. Jeder Zustand wird also als 4-adische Zahl  $z$  beschrieben:

$$z = \sum_{i=0}^{N-1} 4^i a_i. \quad (\text{A.1})$$

$N$  ist hier die Anzahl der Dimere und  $i$  nummeriert diese. Die Koeffizienten  $a_i$  codieren die Zustände am Dimer  $i$ :

$$\begin{aligned} |s\rangle &\longrightarrow 0 & |t^{(-)}\rangle &\longrightarrow 1 \\ & & |t^{(0)}\rangle &\longrightarrow 2 \\ & & |t^{(+)}\rangle &\longrightarrow 3. \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Diese Darstellung enthält allerdings eine obere Grenze bezüglich der Anzahl der Plätze. Auf Maschinen mit einer 32-Bit Adressierung ist die Systemgröße auf 16 Dimere limitiert (*unsigned long int*). Bei 64-Bit liegt die theoretische Grenze zwar bei 32 Dimeren, jedoch treten hier andere Probleme auf: Rechenzeit und Speicherbedarf sind dann die begrenzenden Faktoren.

##### A.1.2 Basisaufbau

Die Basis wird durch wiederholtes Anwenden des HAMILTON-Operators  $\mathcal{H}_1$ , der die kleine Störung beschreibt, auf den Zustand (die Zustände) in 0-ter Ordnung aufgebaut. Dabei wird

die Basis natürlicherweise in disjunkte Unterräume  $U^{(i)}$  unterteilt, die nur Zustände enthalten, welche durch genau  $i$ -maliges Anwenden des HAMILTON-Operators auf die Zustände aus  $U^{(0)}$  entstehen:

$$U^{(i)} = \left\{ |k\rangle \mid |k\rangle = (\mathcal{H}_1)^i |0\rangle, |0\rangle \in U^{(0)}, |k\rangle \notin \bigcup_{j=0}^{i-1} U^{(j)} \right\}. \quad (\text{A.3})$$

Der Unterraum  $U^{(0)}$  enthält bei einer Dimerentwicklung des Grundzustandes nur den Zustand  $|0\rangle = \prod_{i=0}^{N-1} |s_i\rangle$ , während bei der entarteten Störungsentwicklung  $U^{(0)}$  alle auf den Cluster beschränkten Ein-(Zwei-)Quantenanregungen enthält.

Da  $\mathcal{H}$  hermitesch ist, ist nach Konstruktion ein Unterraum  $U^{(i)}$  nur mit seinen benachbarten Unterräumen verknüpft. Wirkt also  $\mathcal{H}_1$  auf einen Zustand  $|k\rangle \in U^{(i)}$ , so liegen die entstehenden Zustände entweder in  $U^{(i-1)}$ ,  $U^{(i)}$  oder  $U^{(i+1)}$ . Damit wird das Auffinden von Zuständen auf bestimmte Unterräume beschränkt und somit erheblich beschleunigt. Abb A.1 zeigt die Größe der Unterräume in den einzelnen Ordnungen.

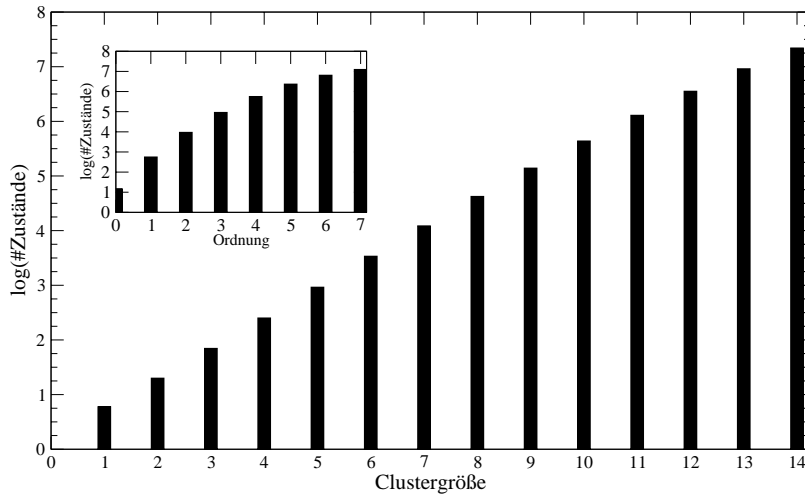


ABBILDUNG A.1: Anzahl der Basiszustände auf unterschiedlich großen Cluster für die Berechnung von Anregungen. Der kleine Einsatz zeigt die Anzahl der Basiszustände für einen Cluster der Größe 14 in den einzelnen Unterräumen. Man beachte die logarithmische Skalierung.

### A.1.3 Zugriff auf Basiszustände

Eine der einfachsten Möglichkeiten, Zustände zu speichern, ist die mittels eines Feldes. Dabei ist der Feldindex gleichzeitig die Zahl, mit der der Zustand kodiert wird. Ist ein Zustand vorhanden bzw. ist er erzeugt worden, ist an der entsprechenden Feldposition eine 1 gesetzt, andernfalls eine 0. Die Abfrage dieses Feldes ist natürlich sehr einfach und schnell, allerdings gibt es bei einer Systemgröße von beispielsweise 12 Dimeren  $4^{12} = 16777216$  poten-



zielle Zustände, was einem Speicherbedarf von mindestens 128 MByte\* entspricht. Damit hat man aber nur die Basiszustände abgelegt. Für die Koeffizienten benötigt man dann in **jeder** Ordnung das vierfache dieses Speicherbedarfs<sup>†</sup>, was die Möglichkeiten der heutigen Computersysteme sprengen würde.

Um den Speicherbedarf zu reduzieren und um trotzdem möglichst effektiv auf die Basiszustände zugreifen zu können, werden grundsätzlich zwei Strategien verfolgt: Hashing und binäre Suche. Man nutzt dabei folgende Tatsache aus: Bei der Anwendung des HAMILTON-Operators auf einen Basiszustand  $|i\rangle$  werden bei den hier betrachteten Systemen nur Zustände erzeugt, die alle in demselben  $S^z$  Spinunterraum wie auch  $|i\rangle$  liegen, d.h. das oben beschriebene Feld würde überwiegend aus Nullen bestehen. Mit einer Hash-Funktion  $f(K)$  werden die Zustände, dargestellt als ganze Zahlen  $K$ , auf eine Zahl zwischen Null und der Dimension des Spinunterraums abgebildet. Es hat sich bewährt, als Hash-Funktion die

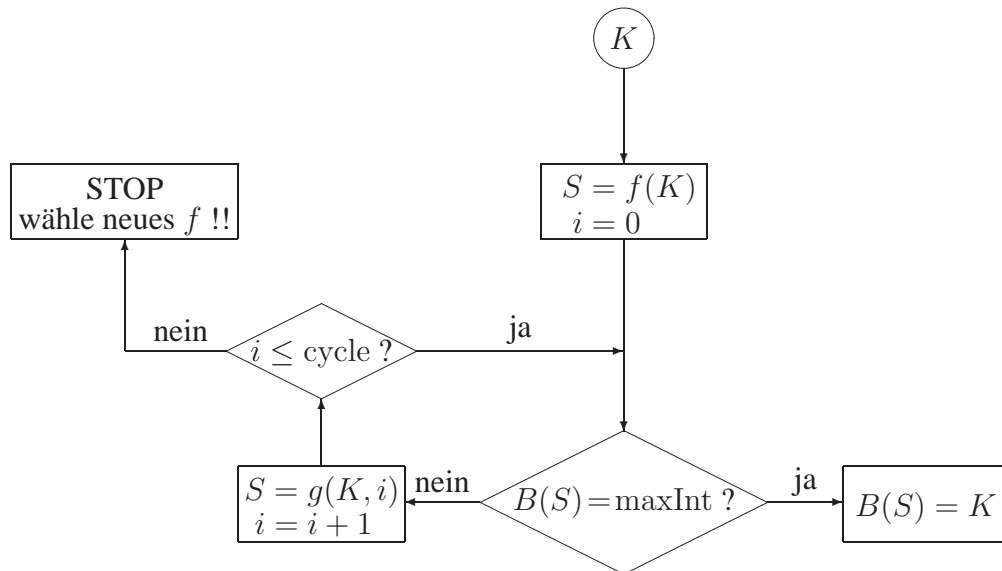


ABBILDUNG A.2: Hashing: Einfügen eines Zustandes  $K$  in eine Hash-Liste  $B$ .

Modulo-Operation mit einer Primzahl  $p$ , die größer als die Dimension des Spinunterraums ist, zu wählen. Diese Funktion ist zwar schnell zu berechnen, hat aber einen großen Nachteil: Sie ist nicht injektiv. Für die Behandlung dieser Kollisionen gibt es eine Reihe von Strategien. Beispiele für Funktionen  $g(k, i)$  zur Auflösung von Kollisionen sind

$$\begin{aligned}
 g(K, i) &= (K + i) \bmod p && \text{(lineares Sondieren) ,} \\
 g(K, i) &= (K + i^2) \bmod p && \text{(quadratisches Sondieren),} \\
 g(K, i) &= [K + g'(k, i)] \bmod p && \text{(doppeltes Hashing).}
 \end{aligned}$$

$K$  bezeichnet die einzufügende Zahl und  $i$  die Anzahl der beim Einfügen dieser Zahl

\*Falls für einen Feldeintrag nur 8 Bit benötigt werden (*char*).

<sup>†</sup>Falls für eine Fließkommazahl 32 Bit veranschlagt werden (*float*).

aufgetretenden Kollisionen. Abbildung A.2 zeigt eine schematische Darstellung der Abläufe beim Hashing. Die Liste wird zu Anfang mit  $MaxInt$  initialisiert, um freie Plätze zu kennzeichnen. Über  $cycle$  wird die maximale Anzahl von Kollisionen gesteuert. Sie sollte sehr klein gewählt werden ( $\sim 10$ ), damit das Hashing nicht zu einer linearen Suche ausartet. Wird ein Programmablauf über  $cycle$  terminiert, war die Hash-Funktion nicht angemessen gewählt und sollte verändert werden.

Bei der konkreten Umsetzung der rekursiven Störungstheorie benötigt man für jeden Zustand  $|i\rangle$  nicht nur seine Darstellung  $K$  sondern auch seinen Index  $i$ . Im Gegensatz zu anderen Darstellungen<sup>109</sup> wird eine solche inverse Liste nicht parallel zur Hashtabelle aufgebaut. Die Hashtabelle wird nur zum Aufbau eines Unterraums benutzt. Ist ein Unterraum vollständig vorhanden, werden die Zustände in eine geordnete Liste eingefügt. Der Index eines Zustandes setzt sich dann zusammen aus dem Index des Unterraums und dem Feldindex. Bei der Anwendung des Hamiltonoperators auf einen Zustand sind die (maximal drei) Unterräume der entstehenden Zustände bekannt, in denen man mittels einer binären Suche (s. Abbildung A.3) den Index finden kann.

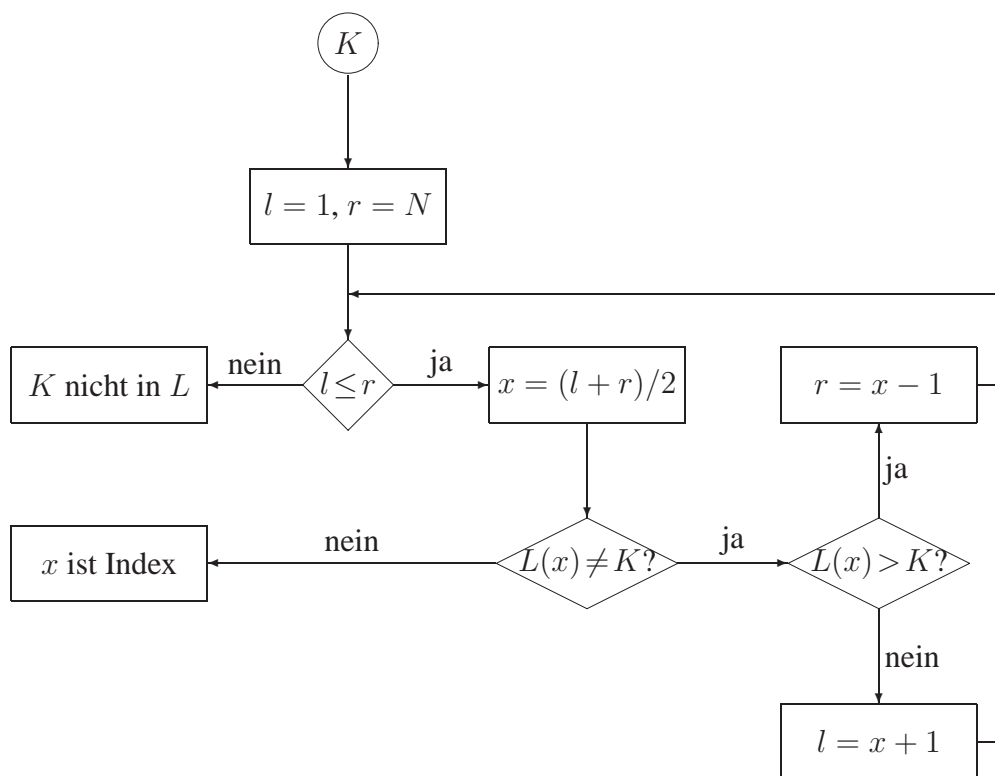


ABBILDUNG A.3: Binäre Suche: Suche des Index eines Zustands  $K$  in der Liste  $L$ .

