

Spindynamik im Schwedenborgit $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$: Untersuchung mit Neutronenstreuung und Spinwellentheorie

von

Johannes Reim

Diplomarbeit in Physik

vorgelegt der

Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften
der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen

im

August 2011

angefertigt am

Jülich Centre for Neutron Science JCNS und Peter Grünberg Institut PGI -
Streumethoden
Forschungszentrum Jülich

Dr. Werner Schweika

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie Zitate kenntlich gemacht habe.

Aachen, den 16.08.2011

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	7
2	Theoretische Grundlagen	11
2.1	Grundlagen des Magnetismus	11
2.1.1	Grundbegriffe	11
2.1.2	Geometrische Frustration	13
2.1.3	Das Heisenberg Modell	16
2.2	Spinwellentheorie	17
2.2.1	Quantenmechanische Beschreibung	18
2.2.2	Holstein Primakoff Transformation	20
2.2.3	Bogoliubov Transformation	22
2.3	Neutronenstreuung	22
2.3.1	Elastische Streuung	23
2.3.2	Magnetische Streuung	25
2.3.3	Inelastische Streuung an Spinwellen	26
2.4	Monte Carlo Simulation	27
2.4.1	Grundzustand und Ergodizität	29
2.4.2	Funktionen zur Analyse	30
2.4.3	Bestimmung thermischer Mittelwerte und Phasendiagramm	31
2.5	Simulation der Spinwellendynamik	33
2.5.1	Numerische Simulation	33
2.5.2	Fouriertransformation in Raum und Zeit	34
3	Experimentelles	35
3.1	Proben	35
3.2	Dreiachsenspektrometer: PANDA	35
3.3	Flugzeitspektrometer: ARCS	38
3.3.1	Messung des inelastischen Spektrums	40
3.3.2	Lauemessung	42
4	Phasenübergänge	45
4.1	Monte Carlo Simulationen	45
4.1.1	Phasendiagramm für J_2 gegen J_1	45
4.1.2	Phasendiagramm für T gegen J_2/J_1	51
4.2	Zusammenfassung der Ergebnisse	54
5	Spinwellendynamik	57
5.1	Neutronenstreuexperimente	57
5.1.1	PANDA: Spinwellendispersion entlang der Symmetrierichtungen	57
5.1.2	ARCS: Der Raum der Spinwellenanregungen	61

5.2	Spinwellenrechnung	68
5.3	Spinwellensimulation	79
6	Diskussion und Vergleich der Ergebnisse zur Spinwellendynamik	81
7	Zusammenfassung	87
A	Literaturverzeichnis	91
B	Zusätzliche Abbildungen	95
C	Abbildungsverzeichnis	97
D	Formen des Magnetismus	103
E	Grundzüge der Kristallographie und diesbezügliche Ergebnisse	107
F	Erzeugung von Neutronen	111
G	Temperaturabhängigkeit der magnetischen Streuung	113
H	Nebenrechnungen zur Spinwellenrechnung	117
I	Mathematicaskript zur Berechnung der Eigenwerte	129
J	Pythoncode für die Spinwellensimulation	133

Kapitel 1

Einleitung

In dem Bestreben den Magnetismus innerhalb von magnetischen Systemen zu verstehen, stieß man schon 1950 [Wan50] auf einen Effekt, der 1977 von Toulouse [Tou77] mit der Bezeichnung „magnetische Frustration“ versehen wurde. Eine besondere Form dieser ist die geometrische Frustration, bei der die geometrischen Eigenschaften eines Kristallgitters die entsprechend den Wechselwirkungen bevorzugte Anordnung verhindern. Zu einem beachtlichen Interesse kam es durch eine Publikation von Elser [Els89], in der er zeigte, dass die antiferromagnetisch gekoppelten Momenten einer ungeordneten Spinflüssigkeit einen Grundzustand ausbilden. Eine besondere Struktur, die in den Fokus der Untersuchung trat, ist das Kagomegitter. Diese nach einer japanischen Webart benannte Gitterstruktur findet sich zum Beispiel in der Materialklasse der Pyrochlore, bei denen Auswirkungen der geometrischen Frustration wie Spinflüssigkeit, Spineis oder magnetische Monopole [TKM⁺06, CMS08, FDW⁺09] studiert werden.