Diese Methode hat bezüglich des Speicherbedarfs zwei Vorteile:

- Es wird keine zusätzliche inverse Liste benötigt: Für jeden Zustand wird nur seine

Darstellung abgespeichert. Eine Liste, in der sein Index steht, entfällt.

- Auch beim Hashing gibt es Speicherplätze, die keinen Zustand enthalten (Löcher). Da das Hashing nur beim Aufbau eines Unterraums benutzt wird und danach die Zustände in geordneten Listen vorliegen, wird nur soviel Speicherplatz angefordert, wie tatsächlich benötigt wird.

## A.2 Darstellung der Graphen

Mögliche Darstellungen von Graphen bzw. Cluster wurden bereits in Kapitel 1.2 besprochen: Adjazenzmatrizen und -listen. Für die praktische Umsetzung, insbesondere im Umgang während der Clusterentwicklung, ist eine eher anschauliche Darstellung nützlich. Alle Kanten eines Graphen werden explizit abgespeichert und zwar durch die Angabe beider Knoten (Source, Sink). Daneben gibt es noch einen so genannten Vertexstack, in dem alle "Namen" des Knoten abgelegt sind. Die eigentlichen Knoten sind dann Referenzen auf diesem Stack. Die Vorteile dieser Darstellung sind:

- Das Hinzufügen von Knoten ist sehr einfach.
- Man kann mit den internen Namen, den Referenzen, arbeiten. Die externen (auf den Vertexstack) sind beispielsweise beim Vergleich von Subgraphen mit dem eigentlichen Graphen von Nutzen.

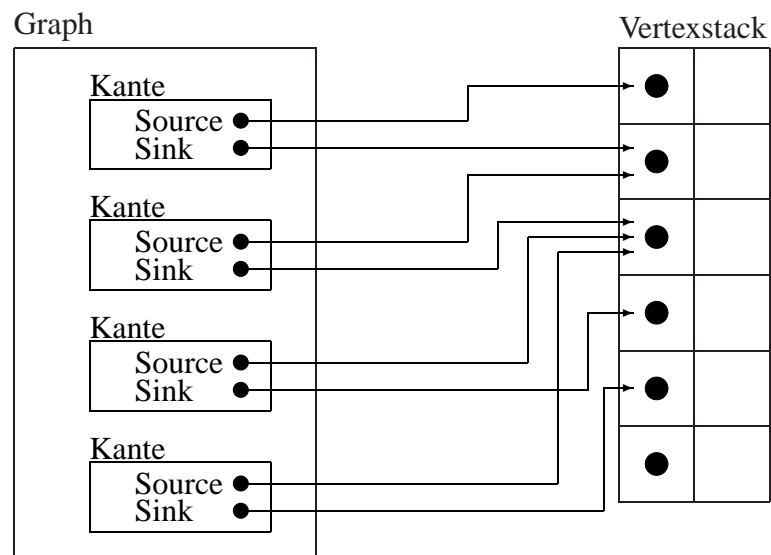


ABBILDUNG A.4: Darstellung eines Graphen durch die explizite Angabe der Kanten. Die eigentlichen Knoten sind Referenzen auf einen so genannten Vertexstack.

### A.3 Berechnung der Koeffizienten

Ausgangspunkt für die Störungsentwicklung sind die Rekursionsgleichungen aus Kapitel 1.3.1 bzw. 1.3.2, die hier noch einmal zitiert seien:

- für nichtentartete Störungsentwicklung

$$e^{(i)} = \langle \psi^{(0)} | \mathcal{H}_1 | \psi^{(i-1)} \rangle \quad (\text{A.4})$$

$$\langle k | \psi^{(i)} \rangle = \frac{1}{E_0 - E_k} \left( \langle k | \mathcal{H}_1 | \psi^{(i-1)} \rangle - \sum_{j=1}^{i-1} e^{(j)} \langle k | \psi^{(i-j)} \rangle \right) \quad (\text{A.5})$$

- für entartete Störungsentwicklung

$$h_k^{\text{eff}}(l, m) = \langle m | \mathcal{H}_1 | \psi_l^{(k-1)} \rangle \quad (\text{A.6})$$

$$\langle n | \psi_l^{(k)} \rangle = \frac{1}{E_0 - E_n} \left\{ \langle n | \mathcal{H}_1 | \psi_l^{(k-1)} \rangle - \sum_{i=1}^L \sum_{k'=1}^{k-1} \langle n | \psi_i^{(k')} \rangle h_{k-k'}^{\text{eff}}(l, i) \right\}. \quad (\text{A.7})$$

Zur Implementierung dieser Gleichungen ist es sinnvoll, die Zustände  $|\psi^{(i)}\rangle$  in der Basis der Eigenzustände zum ungestörten Anteil des HAMILTON-Operators  $\mathcal{H}_0$  zu entwickeln. Aufgrund der im vorhergehenden Abschnitt vorgenommenen Unterteilung der Basis in Unterräume sieht diese Entwicklung folgendermaßen aus:

$$|\psi^{(i)}\rangle = \sum_{j=1}^i \sum_{k_j} c_{k_j}^{(i)} |k_j\rangle \quad \text{bzw.} \quad |\psi_l^{(i)}\rangle = \sum_{j=1}^i \sum_{k_j} c_{k_j, l}^{(i)} |k_j\rangle. \quad (\text{A.8})$$

In den obigen Gleichungen nummeriert  $k_j$  die Zustände aus dem Basisunterraum  $U^{(j)}$ . Betrachten wir beispielsweise die Berechnung der Grundzustandsenergie und setzen die entwickelten Zustände in Gleichung (A.4) ein:

$$e^{(i)} = \sum_{j=1}^i \sum_{k_j} c_{k_j}^{(i-1)} \langle 0 | \mathcal{H}_1 | k_j \rangle. \quad (\text{A.9})$$

Diese Gleichung ist von besonderem Interesse, da sie zweierlei verdeutlicht: Zur Berechnung der Energie in  $n$ -ter Ordnung werden einerseits nur die Entwicklungskoeffizienten bis einschließlich  $(n-1)$ -ter Ordnung benötigt. Andererseits müssen gemäß (A.3) nur die Unterräume bis  $U^{(\lfloor n/2 \rfloor)}$  erzeugt werden. Letzteres lässt sich aus der Hermitezität von  $\mathcal{H}$  erklären. Betrachten wir hierzu das Matrixelement in (A.9): Da  $|k_j\rangle$  aus dem Unterraum  $U^{(j)}$  stammt, können wir auch  $\langle 0 | \mathcal{H}_1^{j+1} | 0 \rangle$  schreiben, was natürlich nur symbolisch zu verstehen ist. Ist  $\mathcal{H}_1$  hermitesch, so folgt  $\langle k_{j/2} | \mathcal{H}_1 | k_{j/2} \rangle$  für gerade  $j$  bzw.  $\langle k_{j/2} | k_{j/2} \rangle$  für ungerade  $j$ . Nach Konstruktion können nur diese Art von Matrixelemente von Null verschieden sein, sodass wegen  $j \leq n$  nur die Generierung der Unterräume bis  $U^{(\lfloor n/2 \rfloor)}$  notwendig ist.

Diese Resulte können in (A.8) eingearbeitet werden und führen auf die folgenden Entwicklungen der Wellenfunktionen  $|\psi^{(i)}\rangle$  bzw.  $|\psi_l^{(i)}\rangle$ :

$$|\psi^{(i)}\rangle = \begin{cases} \sum_{j=1}^i \sum_{k_j} c_{k_j}^{(i)} |k_j\rangle, & i \leq \frac{n}{2} \\ \sum_{j=1}^{n-i} \sum_{k_j} c_{k_j}^{(i)} |k_j\rangle, & i > \frac{n}{2} \end{cases} \quad \text{bzw.} \quad |\psi_l^{(i)}\rangle = \begin{cases} \sum_{j=1}^i \sum_{k_j} c_{k_j,l}^{(i)} |k_j\rangle, & i \leq \frac{n}{2} \\ \sum_{j=1}^{n-i} \sum_{k_j} c_{k_j,l}^{(i)} |k_j\rangle, & i > \frac{n}{2}. \end{cases} \quad (\text{A.10})$$

Auf den ersten Blick erscheint durch diese Fallunterscheidungen die weitere Umsetzung der Rekursionsgleichungen wesentlich komplizierter. Dennoch hat diese Darstellung Vorteile:

- Es werden nur die notwendigen Koeffizienten berechnet und abgespeichert, was eine erhebliche Reduzierung des Speicherbedarfs nach sich zieht.
- Setzt man (A.10) in (A.5) bzw. (A.7) ein, so laufen die Summen nicht mehr über alle potenziellen Basiszustände sondern nur noch über diejenigen aus bestimmten Unterräumen, was sich in den entsprechend zu berücksichtigen Koeffizienten niederschlägt (s. Abbildung A.5). Dadurch kann die Laufzeit des Programms reduziert werden.

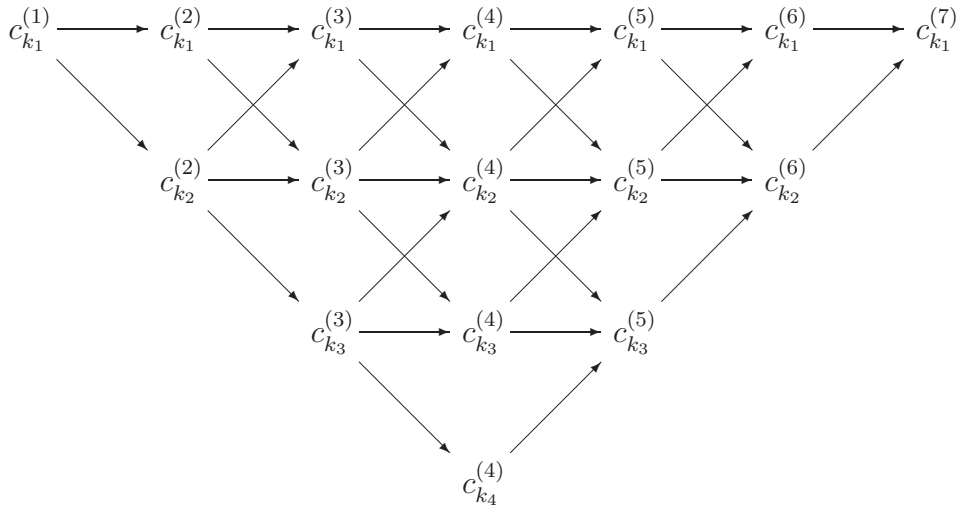


ABBILDUNG A.5: Flusschema zur Koeffizientenberechnung. Dargestellt ist der Ablauf bei einer Berechnung bis zur 8. Ordnung. Beispielsweise werden zur Berechnung von  $c_{k_3}^{(4)}$  die Koeffizienten  $c_{k_2}^{(3)}$  und  $c_{k_3}^{(3)}$  benötigt.

An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, dass die obige Entwicklung nur für die Berechnung der Grundzustandsenergie bzw. der Anregungsenergie gilt. Will man Grundzustandserwartungswerte bis zur Ordnung  $n$  ermitteln, so müssen alle Unterräume  $U^{(0)} \dots U^{(n)}$  erzeugt werden. Dies trifft insbesondere für die Größen  $A_{ij}^{\alpha\beta}(\mathbf{n})$  zu, die im Zusammenhang mit dem dynamischen Strukturfaktor entwickelt werden müssen (s. Abschnitt 1.4).

## A.4 Gitterimplementierungen

Die Form der unterschiedlichen Gitter, die den untersuchten Modellen zu Grunde liegen, spielt sowohl bei der Generierung der Cluster als auch bei der Umsetzung der Störungsentwicklung eine wichtige Rolle. Nicht nur die relative Lage der Spins (Dimere) sondern auch die Anordnung der unterschiedlichen Wechselwirkungen müssen implementiert werden.

Bei der Erzeugung von ungefärbten Clustern, ist die Angabe von Gittervektoren völlig ausreichend. Ausgehend von einem beliebigen Knoten geben die Gittervektoren an, wo sämtliche benachbarten, d.h. mit einer Wechselwirkung verbundenen, Knoten liegen. In Tabelle A.1 sind die Gittervektoren der in der vorliegenden Arbeit untersuchten Gittertypen angeführt.

Gitter	Gittervektoren		Anzahl der Farben	Raumdimensionen
linear	$\pm(1, 0, 0)$		1	1
KCuCl <sub>3</sub>	$\pm(1, 0, 0)$	$\pm(0, 1, 0)$	4	3
	$\pm(0, 0, 1)$	$\pm(1, 1, 0)$		
PHCC	$\pm(1, 0, 0)$	$\pm(0, 1, 0)$	4	2
	$\pm(1, 1, 0)$	$\pm(1, -1, 0)$		

TABELLE A.1: Gittervektoren verschiedener Modelle. Für KCuCl<sub>3</sub> und PHCC stimmen die Gittervektoren nicht mit den kristallographischen überein (s. Text).

Die Hinzunahme von Farben (Kantenfärbungen) kann grundsätzlich auf zwei Arten geschehen. Die naheliegenste ist, dass man die Farbe jeder Kante, die gemäß A.2 aus der expliziten Angabe des Start- und Endknotens besteht, in Form einer weiteren Variablen hinzufügt. Diese Vorgehensweise erweist sich als zweckmäßig bei der Generierung der topologisch unterschiedlichen Cluster auf einem Gitter.

Will man für ein Gitter alle Einbettungen erzeugen, so ist eine andere Implementierung von Vorteil. Zunächst wird das Gitter verdoppelt, d. h. die Spins bzw. Dimere befinden sich auf jedem zweiten Gitterpunkt. Die Kanten können dann durch Angabe der Gitterpunkte zwischen den Knoten angesprochen werden. Jede gefärbte Kante wird mittels zweier ganzer Zahlen dargestellt: Einer  $p$ -adischen Zahl für den Kantengitterpunkt und einer Farbnummer.

### A.4.1 Das Gitter für KCuCl<sub>3</sub> und TiCuCl<sub>3</sub>

Um die komplizierte Wechselwirkungsstruktur von KCuCl<sub>3</sub> bzw. TiCuCl<sub>3</sub> zu vereinfachen wird das Gitter für die Darstellung der Graphen deformiert. Wir betrachten analog zu Abbildung 3.1 einen Schnitt durch die  $[20\bar{1}]$ -Ebene. Abbildung A.6 zeigt eine schematische Darstellung der Wechselwirkungen und die Transformation auf ein kubisches Gitter: Die

Dimere befinden sich auf den Gitterknoten. Die neuen Basisvektoren sind entsprechend

$$\begin{aligned} \mathbf{x} &= \mathbf{a} + \frac{1}{2}(\mathbf{b} + \mathbf{c}), & \mathbf{y} &= \mathbf{a} - \frac{1}{2}(\mathbf{b} - \mathbf{c}), \\ \mathbf{z} &= -\mathbf{a}. \end{aligned} \tag{A.11}$$

Sämtliche Interdimerwechselwirkungen zwischen benachbarten Dimeren werden mit einer Farbe kodiert, wodurch die in Abbildung A.6 dargestellte alternierende Wechselwirkungsstruktur entsteht. In  $z$ -Richtung werden diese Ebenen übereinander gelegt. Insgesamt werden vier verschiedene Farben benötigt: Drei in der  $[20\bar{1}]$ -Ebene und eine in  $z$ -Richtung, welche die Wechselwirkungen in Richtung der Leitern kodiert.

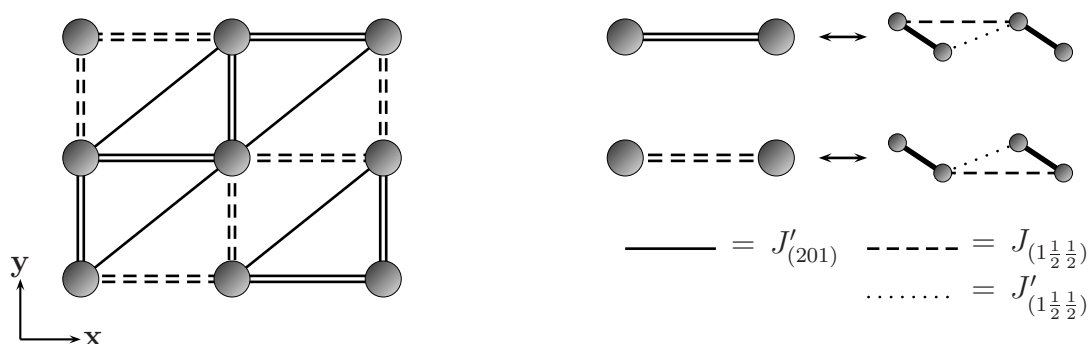
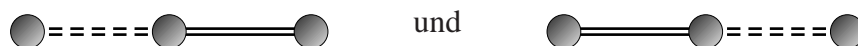


ABBILDUNG A.6: Transformation der Gitterstruktur von  $\text{KCuCl}_3$  in eine für die algorithmische Implementierung geeignete Weise. Links: Das resultierende kubische Gitter (die  $z$ -Richtung ist nicht dargestellt). Rechts: Darstellung der Basiseinheiten und Wechselwirkungen.

Ein wesentlicher Nachteil dieser Methode ist, dass zwar die Anzahl der topologisch verschiedenen Graphen gering ist, aber die der Einbettungen ist sehr groß. Tabelle A.2 spiegelt diese Tatsache wieder. Beispielsweise muss in Hinblick auf eine korrekte Subcluster-Subtraktion zwischen den Einbettungen



unterschieden werden. Dadurch wird das Gitter gewissermaßen zweimal berechnet, sodass nach der Summation der Gewichte und der eventuell anschließenden FOURIER-Transformation die resultierenden Größen durch zwei dividiert werden müssen.

### A.4.2 Das Gitter für PHCC

Das Gitter für PHCC ist zweidimensional. Die Dimere werden analog zu  $\text{KCuCl}_3$  auf jeden zweiten Knoten eines Quadratgitters plaziert, sodass man die in Abbildung A.7 dargestellte Struktur erhält. Für die neuen Gittervektoren gilt:

$$\mathbf{x} = \mathbf{a} \quad \text{und} \quad \mathbf{y} = \mathbf{c}. \tag{A.12}$$

Ordnung	Anzahl		Einbettungen
	ungefärbter Graphen	gefärbter Graphen	
1	1	4	8
2	2	14	64
3	5	72	560
4	10	389	5532
5	22	2553	59372
6	50	18085	673826

TABELLE A.2: Kumulierte Anzahl der Graphen und Einbettungen für  $\text{KCuCl}_3$  und  $\text{TlCuCl}_3$  in verschiedenen Ordnungen.

Jedoch gibt es eine Komplikation: Die Diagonalwechselwirkungen  $J_{(101)}$  und  $J_{(10\bar{1})}$  belegen denselben Gitterknoten und können nicht mehr eindeutig angesprochen werden.

Um dieses Problem zu beseitigen ohne in die algorithmische Struktur der Clustergenerierung und der Störungsentwicklung eingreifen zu müssen, wird eine zusätzliche  $z$ -Komponente für die Gitterknoten eingeführt, die entweder 1 oder  $-1$  ist. Abbildung A.7 zeigt die Anordnung dieser künstlichen Koordinate. Dadurch wird das neue Gitter für PHCC ähnlich kompliziert wie für  $\text{KCuCl}_3$ , was sich auch in der Anzahl der erzeugten Einbettungen niederschlägt (s. Tabelle A.3).

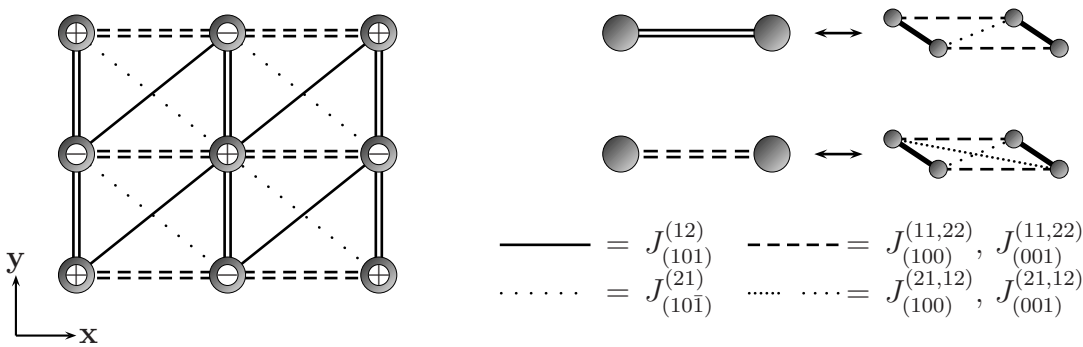


ABBILDUNG A.7: Transformation der Gitterstruktur von PHCC in eine für die algorithmische Implementierung geeignete Weise. Links: Das resultierende Quadratgitter. Die Plus- und Minuszeichen auf den Dimeren bezeichnen die zusätzliche  $z$ -Koordinate. Rechts: Darstellung der Basiseinheiten und Wechselwirkungen.

Die hohe Anzahl der Einbettungen ist wieder darauf zurückzuführen, dass beispielsweise zwischen



$$\oplus \text{====} \ominus \text{====} \oplus \quad \text{und} \quad \ominus \text{====} \oplus \text{====} \ominus$$

unterschieden werden muss.

Ordnung	Anzahl		
	ungefärbter Graphen	gefärbter Graphen	Einbettungen
1	1	4	8
2	2	14	64
3	5	72	552
4	10	405	5260
5	22	2759	53436
6	52	20574	565622

TABELLE A.3: Kumulierte Anzahl der Graphen und Einbettungen für PHCC in verschiedenen Ordnungen.

## A.5 Details zur Subcluster-Subtraktion

Um die Vorgehensweise bei der Subcluster-Subtraktion transparenter erscheinen zu lassen, wollen wir nun explizit eine Reihenentwicklung für kleine Cluster durchführen. Im Folgenden sollen sowohl die Grundzustandsenergie als auch die Dispersion einer dimerisierten, ein-dimensionalen Leiter störungstheoretisch berechnet werden. Der HAMILTON-Operator lautet:

$$\mathcal{H} = \sum_i \mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+1} + \alpha \sum_i (\mathbf{S}_{2i} \mathbf{S}_{2i+2} + \mathbf{S}_{2i+1} \mathbf{S}_{2i+3}). \quad (\text{A.13})$$


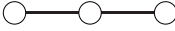


### A.5.1 Grundzustandsenergie

Beginnen wir zunächst mit der Grundzustandsenergie. Gemäß Gleichung (1.4) wird diese als Summe von Clustergewichten geschrieben:





$$\frac{E_{\text{Leiter}}}{N} = \frac{E_{\text{Leiter}}^0}{N} + \sum_G L(G, \mathcal{L} = \text{Leiter}) W(G). \quad (\text{A.14})$$

Zur Vereinfachung wurden hier die Beiträge des ungestörten HAMILTON-Operators, d.h. die so genannten Ein-Vertex-Beiträge, mit  $E_{\text{Leiter}}^0$  gesondert berücksichtigt.

Die beitragenden Cluster  $G$  sind relativ einfach: endliche offene Ketten mit  $n$  Kanten und  $n + 1$  Vertices. Man kann sich leicht davon überzeugen, dass diese Cluster alle die Gitterkonstante  $L(G) = 1$  besitzen. Die ersten vier beitragenden Cluster haben folgende Grundzustandsenergien:

$G$	$P(G)$
	$0\alpha - 3/8\alpha^2 - 3/16\alpha^3 - 3/128\alpha^4$
	$0\alpha - 3/4\alpha^2 - 3/8\alpha^3 - 0\alpha^4$
	$0\alpha - 9/8\alpha^2 - 9/16\alpha^3 + 3/128\alpha^4$
	$0\alpha - 3/2\alpha^2 - 3/4\alpha^3 + 3/64\alpha^4.$

Nun können wir mit der eigentlichen Subcluster-Subtraktion beginnen. Der erste Cluster ist zweimal (dreimal/viermal) im zweiten (dritten/vierten) wiederzufinden. Den zweiten kann man zweimal (dreimal) im dritten (vierten) und den dritten zweimal im vierten einbetten. Für die Gewichte erhält man:

$G$	$W(G)$
	$0\alpha - 3/8\alpha^2 - 3/16\alpha^3 - 3/128\alpha^4$
	$3/64\alpha^4$
	$0$
	$0.$



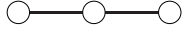

Wir summieren alle obigen Gewichte gemäß (A.14) und erhalten so für die Grundzustandsenergie

$$E_{\text{Leiter}}/N = -3/4 - \frac{3}{8}\alpha^2 - \frac{3}{16}\alpha^3 + \frac{3}{128}\alpha^4. \quad (\text{A.15})$$

Damit haben wir eine Potenzreihe für die Grundzustandsenergie pro Dimer entwickelt. Als nächsten Schritt wollen wir die Anregungsenergie berechnen.

## A.5.2 Anregungsenergie

Um Reihenentwicklungen für angeregte Zustände zu erhalten, muss zunächst ein effektiver Hamiltonian erzeugt werden (siehe Abschnitt 1.1.2.2). Im Folgenden sind für die Cluster bis maximal drei Kanten die effektiven HAMILTON-Operatoren, welche mittels entarteter Störungstheorie berechnet wurden, explizit angegeben. Man beachte, dass von den Diagonalelementen die Beiträge der Grundzustandsenergie bereits subtrahiert wurden, da nur die Differenz  $\mathcal{H}^{\text{eff}} - E^0 \cdot \mathbf{1}$  additiv über unverbundene Cluster ist.