Eine relativ neue Materialklasse, die solche Kagomegitter besitzt, sind die cobalt- und eisen-

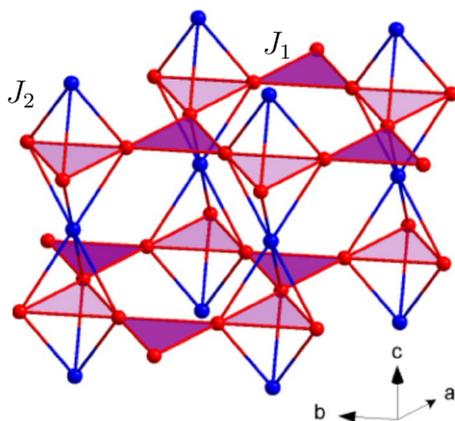


Abbildung 1.1: Strukturbild der magnetischen Ionen im Schwedenborgit. Unterscheidung nach der Wechselwirkung nach der in der Ebene J_1 zwischen zwei roten Ionen und aus der Ebene J_2 zwischen einem roten und einem blauen Ion. Die blauen Ionen bilden die trigonale Ebene und die roten die Kagomeebene. Nach [KMMC10].

basierten Schwedenborgite (vgl. Abbildung 1.1) und so lässt sich vermuten, dass auch hier eine Vielfalt neuer Effekte beobachtet werden kann. Als Stellvertreter dieser Klasse seien hier die isostrukturellen Verbindungen YBaCo_4O_7 , $\text{Y}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{BaCo}_4\text{O}_7$, $\text{YBaCo}_3\text{FeO}_7$ und $\text{CaBaFe}_4\text{O}_7$ genannt. Die bisherigen Ergebnisse zeigen ein sehr vielschichtiges Bild der Ordnung, jedoch ist allen gemeinsam, dass sie eine starke antiferromagnetische Kopplung und Frustration aufweisen. Die Wechselwirkungen in diesen Verbindungen wurden ganz allgemein durch Khalyavin [KMMC10] mit einem einfachen Heisenberg nächst-Nachbar Modell beschrieben. Dabei unterscheidet er zwischen der Wechselwirkung J_1 in und J_2 aus der Ebene (vgl. Abbildung 1.1).

Unter Verwendung der „mean-field“-Theorie erstellte er ein Phasendiagramm für $T = 0$ in Abhängigkeit dieser beiden Parameter (siehe Abbildung 1.2), in dem Bereiche mit geordneten und ungeordneten Strukturen gekennzeichnet sind. Dies mag eine erste Erklärung für die Ergebnis-

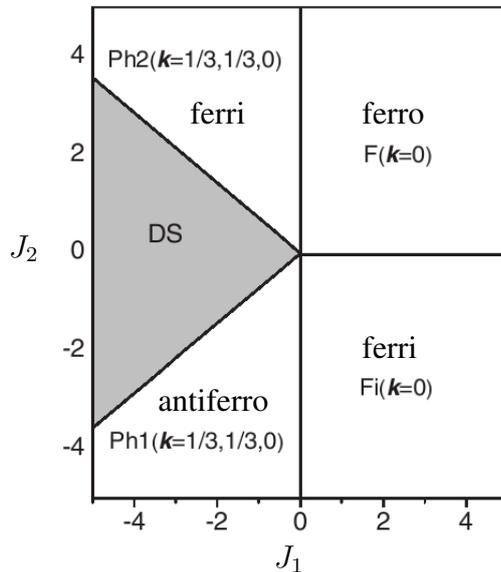


Abbildung 1.2: Phasendiagramm unter Abhängigkeit von den Austauschwechselwirkungsparametern J_1 und J_2 . Kennzeichnung der Art der jeweiligen Ordnung. DS bezeichnet einen ungeordneten Bereich. Nach [KMMC10].

se der Untersuchung der vorgestellten Verbindungen bieten. Betrachtet man z.B. die bisherigen Ergebnisse zu dem Material YBaCo_4O_7 , so zeigt sich, dass die Untersuchung keine eindeutigen Ergebnisse zu liefern scheint. So postuliert Chapon [CRZM06] eine langreichweitige, Soda jedoch eine kurzreichweitige Ordnung [SYM⁺06], oder es existiert, nach Manuel [MCR⁺09], nur eine quasi eindimensionale Ordnung. Für das zweite Material wurde wiederum eine zwei- [SVL07] und dreidimensionale kurzreichweitige Ordnung [SEM⁺11] gefunden. Die Schwierigkeit ist hier, dass selbst leichte Verunreinigungen oder Abweichungen von der Sauerstoffstöchiometrie, signifikante Unterschiede erzeugen können. Es ist erstaunlich, dass die für das einfachste Modell $J_1, J_2 < 0$ postulierte antiferromagnetische Ordnung (siehe Abbildung 1.2) bei keiner dieser Verbindungen beobachtet werden konnte. Hierbei zeigt sich die Besonderheit des in dieser Diplomarbeit untersuchten $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$, das unterhalb einer Neeltemperatur von $T_N \approx 160\text{K}$ in eben dieser Phase dreidimensional ordnet.