$g$	$H(g)$
	$H(1,1) = 1$
	$H(1,1) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$ $H(1,2) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$ $H(2,1) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$ $H(2,2) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$
	$H(1,1) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$ $H(1,2) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 0 \cdot \alpha^3$ $H(1,3) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(2,1) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(2,2) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/4 \alpha^2 + 3/4 \alpha^3$ $H(2,3) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(3,1) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(3,2) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 0 \cdot \alpha^3$ $H(3,3) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$
	$H(1,1) = 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$ $H(1,2) = 0 + 1/2 \alpha - 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$ $H(1,3) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(1,4) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3$ $H(2,1) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(2,2) = 1 - 0 \cdot \alpha + 3/4 \alpha^2 + 3/8 \alpha^3$ $H(2,3) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(2,4) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(3,1) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(3,2) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(3,3) = 1 - 0 \cdot \alpha + 3/4 \alpha^2 + 3/8 \alpha^3$ $H(3,4) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(4,1) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3$ $H(4,2) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$ $H(4,3) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$ $H(4,4) = 1 - 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$

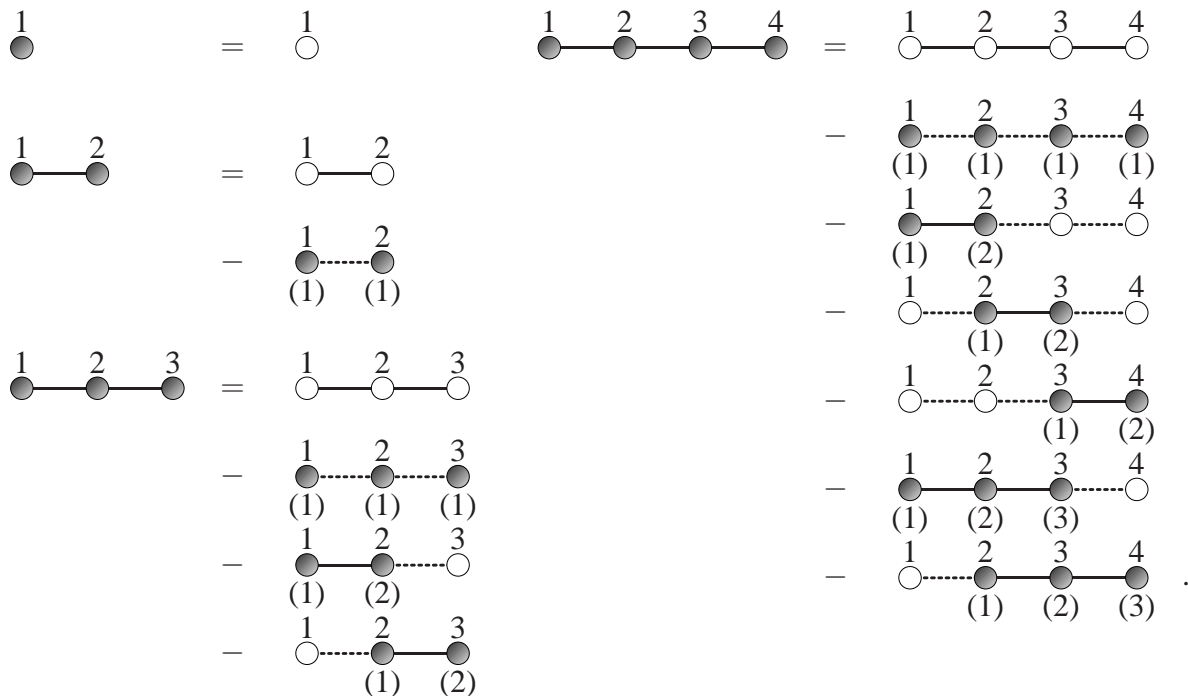
Man erkennt, dass die effektiven Hamiltonians der endlichen Cluster nicht mehr hermitesch in allen Ordnungen sind. Der Grund dafür ist in der nicht länger vorhandenen Translationsinvarianz der endlichen Cluster zu sehen. Während das (unendliche) Gitter translationsinvariant ist, sind die Knoten  $i$  und  $j$  auf dem Cluster nicht mehr äquivalent, d.h. die Sequenz virtueller Zwischenzustände, die während der Störungsentwicklung auftreten, hängt davon ab, ob eine Anregung von  $i$  nach  $j$  oder von  $j$  nach  $i$  läuft. Betrachten wir dazu folgende Abfolge von Zuständen auf dem Cluster mit zwei Kanten, welche in dritter Ordnung zu  $H(1,2)$

beitragen:





$$|t^{(0)} - s \overset{\downarrow}{-} s\rangle \longrightarrow |t^{(0)} \overset{\downarrow}{-} t^{(0)} - t^{(0)}\rangle \longrightarrow |s - s \overset{\downarrow}{-} t^{(0)}\rangle \longrightarrow |s - t^{(0)} - s\rangle.$$

Die Pfeile markieren die Bindungen, an denen die lokalen Anteile des HAMILTON-Operators wirken. Dieselben virtuellen Zwischenzustände tragen auch zu  $H(2, 1)$  bei, allerdings in umgekehrter Reihenfolge. Aufgrund der unterschiedlichen Valenzen sind die Knoten 1 und 2 nicht äquivalent und es gibt keine zur obigen analoge Sequenz. In Folge dessen ist  $H(1, 2) \neq H(2, 1)$  und  $H$  nicht mehr hermitesch. Nach Durchführung der Subcluster-Subtraktion und Berücksichtigung aller Einbettungen für das gesamte Gitter ist die Translationsinvarianz wiederhergestellt und der resultierende effektive Hamiltonian hermitesch.

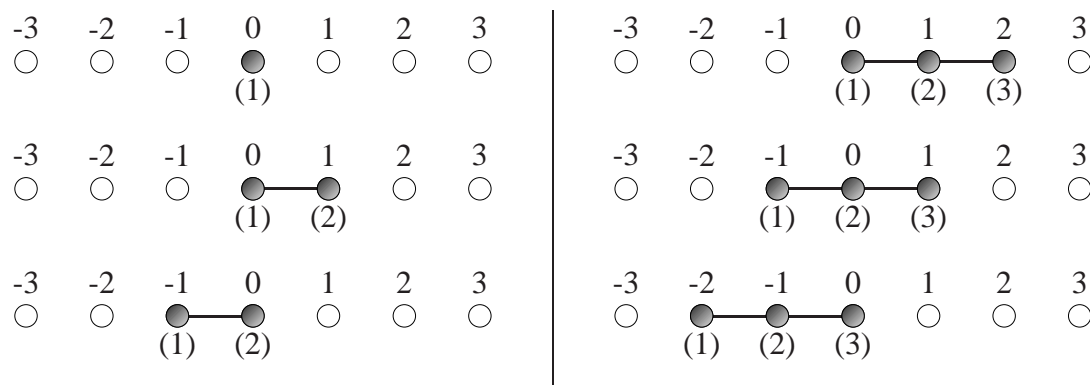
Nun kann mit der eigentlichen Subcluster-Subtraktion begonnen werden. Die folgenden Abbildungen zeigen diese Prozedur für die ersten drei Cluster (Der Einvertexbeitrag bleibt unverändert). Dabei bezeichnen die hellen Kreise die reinen, aus der Störungsentwicklung stammenden Reihen, während die grauen die resultierenden Cluster-Gewichte darstellen:



Daraus erhält man schließlich die Gewichte der Cluster. Ähnlich zu der Entwicklung der Grundzustandsenergie verschwinden für einen Cluster mit  $n$  Kanten die Gewichte bis zur Ordnung  $n - 1$ :

	$W_H(1, 1) = 1$
	$W_H(1, 1) = 0 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$
	$W_H(1, 2) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$
	$W_H(2, 1) = 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 0 \cdot \alpha^3$
	$W_H(2, 2) = 0 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3$
	$W_H(1, 3) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$
	$W_H(2, 1) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$
	$W_H(2, 3) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$
	$W_H(3, 1) = 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3$
	$W_H(1, 4) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3$
	$W_H(4, 1) = 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3$

Zum Schluß müssen alle Einbettungen der Cluster in das Gitter gefunden werden. Für translationsinvariante Gitter bietet sich folgende, technisch unproblematische Umsetzung an: Man ordnet jedem Knoten des Clusters den Ursprung des Gitters zu und berücksichtigt alle Beiträge der Gewichte relativ zum Ursprung. Die anschließenden Abbildungen verdeutlichen diese Vorgehensweise für die Cluster bis einschließlich dritter Ordnung.



Damit erhalten wir den effektiven Hamiltonian für Einteilchenanregungen der Leiter bis zur dritten Ordnung:

$$\begin{aligned}
 H(-3) &= 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3 \\
 H(-2) &= 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3 \\
 H(-1) &= 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3 \\
 H(0) &= 1 + 0 \cdot \alpha + 3/8 \alpha^2 + 3/16 \alpha^3 \\
 H(1) &= 0 + 1/2 \alpha + 0 \cdot \alpha^2 - 1/8 \alpha^3 \\
 H(2) &= 0 + 0 \cdot \alpha - 1/8 \alpha^2 - 1/8 \alpha^3 \\
 H(3) &= 0 + 0 \cdot \alpha + 0 \cdot \alpha^2 + 1/16 \alpha^3.
 \end{aligned}$$

Man beachte, dass das Resultat wieder hermitesch ist.



## ANHANG B

### Nebenrechnungen zum Strukturfaktor

Um den dynamischen Strukturfaktor mittels einer Clusterentwicklung berechnen zu können, muss dieser in eine Form gebracht werden, die nur noch Größen enthält, welche aus Reihenentwicklungen gewonnen werden können. Wie in den entsprechenden Kapiteln bereits angesprochen, muss unterschieden werden, wieviele *Basisknoten* das Gitter enthält. Während die betrachteten eindimensionalen Leitersysteme einen Basisknoten besitzen, sind es bei  $\text{TiCuCl}_3$  und  $\text{KCuCl}_3$  zwei.

Es stellt sich allerdings heraus, dass eine dimerbasierte Clusterentwicklung für Systeme mit zwei Basisknoten nicht geeignet ist, den dynamischen Strukturfaktor zu berechnen. Der Abschnitt B.2 gibt hierzu eine kurze Begründung.

#### B.1 Systeme mit einem Basisknoten

Die Komponenten der Spins  $S_1^\alpha$  und  $S_2^\alpha$  auf den Sprossen (Dimeren) haben einen Abstand  $2d$ , die Schwerpunkte der Dimere liegen im Abstand  $a = \|\mathbf{a}\|$ . Die FOURIER-Transformation eines Spinoperators lautet damit:

$$S^\alpha(\mathbf{q}) = \frac{1}{\sqrt{2N}} \sum_n e^{-i\mathbf{q}n} [e^{i\mathbf{q}d} S_1^\alpha(n) + e^{-i\mathbf{q}d} S_2^\alpha(n)]. \quad (\text{B.1})$$

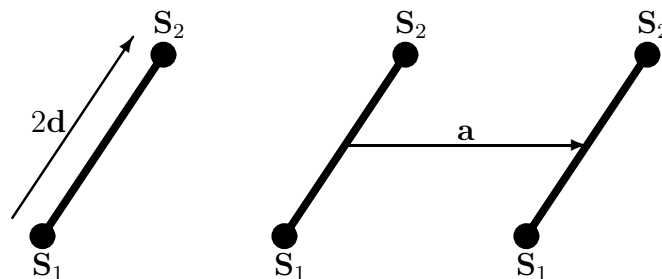


ABBILDUNG B.1: Relative Lage der Spinoperatoren in einer Leiter. Die dicken Linien bezeichnen die Dimere.

Für den dynamischen Strukturfaktor der Singlett-Triplett-Anregung, welche eine Anregungs-

energie von  $\omega_1(\mathbf{q})$  habe, ergibt sich damit:

$$\begin{aligned} S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega_1(\mathbf{q})) &= \frac{1}{2N} \sum_{n,m} e^{-iqa(n-m)} \left[ \langle 0 | \mathcal{S}_1^\alpha(n) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_1^{\beta\dagger}(m) | 0 \rangle \right. \\ &\quad + \langle 0 | \mathcal{S}_2^\alpha(n) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_2^{\beta\dagger}(m) | 0 \rangle \\ &\quad + e^{2i\mathbf{q}\mathbf{d}} \langle 0 | \mathcal{S}_1^\alpha(n) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_2^{\beta\dagger}(m) | 0 \rangle \\ &\quad \left. + e^{-2i\mathbf{q}\mathbf{d}} \langle 0 | \mathcal{S}_2^\alpha(n) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_1^{\beta\dagger}(m) | 0 \rangle \right]. \end{aligned}$$

Unter Ausnutzung der Translationsinvarianz lässt sich dies in einer kompakteren Weise schreiben:

$$S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}, \omega_1(\mathbf{q})) = \sum_n e^{-iqan} \left[ A_{11}^{\alpha\beta}(n) + A_{22}^{\alpha\beta}(n) + e^{2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{12}^{\alpha\beta}(n) + e^{-2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{21}^{\alpha\beta}(n) \right] \quad (\text{B.2})$$

mit

$$A_{ij}^{\alpha\beta}(n) = \langle 0 | \mathcal{S}_i^\alpha(0) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_j^{\beta\dagger}(n) | 0 \rangle, \quad i, j = 1, 2. \quad (\text{B.3})$$

In (B.2) läuft die Summe über alle ganzen Zahlen, d.h. insbesondere auch über negative ganze Zahlen. Da es technisch einfacher ist, die Funktionen  $A_{ij}^{\alpha\beta}(n)$  für positive  $n$  zu berechnen, sollte die Summe auf diese Werte eingeschränkt werden. Dies gelingt, indem man die Inversionssymmetrie der Leiter bezüglich eines Dimerschwerpunktes ausnutzt, was sich in den Relationen

$$A_{11}^{\alpha\beta}(-n) = A_{22}^{\alpha\beta}(n) \quad \text{und} \quad A_{12}^{\alpha\beta}(-n) = A_{21}^{\alpha\beta}(n) \quad (\text{B.4})$$

niederschlägt. Man erhält somit:

$$\begin{aligned} S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}) &= 2 \sum_{n>0} \left( A_{11}^{\alpha\beta}(n) + A_{22}^{\alpha\beta}(n) \right) \cos(qan) \\ &\quad + 2 \sum_{n>0} \left( A_{12}^{\alpha\beta}(n) \cos(qn - 2\mathbf{q}\mathbf{d}) + A_{21}^{\alpha\beta}(n) \cos(qn + 2\mathbf{q}\mathbf{d}) \right) \\ &\quad + A_{11}^{\alpha\beta}(0) + A_{22}^{\alpha\beta}(0) + e^{2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{12}^{\alpha\beta}(0) + e^{-2i\mathbf{q}\mathbf{d}} A_{21}^{\alpha\beta}(0). \end{aligned} \quad (\text{B.5})$$

## B.2 Systeme mit zwei Basisknoten

Bei Systemen mit zwei Basisknoten erweist sich die Berechnung mittels dimerbasierter Clusterentwicklung als nicht möglich. Im Folgenden wollen wir diese Aussage kurz begründen. Beginnen wir zunächst mit der Betrachtung der in Abbildung B.2 gezeigten Einheitszelle, welche vier Spins enthält. Die Spins  $\mathbf{S}_1$  und  $\mathbf{S}_2$  werden durch den Vektor  $\mathbf{d}_1$  verbunden,  $\mathbf{S}_3$  und  $\mathbf{S}_4$  durch  $\mathbf{d}_2$ . Die unterschiedlichen Dimere  $D_1$  und  $D_2$  haben einen Abstand  $\mathbf{d} = \mathbf{R}_2 - \mathbf{R}_1$ . Wir schreiben also für die FOURIER-Transformierte des Spinoperators:

$$\begin{aligned} S^\alpha(\mathbf{q}) &= \frac{1}{2\sqrt{N}} \sum_{\mathbf{r}} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{r}} \left[ e^{i\mathbf{q}\frac{\mathbf{d}_1}{2}} S_1^\alpha(\mathbf{r}) + e^{-i\mathbf{q}\frac{\mathbf{d}_1}{2}} S_2^\alpha(\mathbf{r}) \right. \\ &\quad \left. + e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{d} - \frac{\mathbf{d}_2}{2})} S_3^\alpha(\mathbf{r}) + e^{-i\mathbf{q}(\mathbf{d} + \frac{\mathbf{d}_2}{2})} S_4^\alpha(\mathbf{r}) \right]. \end{aligned} \quad (\text{B.6})$$



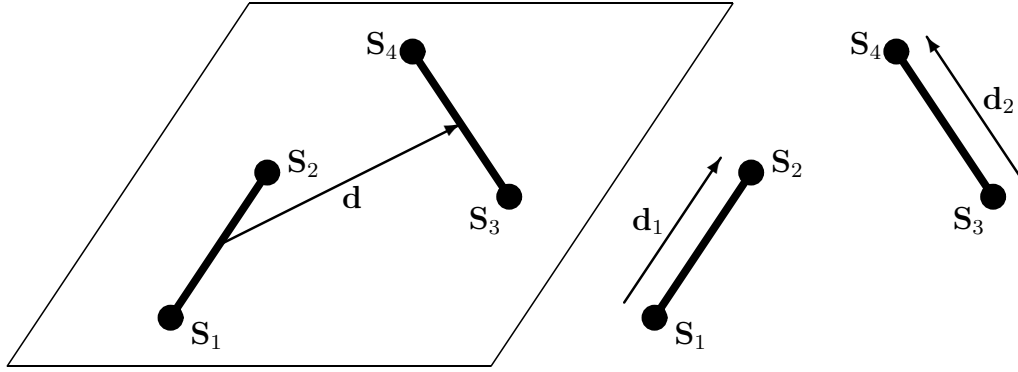


ABBILDUNG B.2: Relative Lage der Spinoperatoren in einer Substanz mit zwei Basisknoten. Die Einheitszelle enthält zwei Dimere bzw. vier Spins. Die dicken Linien bezeichnen die Dimere.

Da wir die einzelnen Spins in der Einheitszelle mit einem zusätzlichen Index versehen haben, ist das Argument der Operatoren der jeweilige Ort  $\mathbf{r}$  der Einheitszelle. Analog zu (B.2) nutzen wir die Translationsinvarianz aus und erhalten die folgende Gleichung:

$$\begin{aligned}
S_{0 \rightarrow 1}^{\alpha\beta}(\mathbf{q}) = & \sum_{\mathbf{n}} e^{-i\mathbf{q}\mathbf{n}} \left\{ A_{11}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) + A_{22}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) + A_{33}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) + A_{44}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) \right. \\
& + A_{12}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i(\Delta^+ + \Delta^-)} + A_{21}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i(\Delta^+ + \Delta^-)} \\
& + A_{34}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i(\Delta^+ - \Delta^-)} + A_{43}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i(\Delta^+ - \Delta^-)} \\
& + \left[ A_{14}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{d}} + A_{32}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{d}} \right] e^{-i\Delta^+} + \left[ A_{41}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{d}} + A_{23}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{d}} \right] e^{i\Delta^+} \\
& \left. + \left[ A_{13}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{d}} + A_{42}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{d}} \right] e^{-i\Delta^-} + \left[ A_{31}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{i\mathbf{q}\mathbf{d}} + A_{24}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) e^{-i\mathbf{q}\mathbf{d}} \right] e^{i\Delta^-} \right\}
\end{aligned} \tag{B.7}$$

mit

$$A_{ij}^{\alpha\beta}(\mathbf{n}) = \langle 0 | \mathcal{S}_i^\alpha(0) | 1 \rangle \langle 1 | \mathcal{S}_j^{\beta\dagger}(\mathbf{n}) | 0 \rangle, \quad i, j = 1, 2, 3, 4 \tag{B.8}$$

$$\Delta^\pm = \frac{\mathbf{q}}{2} (\mathbf{d}_1 \pm \mathbf{d}_2). \tag{B.9}$$

Betrachten wir nun die folgende Einschränkung: Es gibt keine Wechselwirkungen zwischen den unterschiedlich orientierten Dimeren, sondern nur zwischen gleich orientierten. Übertragen auf die Modelle für  $\text{TlCuCl}_3$  bzw.  $\text{KCuCl}_3$  bedeutet dies, dass lediglich die Wechselwirkung  $J_{(100)}^{(ij)}$  von Null verschieden ist.

In erster Ordnung findet man unter Anwendung von (3.48) für die Größen  $A_{ij}^{\alpha\beta}(\mathbf{n})$ :

$$A_{11}^{zz}([100]) = A_{22}^{zz}([100]) = A_{33}^{zz}([100]) = A_{44}^{zz}([100]) = -\frac{1}{16} \quad (\text{B.10})$$

$$A_{12}^{zz}([100]) = A_{21}^{zz}([100]) = A_{34}^{zz}([100]) = A_{43}^{zz}([100]) = \frac{1}{16} \quad (\text{B.11})$$

$$A_{13}^{zz}([100]) = A_{24}^{zz}([100]) = A_{31}^{zz}([100]) = A_{42}^{zz}([100]) = -\frac{1}{16} \quad (\text{B.12})$$

$$A_{14}^{zz}([100]) = A_{23}^{zz}([100]) = A_{41}^{zz}([100]) = A_{32}^{zz}([100]) = \frac{1}{16}. \quad (\text{B.13})$$

Von besonderem Interesse sind nun die Größen, welche zwischen den Dimeren  $D_1$  und  $D_2$  zu berechnen sind, denn die Clusterentwicklung liefert für diese Größen verschwindende Beiträge!

Die Begründung dafür kann man am folgenden Matrixelement ablesen, wobei die entsprechenden Cluster, die in erster Ordnung der Entwicklung aus maximal zwei Knoten bestehen, durch Boxen hervorgehoben sind:

Die vorhandenen Wechselwirkungen sind durch Doppellinien dargestellt. Entwickelt man die Grundzustandswellenfunktion bis zur ersten Ordnung, so entstehen Zwei-Triplett-Anregungen mit  $S^{\text{tot}} = 0$ :

$$|\psi\rangle^{(0,0)} = \frac{1}{\sqrt{3}} (|t^+t^- \rangle - |t^0t^0 \rangle + |t^-t^+ \rangle). \quad (\text{B.14})$$

Die Wirkung eines Spinoperators auf das Triplettpaar  $|t^0t^0\rangle$  ergibt beispielsweise den Zustand  $|st^0\rangle$ , was in obiger Skizze durch Pfeile dargestellt ist.

Das Problem hierbei ist der Projektionsoperator  $|\dots\rangle\langle\dots|$ : In der Clusterentwicklung bleibt dieser auf einen Cluster beschränkt. Bei der obigen Berechnung von  $A_{13}^{zz}([100])$  ist dies offensichtlich nicht der Fall, sodass es keinen Beitrag zum Strukturfaktor gibt.

Eine Berücksichtigung anderer Cluster (z.B. eine horizontale Anordnung in obiger Skizze) ergibt ebenfalls verschwindende Beiträge, da die Wechselwirkungen zwischen den entsprechenden Dimeren (Knoten) Null sind, und damit die Entwicklung der Grundzustandswellenfunktion nach der nullten Ordnung abbricht.

Möchte man also den dynamischen Strukturfaktor für Systeme mit zwei Basisknoten berechnen, so muss man von einer dimerbasierten Clusterentwicklung abrücken und stattdessen eine größere Basiseinheit wählen, die aus zwei Dimeren unterschiedlicher Orientierung besteht. Aus technischer Sicht bedeutet dies einen tiefen Eingriff in die algorithmische Struktur, da sowohl die Clustergenerierung als auch die störungstheoretische Umsetzung modifiziert werden müssen.

## ANHANG C

### Tabellierte Störungsreihen

#### C.1 Der HEISENBERG-Antiferromagnet

##### C.1.1 Grundzustandsenergie

Die Störungsreihe der Grundzustandsenergie ist gemäß Abschnitt 2.2 eine Funktion von  $\beta$ :

$$\frac{E_0^{\text{HAFM}}}{NJ_{\text{rung}}} = \sum_{i=0}^{\infty} c_i \tilde{\alpha}_D^i \quad \text{mit} \quad \tilde{\alpha}_D = \frac{1}{4} \alpha_D. \quad (\text{C.1})$$

Die Koeffizienten  $c_i$  sind in der folgenden Tabelle angeführt:

Ordnung	$c_i$	Ordnung	$c_i$
0	-3/8	16	-334059.129812703432
1	0	17	-1140685.49266864979
2	-3/4	18	-3931722.58261071522
3	-3/4	19	-13666426.0374539575
4	-13/16	20	-47863043.4746445022
5	-89/48	21	-168762994.851510690
6	-463/96	22	-598690434.507092601
7	-81557/6912	23	-2135670834.58414745
8	-414359/12960	24	-7657047732.94669059
9	-2354594813/24883200	25	-27580232326.8520041
10	-285.250814126264575	26	-99765770884.1909779
11	-877.660177587209664	27	-362300367166.854772
12	-2782.836042926722006	28	-1320480576172.24879
13	-9016.382520776596895		
14	-29653.05637382334956		
15	-98894.54432830388665		

TABELLE C.1: Koeffizienten der Grundzustandsentwicklung für den HAFM.

### C.1.2 Dispersion

Die Dispersionsrelation des HAFM wird im Folgenden bis einschließlich sechster Ordnung angegeben. Für höhere Ordnungen (d.h. bis zur 12. Ordnung) können die Koeffizienten aufgrund endlicher Rechengenauigkeit nur als Fließkommazahlen erhalten werden. Die Dispersionsrelation ist eine Funktion in  $\alpha_D$ :

$$\omega^{(6)}(q) = \sum_{j=0}^6 \nu_j \cos(jq a), \quad (\text{C.2})$$

mit

$$\begin{aligned} \nu_0 &= 1 - \tilde{\alpha}_D^2 + 3\tilde{\alpha}_D^3 + \frac{23}{4}\tilde{\alpha}_D^4 - 12\tilde{\alpha}_D^5 + \frac{1273}{54}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_1 &= -2\tilde{\alpha}_D - 4\tilde{\alpha}_D^2 + 2\tilde{\alpha}_D^3 + 5\tilde{\alpha}_D^4 - \frac{35}{2}\tilde{\alpha}_D^5 + \frac{3121}{54}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_2 &= -\tilde{\alpha}_D^2 - 2\tilde{\alpha}_D^3 - \frac{15}{2}\tilde{\alpha}_D^4 - \frac{283}{18}\tilde{\alpha}_D^5 + \frac{79}{4}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_3 &= -\tilde{\alpha}_D^3 - \frac{16}{3}\tilde{\alpha}_D^4 - 9\tilde{\alpha}_D^5 - \frac{337}{36}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_4 &= -\frac{5}{4}\tilde{\alpha}_D^4 - \frac{67}{9}\tilde{\alpha}_D^5 - \frac{13373}{432}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_5 &= -\frac{7}{4}\tilde{\alpha}_D^5 - \frac{767}{54}\tilde{\alpha}_D^6 \\ \nu_6 &= -\frac{21}{8}\tilde{\alpha}_D^6 \quad \text{mit} \quad \tilde{\alpha}_D = \frac{1}{4}\alpha_D. \end{aligned}$$

### C.1.3 Anregungslücke

Bis zur 14. Ordnung lautet die Anregungslücke:

$$\begin{aligned} \Delta &= 1 - \frac{1}{2}\alpha_D - \frac{3}{8}\alpha_D^2 + \frac{1}{32}\alpha_D^3 - \frac{5}{384}\alpha_D^4 - \frac{761}{12288}\alpha_D^5 + \frac{18997}{1769472}\alpha_D^6 \\ &+ \frac{80686654}{26270348227}\alpha_D^7 - \frac{1266676963}{40151212588}\alpha_D^8 + \frac{416679391}{170434145890} \\ &+ \frac{218095471}{30730915869}\alpha_D^{10} - \frac{566676792}{30026089457}\alpha_D^{11} - \frac{91043455}{46798648986}\alpha_D^{12} \\ &+ \frac{51043921}{6866676949}\alpha_D^{13} - \frac{273356685}{23313049843}\alpha_D^{14}. \end{aligned} \quad (\text{C.3})$$

## C.2 Ringaustausch

### C.2.1 Dispersion

Im Folgenden geben wir die Dispersionsrelation der Spinleiter mit zusätzlichem Ringaustausch bis einschließlich sechster Ordnung an. Für höhere Ordnungen (d.h. bis zur 12. Ordnung) können die Koeffizienten aufgrund endlicher Rechengenauigkeit nur als Fließkommazahlen erhalten werden. Die Dispersionsrelation ist eine Funktion in  $\alpha_L$  und  $\alpha_R$ :

$$\omega^{(6)}(q) = \sum_{j=0}^6 \mu_j \cos(jqa), \quad (\text{C.4})$$

mit

$$\begin{aligned} \mu_0 = & 1 - 2\alpha_R - \frac{1}{4096}(\alpha_L - \alpha_R)^2 \left( -3072 + 2560\alpha_L^3 + 832\alpha_L^2 - 11456\alpha_R^2 \right. \\ & + 2048\alpha_L^4 - 4389\alpha_R^4 - 12016\alpha_R^3 - 165210\alpha_L\alpha_R^3 - 86493\alpha_L^2\alpha_R^2 - 59168\alpha_L\alpha_R^2 \\ & \left. - 13440\alpha_L\alpha_R - 4592\alpha_L^2\alpha_R - 1536\alpha_L - 7680\alpha_R + 23900\alpha_L^3\alpha_R \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_1 = & \alpha_R + \alpha_L - \frac{1}{1024}(\alpha_L - \alpha_R)^2(\alpha_L + \alpha_R) \left( 527\alpha_R^3 + 400\alpha_R^2 + 4098\alpha_L\alpha_R^2 \right. \\ & \left. + 320\alpha_R + 2575\alpha_L^2\alpha_R + 1664\alpha_L\alpha_R + 208\alpha_L^2 - 96\alpha_L^3 + 320\alpha_L + 256 \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_2 = & -\frac{1}{1024}(\alpha_L - \alpha_R)^2 \left( -256 - 256\alpha_R - 256\alpha_L - 32\alpha_L^2 - 32\alpha_R^2 + 176\alpha_L^4 \right. \\ & + 1665\alpha_R^4 - 832\alpha_L\alpha_R - 720\alpha_L^2\alpha_R - 1104\alpha_L\alpha_R^2 + 961\alpha_L^3\alpha_R - 3249\alpha_L^2\alpha_R^2 \\ & \left. + 671\alpha_L\alpha_R^3 + 208\alpha_L^3 + 592\alpha_R^3 \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_3 = & \frac{1}{256}(\alpha_L - \alpha_R)^2(\alpha_L + \alpha_R) \left( 147\alpha_R^3 + 1133\alpha_L\alpha_R^2 + 168\alpha_R^2 + 96\alpha_R \right. \\ & \left. + 153\alpha_L^2\alpha_R + 280\alpha_L\alpha_R - 24\alpha_L^2 - 81\alpha_L^3 + 32\alpha_L + 32 \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_4 = & -\frac{1}{1024}(\alpha_L - \alpha_R)^2 \left( 1079\alpha_R^4 + 2656\alpha_L\alpha_R^3 + 384\alpha_R^3 + 2098\alpha_L^2\alpha_R^2 + 80\alpha_R^2 \right. \\ & \left. + 608\alpha_L\alpha_R^2 + 96\alpha_L\alpha_R + 864\alpha_L^3\alpha_R + 448\alpha_L^2\alpha_R - 73\alpha_L^4 + 96\alpha_L^3 + 80\alpha_L^2 \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \mu_5 = & \frac{1}{128}(\alpha_L - \alpha_R)^2(\alpha_L + \alpha_R) \left( 46\alpha_R^3 + 7\alpha_R^2 + 30\alpha_L\alpha_R^2 + 2\alpha_L\alpha_R + 42\alpha_L^2\alpha_R \right. \\ & \left. + 7\alpha_L^2 + 10\alpha_L^3 \right) \end{aligned}$$

$$\mu_6 = -\frac{1}{512}(\alpha_L - \alpha_R)^2 \left( 21\alpha_R^4 + 28\alpha_L\alpha_R^3 + 30\alpha_L^2\alpha_R^2 + 28\alpha_L^3\alpha_R + 21\alpha_L^4 \right).$$



## Abbildungsverzeichnis

1.1	Einbettungen auf dem Quadratgitter . . . . .	10
1.2	Isomorphe Graphen . . . . .	14
1.3	Orbit der Automorphismsgruppe . . . . .	15
1.4	Erzeugung gefärbter Graphen . . . . .	16
1.5	Einbettungen und Symmetrieoperationen . . . . .	17
1.6	Subgraphen . . . . .	18
1.7	Spinleiter . . . . .	23
2.1	Darstellung der bilinearen und biquadratischen Wechselwirkungen . . . . .	30
2.2	Parameterraum der verallgemeinerten Spinleiter . . . . .	32
2.3	Niederenergetische Anregungen auf der SHASTRY-SUTHERLAND-Linie . . . . .	34
2.4	Grundzustandsenergie des HAFM . . . . .	37
2.5	Vergleich Clusterentwicklung und Feldtheorie . . . . .	38
2.6	Dispersion des HAFM . . . . .	39
2.7	Einheitszelle beim Übergang $\alpha_D \rightarrow 1$ . . . . .	40
2.8	Korrekturen zu den Singlett-Triplett-Übergangsstärken des HAFM . . . . .	43
2.9	Übergangsstärken des HAFM für $a/d = 8.3/5.1$ und unterschiedliche $\alpha_D$ . . . . .	44
2.10	Übergangsstärken des HAFM für $a/d = 2$ und unterschiedliche $\alpha_D$ . . . . .	44
2.11	Dispersionskurven mit $\alpha_L - \frac{1}{2}\alpha_D = \frac{3}{8}$ . . . . .	46
2.12	Verlauf der Anregungslücke . . . . .	47
2.13	Dispersionen mit Minimum bei $q_{\min} \neq 0$ . . . . .	48
2.14	Verlauf von $q_{\min}$ . . . . .	48
2.15	Größe und Lage der Anregungslücke . . . . .	49
2.16	inkommensurabler Bereich . . . . .	51
2.17	Schematische Darstellung des Ringaustausches auf einer Spinleiter . . . . .	53
2.18	Ringaustausch für $\alpha_L = 0.25$ in 14. Ordnung . . . . .	54
2.19	Ringaustausch für $\alpha_L = 0.50$ in 14. Ordnung . . . . .	54
2.20	Phasendiagramm mit Ringaustausch . . . . .	56
2.21	Kritischer Exponent . . . . .	56
2.22	Konvergenz im Phasendiagramm . . . . .	57
3.1	Wechselwirkungsstruktur für $\text{KCuCl}_3$ . . . . .	62

3.2	Reziprokes Gitter und BRILLOUIN-Zonen . . . . .	65
3.3	Dispersionskurven für $\text{KCuCl}_3$ mit effektiver Wechselwirkung . . . . .	68
3.4	Dispersionskurven für $\text{TlCuCl}_3$ mit effektiver Wechselwirkung . . . . .	68
3.5	Dispersionskurven für $\text{KCuCl}_3$ bei konstantem $J_{100}^{\text{eff}}$ . . . . .	70
3.6	Dispersionskurven für $\text{KCuCl}_3$ bei konstantem $J_{1\frac{1}{2}1\frac{1}{2}}^{\text{eff}}$ . . . . .	70
3.7	Dispersionskurven für $\text{TlCuCl}_3$ bei konstantem $J_{100}^{\text{eff}}$ . . . . .	71
3.8	Dispersionskurven für $\text{TlCuCl}_3$ bei konstantem $J_{1\frac{1}{2}1\frac{1}{2}}^{\text{eff}}$ . . . . .	71
3.9	Konvergenz der Clusterentwicklung für $\text{KCuCl}_3$ und $\text{TlCuCl}_3$ . . . . .	73
3.10	Schematische Darstellung von PHCC . . . . .	75
3.11	Effektives Modell für PHCC . . . . .	76
3.12	Einfluss der Korrekturen $\Delta(\mathbf{q})$ . . . . .	79
3.13	Dispersionskurven für PHCC . . . . .	80
3.14	Strukturfaktor für $\text{KCuCl}_3$ . . . . .	85
3.15	Strukturfaktor für $\text{TlCuCl}_3$ . . . . .	86
A.1	Anzahl Basiszustände . . . . .	94
A.2	Hashing . . . . .	95
A.3	Binäre Suche . . . . .	96
A.4	Darstellung eines Graphen . . . . .	97
A.5	Flussschema zur Koeffizientenberechnung . . . . .	99
A.6	Gittertransformation für $\text{KCuCl}_3$ . . . . .	101
A.7	Gittertransformation für PHCC . . . . .	102
B.1	System mit einem Basisknoten . . . . .	109
B.2	System mit zwei Basisknoten . . . . .	111



## Literaturverzeichnis

- [1] G. Binasch, P. Grünberg, F. Saurenbach und W. Zinn. Enhanced magnetoresistance in layered magnetic structures with antiferromagnetic interlayer exchange. *Phys. Rev. B* **39** (7), 4828 (1989).
- [2] W. Heisenberg. Mehrkörperproblem und Resonanz in der Quantenmechanik. *Z. Phys.* **38**, 441 (1926).
- [3] T. Moriya. Anisotropic superexchange interaction and weak ferromagnetism. *Phys. Rev.* **120** (1), 91 (1960).
- [4] F. D. M. Haldane. Nonlinear field theory of large-spin Heisenberg antiferromagnets: semiclassically quantized solitons of the one-dimensional easy-axis Néel state. *Phys. Rev. Lett.* **50** (15), 1153 (1983).
- [5] H. Bethe. Zur Theorie der Metalle. *Z. Phys.* **71**, 205 (1931).
- [6] O. Golinelli, Th. Jolicoeur und R. Lacaze. Finite-lattice extrapolations for a Haldane-gap antiferromagnet. *Phys. Rev. B* **50** (5), 3037 (1994).
- [7] E. Dagotto. Correlated electrons in high-temperature superconductors. *Rev. Mod. Phys.* **66** (3), 763 (1994).
- [8] S. R. White. Density matrix formulation for quantum renormalization groups. *Phys. Rev. Lett.* **69** (19), 2863 (1992).
- [9] S. R. White und D. A. Huse. Numerical renormalization-group study of low-lying eigenstates of the antiferromagnetic  $S = 1$  Heisenberg chain. *Phys. Rev. B* **48** (6), 3844 (1993).
- [10] S. R. White, R. M. Noack und D. J. Scalapino. Resonating valence-bond theory of coupled Heisenberg-chains. *Phys. Rev. Lett.* **73** (6), 886 (1994).
- [11] T. Barnes, E. Dagotto, J. Riera und E. S. Swanson. Excitation spectrum of Heisenberg spin ladders. *Phys. Rev. B* **47** (6), 3196 (1993).
- [12] S. Miyashita und S. Yamamoto. Thermodynamic properties of  $S = 1$  antiferromagnetic Heisenberg chains. *J. Phys. Soc. Jpn.* **62** (5), 1459 (1993).
- [13] M. P. Gelfand, R. R. P. Singh und D. A. Huse. Perturbation expansion for quantum many-body systems. *J. Stat. Phys.* **59**, 1093 (1990).
- [14] M. P. Gelfand. Series expansions for excited states of quantum lattice models. *Solid State Comm.* **96** (1), 11–14 (1990).

- [15] M. P. Gelfand und R. R. P. Singh. High-order convergent expansion for quantum many particle systems. *Adv. Phys.* **49** (1), 93 (2000).
- [16] T. Nikuni, M. Oshikawa, A. Oosawa und H. Tanaka. Bose-Einstein condensation of dilute magnons in  $\text{TiCuCl}_3$ . *Phys. Rev. Lett.* **84** (25), 5868 (2000).
- [17] H. Kageyama, K. Yoshimura, R. Stern, N. V. Mushnikov, K. Onizuka, M. Kato, K. Kasuge, C. P. Slichter, T. Goto und Y. Ueda. Exact dimer ground state and quantized magnetization plateaus in the two-dimensional spin system  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . *Phys. Rev. Lett.* **82** (15), 3168 (1999).
- [18] K. Onizuka, H. Kageyama, Y. Narumi, K. Kindo, Y. Ueda und T. Goto.  $1/3$  magnetization plateau in  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$  - stripe order of excited triplets -. *J. Phys. Soc. Jpn.* **69** (4), 1016 (2000).
- [19] S. Brehmer. *Niederenergetische Anregungen in eindimensionalen Quanten-Antiferromagneten*. Dissertation Universität Hannover 1998.
- [20] N. Haga und S. Suga. Dynamical structure factors of the magnetization plateau state in the  $S = 1/2$  bond-alternating spin chain with a next-nearest-neighbor interaction. *Phys. Rev. B* **65** (1), 14414 (2001).
- [21] S. Watanabe und H. Yokoyama. Transition from Haldane phase to spin liquid and incommensurate correlation in spin- $1/2$  heisenberg chains. *J. Phys. Soc. Jpn.* **68** (6), 2073–2097 (1999).
- [22] R. S. Eccleston, M. Uehara, J. Akimitsu, H. Eisaki, N. Motoyama und S. Uchida. Spin dynamics of the spin-ladder dimer-chain material  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ . *Phys. Rev. Lett.* **81** (8), 1702 (1998).
- [23] M. Takigawa, N. Motoyama, H. Eisaki und S. Uchida. Spin and charge dynamics in the hole-doped one-dimensional-chain-ladder composite material  $\text{Sr}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ : Cu NMR/NQR studies. *Phys. Rev. B* **57** (2), 1124 (1998).
- [24] K. Maghishi, S. Matsumoto, Y. Kitaoka, K. Ishida, K. Asayama, M. Uehara, T. Nagata und J. Akimitsu. Spin gap and dynamics in  $\text{Sr}_{14-x}\text{Ca}_x\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  comprising hole-doped two-leg spin ladders: Cu NMR study on single crystals. *Phys. Rev. B* **57** (18), 11533 (1998).
- [25] T. Imai, K. R. Thurber, K. M. Shen, A. W. Hunt und F. C. Chou.  $^{17}\text{O}$  and  $^{63}\text{Cu}$  NMR in undoped and hole doped  $\text{Cu}_2\text{O}_3$  two-leg spin ladder  $\text{A}_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$  ( $\text{A}_{14}=\text{La}_6\text{Ca}_8,\text{Sr}_{14},\text{Sr}_{11}\text{Ca}_3$ ). *Phys. Rev. Lett.* **81** (1), 220 (1998).
- [26] H. J. Schmidt und Y. Kuramoto. Four-spin interaction as an effective interaction in high- $T_c$  copper oxides. *Physica C* **167**, 263–266 (1990).
- [27] Y. Honda, Y. Kuramoto und T. Watanabe. Effects of cyclic four-spin exchange on the magnetic properties of the  $\text{CuO}_2$  plane. *Phys. Rev. B* **47** (17), 11329 (1993).

- [28] E. Müller-Hartmann und A. Reischel. Derivation of effective spin models from a three band model for  $\text{CuO}_2$ -planes. *cond-mat/0105392* (2001).
- [29] N. Cavadini, W. Henggeler, A. Furrer, H.-U. Güdel, K. Krämer und H. Mutka. Magnetic excitations in the quantum spin system  $\text{KCuCl}_3$ . *Eur. Phys. J. B* **7** (4), 519 (1999).
- [30] A. Oosawa, T. Kato, H. Tanaka, K. Kakurai, M. Müller und H.-J. Mikeska. Magnetic excitations in the spin-gap system  $\text{TlCuCl}_3$ . *Phys. Rev. B* **65** (9), 94426 (2002).
- [31] M. B. Stone, I. Zaliznyak, D. H. Reich und C. Broholm. Frustration-induced two-dimensional quantum disordered phase in piperazinium hexachlorodocuprate. *Phys. Rev. B* **64** (14), 144405 (2001).
- [32] L. P. Kadanoff und M. Kohmoto. Quantum mechanical ground states, nonlinear Schrödinger equations and linked cluster expansions. *J. Phys. A* **14** (6), 1291–1305 (1981).
- [33] L. G. Marland. Series expansions for the zero-temperature transverse Ising model. *J. Phys. A* **14** (8), 2047–2057 (1981).
- [34] A. C. Irving und C. J. Hammer. Methods in Hamilton lattice field theory: Linked-cluster expansion. *Nucl. Phys. B* **230**, 362–384 (1983).
- [35] S. Howes, L. P. Kadanoff und M. den Nijs. Quantum model for commensurate-incommensurate transitions. *Nucl. Phys. B* **215** (2), 169–208 (1983).
- [36] S. Trebst, H. Monien, Ch. J. Hamer, Z. Weihong und R. R. P. Singh. Strong-coupling expansion for multiparticle excitations: Continuum and bound states. *Phys. Rev. Lett.* **85** (20), 4373 (2000).
- [37] S. Trebst, H. Monien, Ch. J. Hamer, Z. Weihong und R. R. P. Singh. Linked cluster series expansion for two-particle bound states. *Phys. Rev. B* **63** (14), 144410 (2001).
- [38] R. Diestel. *Graphentheorie*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg 2000.
- [39] Th. Emden-Weinert, S. Hougardy, B. Kreuter, H. J. Prömel und A. Steger. Einführung in Graphen und Algorithmen. Skript Humboldt-Universität zu Berlin 1996.
- [40] B. D. McKay. Practical graph isomorphism. *Congressus Numerantium* **30**, 45–87 (1981).
- [41] B. D. McKay. nauty version 2.0. URL: „<http://cs.anu.edu.au/~bdm/nauty/>“ 1999.
- [42] A. S. Dawydow. *Quantenmechanik*. Ed. Dt. Verl. d. Wiss. 1992.
- [43] S. W. Lovesey. *Theory of neutron scattering from condensed matter*. Oxford University Press 1984.
- [44] T. Barnes, J. Riera und D. A. Tennant.  $S = 1/2$  alternating chain using multiprecision methods. *Phys. Rev. B* **59** (17), 11384 (1999).
- [45] C. Domb und M. S. Green. *Phase transitions and critical phenomena* volume 3. Academic Press London New York 1974.

- [46] G. A. Baker Jr. *Ad. Theo. Phys.* **1** (1) (1965).
- [47] J. G. Bednorz und K. A. Müller. Possible high  $T_c$  superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [48] A. Schilling *et al.* *Nature* **363**, 56 (1993).
- [49] J. Akimitsu. Superconductivity and magnetic properties in the spin ladder compound  $(\text{Sr,Ca})_{14}\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ . *Physica B* **259**, 1030 (1999).
- [50] E. Dagotto. The race to beat the cuprates. *Science* **293**, 2410 (2001).
- [51] J. H. Schön, M. Dorget, F. C. Beuran, X. Z. Xu, E. Arushanov, M. Laguës und C. Deville Cavellin. Field-induced superconductivity in a spin-ladder cuprate. *Science* **293**, 2430 (2001).
- [52] T. M. Rice, S. Gopalan und M. Sigrist. *Europhys. Lett.* **23**, 445 (1993).
- [53] S. Gopalan, T. M. Rice und M. Sigrist. Spin ladders with spin gaps: A description of a class of cuprates. *Phys. Rev. B* **49** (13), 8901 (1994).
- [54] D. V. Khveshchenko. Singlet pairing in the double-chain t-J model. *Phys. Rev. B* **50** (1), 380 (1994).
- [55] Z. Hiroi, M. Azuma, M. Takano und Y. Bando. *J. Solid State Chem.* **95**, 230 (1991).
- [56] S. M. Kazakov *et al.* *Physica C* **276**, 139 (1997).
- [57] N. Kobayashi, Z. Hiroi und M. Takano. *J. Solid State Chem.* **132**, 274 (1997).
- [58] B. S. Shastry und B. Sutherland. Excitation spectrum of a dimerized next-neighbour antiferromagnetic chain. *Phys. Rev. Lett.* **47** (13), 964–967 (1981).
- [59] S. Brehmer, A. K. Kolezhuk, H.-J. Mikeska und U. Neugebauer. Elementary excitations in the gapped phase of a frustrated  $S = 1/2$  spin ladder: From spinons to the Haldane triplet. *J. Phys.: Condens. Matter* **10** (5), 1103 (1998).
- [60] K. Okamoto und K. Nomura. Fluid dimer critical-point in  $S = 1/2$  antiferromagnetic Heisenberg chain with next nearest neighbor interactions. *Phys. Lett. A* **169** (6), 433 (1992).
- [61] S. Eggert. Numerical evidence for multiplicative logarithmic corrections from marginal operators. *Phys. Rev. B* **54** (14), 9612 (1996).
- [62] C. Knetter und G. S. Uhrig. Perturbation theory by flow equations: Dimerized and frustrated  $S = 1/2$  chain. *Eur. Phys. J. B* **13** (2), 209 (2000).
- [63] I. Affleck und F. D. M. Haldane. Critical theory of quantum spin chains. *Phys. Rev. B* **36** (10), 5291 (1987).
- [64] A. Luther und I. Peschel. Calculation of critical exponents in two dimensions from quantum field theory in one dimension. *Phys. Rev. B* **12** (9), 3908 (1975).

- [65] R. Chitra, S. Pati, H. R. Krishnamurthy, D. Sen und S. Ramasesha. Density-matrix-renormalization-group studies of the spin-1/2 Heisenberg system with dimerization and frustration. *Phys. Rev. B* **52** (9), 6581 (1995).
- [66] L. D. Faddeev und L. A. Takhtajan. What is the spin of a spin wave? *Phys. Lett. A* **85**, 375 (1981).
- [67] J. Des Cloizeaux und J. J. Pearson. Spin-wave spectrum of the antiferromagnetic linear chain. *Phys. Rev.* **128** (5), 2131 (1962).
- [68] M. C. Cross und D. S. Fisher. A new theory of the spin-Peierls transition with special relevance to the experiments on TTFCuBDT. *Phys. Rev. B* **19** (1), 402 (1979).
- [69] I. Affeck und J. C. Bonner. Logarithmic corrections in antiferromagnetic chains. *Phys. Rev. B* **42** (1), 954 (1990).
- [70] R. R. P. Singh und Z. Weihong. Dynamical transition from triplets to spinon excitations: A series expansion study of the  $j(1)$ - $j(2)$ - $\delta$  spin-1/2 chain. *Phys. Rev. B* **59** (15), 9911 (1999).
- [71] M. Matsuda und K. Katsumata. Magnetic excitations from the  $S = 1/2$  two-leg ladders in  $\text{La}_6\text{Ca}_8\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ . *Phys. Rev. B* **53** (18), 12201 (1996).
- [72] A. W. Garrett, S. E. Nagler, D. A. Tennant, B. C. Sales und T. Barnes. Magnetic excitations in the  $S = 1/2$  alternating chain compound  $(\text{VO})_2\text{P}_2\text{O}_7$ . *Phys. Rev. Lett.* **79** (4), 745 (1997).
- [73] S. Mori, I. Harada und T. Tonegawa. Dynamic spin correlation function of the alternating spin-1/2 antiferromagnetic chain with competing interactions. *J. Phys. Soc. Jpn.* **67** (4), 1409 (1998).
- [74] E. R. Gagliano und C. A. Balseiro. Dynamical properties of quantum many-body systems at zero temperature. *Phys. Rev. Lett.* **59** (26), 2999 (1987).
- [75] G. S. Uhrig und H. J. Schulz. Magnetic excitation spectrum of dimerized antiferromagnetic chains. *Phys. Rev. B* **54** (14), R9624 (1996).
- [76] G. Bouzerar, V. N. Kampf und G. I. Japaridze. Elementary excitations in dimerized and frustrated Heisenberg chains. *Phys. Rev. B* **58** (6), 3117 (1998).
- [77] S. Pati, R. Chitra, D. Sen, S. Ramasesha und H. R. Krishnamurthy. A comparative study of the phase diagrams of spin-1/2 and spin-1 antiferromagnetic chains with dimerization and frustration. *J. Phys.: Condens. Matter* **9** (1), 219 (1997).
- [78] J. Oitmaa, R. R. P. Singh und Z. Weihong. Quantum spin ladders at  $T = 0$  and at high temperatures studied by series expansions. *Phys. Rev. B* **54** (2), 1009 (1996).
- [79] N. Cavadini, W. Henggeler, A. Furrer, H.-U. Güdel, K. Krämer und H. Mutka. Magnetic excitations and spin gap in  $\text{KCuCl}_3$ . *Physica B* **276**, 540 (2000).

- [80] U. Schollwöck, Th. Jolicoeur und T. Garel. Onset of incommensurability at the valence-bond-solid point in the  $S = 1$  quantum spin chain. *Phys. Rev. B* **53** (6), 3304 (1996).
- [81] A. H. MacDonald, S. M. Girvin und D. Yoshioka.  $t/U$  expansion for the Hubbard model. *Phys. Rev. B* **37** (16), 9753 (1988).
- [82] A. H. MacDonald, S. M. Girvin und D. Yoshioka. Reply to "Comment on  $t/U$  expansion for the Hubbard model". *Phys. Rev. B* **41** (4), 2565 (1990).
- [83] M. Takahashi. Half-filled Hubbard-model at low-temperature. *J. Phys. C* **10** (8), 1289 (1977).
- [84] M. Roger, J. H. Hetherington und J. M. Delrieu. Magnetism in solid  $^3\text{He}$ . *Rev. Mod. Phys.* **55** (2), 1 (1983).
- [85] T. F. A. Müller, V. Anisimov, T. M. Rice, I. Dasgupta und T. Saha-Dasgupta. Electronic structure of ladder cuprates. *Phys. Rev. B* **57** (20), 665 (1998).
- [86] M. Matsuda, K. Katsumata, R. S. Eccleston, S. Brehmer und H.-J. Mikeska. Magnetic excitations from the  $S = 1/2$  two-leg ladders in  $\text{La}_6\text{Ca}_8\text{Cu}_{24}\text{O}_{41}$ . *J. Appl. Phys.* **87** (9), 6271 (2000).
- [87] S. Brehmer, H.-J. Mikeska, M. Müller, N. Nagaosa und S. Uchida. Effects of biquadratic exchange on the spectrum of elementary excitations in spin ladders. *Phys. Rev. B* **60** (1), 329 (1999).
- [88] A. K. Kolezhuk und H.-J. Mikeska. Finitely correlated generalized spin ladders. *Int. J. Mod. Phys. B* **12** (23), 2325 (1998).
- [89] T. Vekua und H.-J. Mikeska. Private Mitteilung 2002.
- [90] A. A. Nersesyan und A. M. Tsvelik. One-dimensional spin-liquid without magnon excitations. *Phys. Rev. Lett.* **78** (20), 3939 (1997).
- [91] G. S. Uhrig. Symmetry and dimension of the magnon dispersion of inorganic spin-peierls systems. *Phys. Rev. Lett.* **79** (1), 163 (1997).
- [92] A. Oosawa, H. Aruga Katori und H. Tanaka. Specific heat study of the field-induced magnetic ordering in the spin-gap system  $\text{TlCuCl}_3$ . *Phys. Rev. B* **63** (13), 134416 (2001).
- [93] A. Oosawa, M. Ishii und H. Tanaka. Field-induced three-dimensional magnetic ordering in the spin-gap system IMG. *J. Phys.: Condens. Matter* **11** (1), 265–271 (1999).
- [94] M. Oshikawa, M. Yamanaka und I. Affeck. Magnetization plateaus in spin chains: Haldane gap for half-integer spins. *Phys. Rev. Lett.* **78** (10), 1984 (1997).
- [95] A. K. Kolezhuk. Magnetization plateaus in weakly coupled dimer spin system. *Phys. Rev. B* **59** (6), 4181 (1999).

- [96] R. D. Willett, C. Dwiggin, R. F. Kruh und R. E. Rundle. Crystal structures of  $\text{KCuCl}_3$  and  $\text{NH}_4\text{CuCl}_3$ . *J. Chem. Phys.* **38** (10), 2429 (1963).
- [97] H. Tanaka, A. Oosawa, T. Kato, H. Uekusa, Y. Ohashi, K. Kakurai und A. Hoser. Observation of field-induced transverse neel ordering in the spin gap system  $\text{TiCuCl}_3$ . *J. Phys. Soc. Jpn.* **70** (4), 939 (2001).
- [98] H. Tanaka, K. Takatsu, W. Shiramura und T. Ono. Singlet ground state and excitation gap in the double spin chain system  $\text{KCuCl}_3$ . *J. Phys. Soc. Jpn.* **65** (7), 1945 (1996).
- [99] T. Nakamura und K. Okamoto. Theoretical analysis of the experiments on the double-spin-chain compound  $\text{KCuCl}_3$ . *Phys. Rev. B* **58** (5), 2411 (1998).
- [100] W. Shiramura, K. Takatsu, H. Tanaka, K. Kamishima, M. Takahashi, H. Mitamura und T. Goto. High-field magnetization processes of double spin chain systems  $\text{KCuCl}_3$  and  $\text{TiCuCl}_3$ . *J. Phys. Soc. Jpn.* **66** (7), 1900 (1997).
- [101] K. Takatsu, W. Shiramura, H. Tanaka, T. Kambe, H. Norjiri und M. Motokawa. ESR of quantum double-spin-chain systems  $\text{KCuCl}_3$  and  $\text{TiCuCl}_3$ . *J. Magn. Matter* **177**, 697 (1998).
- [102] T. Kato, K. Takatsu, H. Tanaka, W. Shiramura, M. Mori, K. Nakajima und K. Kakurai. Magnetic excitations in the spin gap system  $\text{KCuCl}_3$ . *J. Phys. Soc. Jpn.* **67** (3), 752 (1998).
- [103] N. Cavadini, G. Heigold, W. Henggeler, A. Furrer, H.-U. Güdel, K. Krämer und H. Mutka. Quantum magnetic interactions in  $S = 1/2$   $\text{KCuCl}_3$ . *J. Phys.: Condens. Matter* **12** (25), 5463 (2000).
- [104] H.-J. Mikeska und M. Müller. On the dynamics of coupled  $S = 1/2$  antiferromagnetic zigzag chains. *J. Phys.: Condens. Matter* **12** (34), 7633 (2000).
- [105] B. Leuenberger, A. Stebler, H.-U. Güdel, A. Furrer, R. Feile und J. K. Kjems. Spin dynamics of an isotropic singlet groundstate antiferromagnet with alternating strong and weak interactions - an inelastic neutron scattering study of the dimer compound  $\text{Cs}_3\text{Cr}_2\text{Br}_9$ . *Phys. Rev. B* **30** (11), 6300 (1984).
- [106] Z. Weihong, C. J. Hamer und J. Oitmaa. Series expansions for a Heisenberg antiferromagnetic model for  $\text{SrCu}_2(\text{BO}_3)_2$ . *Phys. Rev. B* **60** (9), 6608 (1999).
- [107] Z. Weihong, J. Oitmaa und C. J. Hamer. Phase diagram of the Shastry-Sutherland antiferromagnet. *Phys. Rev. B* **65** (1), 14408 (2001).
- [108] N. Suzuki, Y. Fujimoto und S. Kokado. Theory of magnetic excitations of spin-pair system  $\text{KCuCl}_3$ . *Physica B* **284**, 1567 (2000).
- [109] Ch. Waldtmann. *Numerische Untersuchungen des Heisenberg-Antiferromagneten auf dem Kagomé-Gitter und einer Kagomé-ähnlichen Leiter*. Dissertation Universität Hannover 1999.





## Index

- Adjazenzmatrix, 13
- Automorphismus, 14
- Basisknoten, 109
- Cluster, 9
- Clusterentwicklung, 5
- Clusterhamiltonian, 9
- Dimerbasis, 31
- Dimerspins, 65
- Dlog<sup>2</sup>-Padé-Approximante, 28
- Dlog-Padé-Approximante, 28
- effektiver HAMILTON-Operator, 11
- effektives Modell, 65
- Einbettung, 8
- erweiterte Darstellung, 64
- finite-size-scaling, 5
- Fluktuations-Dissipations-Theorem, 22
- Formel von CAUCHY-HADAMARD, 27
- Gesamtspin, 31
- Gewicht, 7
- Gitterkonstante, 7
- Graph, 7
- inkommensurabel, 48
- Isomorphismus, 14
- Kante, 13
- Kantenfärbung, 17
- Knoten, 13
- Konsistenzprüfung, 9
- Konvergenzradius, 27
- LIFSHITZ-Punkt,-Linie, 49
- Linked-Cluster-Theorem, 10
- Magnetisierung, 31
- Methode der kleinsten Quadrate, 67
- Ordnung (eines Graphen), 13
- Padé-Approximante, 27
- Padé-Approximante, defekte, 28
- Plateau, 60
- Random Phase Approximation, 45
- Singlett, 31
- Singlett-Triplett-Übergangsstärke, 23
- Spinflipoperator, 30
- Spinonen, 33
- Subcluster, 9
- Subcluster-Subtraktion, 9
- Subeinbettung, 9
- Triplett, 31
- Unordnungspunkt,-linie, 48
- vollständige Dispersionsrelation, 45
- Wellenzahl, 31
- Zickzackkette, 32



## Danksagungen

An dieser Stelle möchte ich mich zunächst bei Prof. Dr. H.-J. Mikeska für die Vergabe des Themas, die vielen wertvollen Anregungen und den großen Freiraum bei der Erstellung der Arbeit bedanken. Für die Ermöglichung der Sommerschule in Zuoz bin ich ihm sehr dankbar. Mein besonderer Dank gilt A. K. Kolezhuk, der während seiner Forschungsaufenthalte in Hannover durch vielfältige Hinweise und Diskussionen sehr zum Gelingen der Arbeit beigetragen hat.

Weiterhin bedanke ich mich bei A. Oosawa und H. Tanaka für die Zusammenarbeit und die Bereitstellung der INS-Daten für  $\text{TlCuCl}_3$ .

Danken möchte ich auch N. Cavadini, Ch. Rüegg und M. Stone für die Überlassung der INS-Daten für  $\text{KCuCl}_3$  bzw. PHCC.

Bei A. Bernert bedanke ich mich für die zeitweilige Einrichtung eines Rechenaccounts am MPI-PKS in Dresden.

Ich möchte mich auch bei S. Trebst und N. Elstner für die vielen Hinweise im Anfangsstadium der Arbeit bedanken, insbesondere für die Tipps bei der Charakterisierung ungefärbter Graphen.

C. Sobiella und M. Stahlsmeier danke ich für die vielen Diskussionen und das sorgfältige Korrekturlesen dieser Arbeit.

Schließlich danke ich meinen Eltern für die Unterstützung während meines Physikstudiums.



## Lebenslauf

<b>Geburtsdatum/-ort</b>	10. Juli 1972 in Hildesheim
<b>Schulbildung</b>	
07/1979 – 06/1983	Grundschule Bockenem
08/1983 – 07/1985	Orientierungsstufe Bockenem
08/1985 – 06/1992	Scharnhorst Gymnasium Hildesheim
05/1992	Abschluß mit Abitur
<b>Wehrdienst</b>	
07/1992 – 09/1992	Grundwehrdienst Luftwaffenausbildungsregiment 1 in Hamburg
10/1992 – 09/1993	Wehrdienst am Lufttransportgeschwader 62 in Wunstorf
<b>Hochschulbildung</b>	
10/1993 – 12/1998	Studium der Physik an der Universität Hannover
10/1995	Diplomvorprüfung
11/1997 – 10/1998	Diplomarbeit am Institut für Theoretische Physik der Universität Hannover bei Prof. Dr. H.-J. Mikeska Thema: „Elementaranregungen in Spinleitern“
12/1998	Abschluß mit Diplom
seit 01/1999	Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Theoretische Physik der Universität Hannover
<b>Veröffentlichungen</b>	
	S. Brehmer, H.-J. Mikeska, M. Müller, N. Nagaosa und S. Uchida: „Effects of biquadratic exchange on the spectrum of elementary excitations in spin ladders“, <i>Phys. Rev. B</i> <b>60</b> (1), 329 (1999).
	H.-J. Mikeska und M. Müller: „On the dynamics of coupled $s = 1/2$ antiferromagnetic zigzag chains“, <i>J. Phys.: Condens. Matter</i> <b>12</b> (34), 7633 (2000).
	A. Oosawa, T. Kato, H. Tanaka, K. Kakurai, M. Müller und H.-J. Mikeska: „Magnetic excitations in the spin-gap system $\text{TlCuCl}_3$ “, <i>Phys. Rev. B</i> <b>65</b> (9), 94426 (2002).