Das Ziel dieser Diplomarbeit ist die Messung der Spinwellendynamik mit Neutronenstreuung und eine vergleichende Berechnung auf der Grundlage des Modellhamiltonians mit den Austauschwechselwirkungen J_1 und J_2 . Dazu lässt sich aus den Ergebnissen der makroskopischen Messungen in der Diplomarbeit von Erik Rosén [Ros11] mit einer groben Näherung ein J_{eff} berechnen, um die Größenordnung einzuschränken. Betrachtet man als nächstes die in dem Artikel von Khalyavin mit Monte Carlo Simulation berechneten Streubilder (siehe Abbildung 1.3), so zeigen diese eine deutliche Abhängigkeit vom Verhältnis J_2/J_1 auf. So lässt sich $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ grob ein Verhältnis von $J_2/J_1 > 0.75$ zuordnen. Diese Ergebnisse sollen dann durch die Untersuchung der Spindynamik verfeinert werden. Letzteres Vorgehen ist die prinzipiell typische Methode zur Bestimmung der magnetischen Kopplung und wurde bei der Schwedenborgitstruktur noch nicht angewandt. Um das Anregungsspektrum der Spinwellen umfassend zu messen, werden zwei komplementäre inelastische Neutronenstreuexperimente durchgeführt. Das erste Experiment fand am kalten Dreiachsenspektrometer PANDA statt, bei

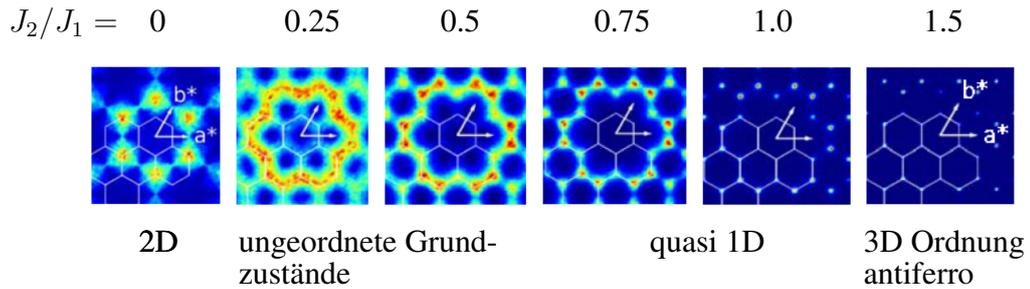


Abbildung 1.3: Entsprechend den Verhältnissen simulierte Streubilder und das resultierende Ordnungsverhalten. Aus [KMMC10].

dem die niedrigen Energiebereiche mit hoher Auflösung untersucht werden können, und das zweite am Flugzeitspektrometer ARCS, bei dem sowohl sehr hohe Energiebereiche als auch ein breiter Bereich des Q -Raums messbar sind. Zu Beginn der Diplomarbeit waren die drei Tage Messzeit am PANDA schon genehmigt. Die Genehmigung für drei weitere Messtage an ARCS wurde jedoch erst im Verlauf der Arbeit gegeben. Somit waren genaue Überlegungen zur Nutzung dieser Messzeit notwendig. Um die Experimente optimal zu nutzen, wurden an Panda die Spinwellenanregungen entlang der relevanten Hauptsymmetrierichtungen vermessen und an ARCS vor allem Wert auf die Anregungen bei sehr hohen Energien gelegt. Die an ARCS verwendete Untersuchungsmethode wurde bisher mit wenigen Ausnahmen [DMM⁺11] nur für zweidimensionale Systeme angewandt. Vor allem bei der Analyse wird deutlich, dass die notwendigen Auswertungsprogramme sich noch in der Entwicklung befinden. Zur theoretischen Beschreibung der Dispersionsrelationen wurde die lineare Spinwellentheorie angewandt. Da sich der für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ ermittelte Grundzustand [Ros11] jedoch aus Elementarzellen bestehend aus 24 nicht kollinearen Spins zusammensetzt, ist der Aufwand für diese Aufgabe entsprechend hoch.

Bei der Messung an PANDA wurde eine sehr starke Dämpfung der Spinwellen festgestellt. Deshalb war nicht mehr sichergestellt, ob die mit linearer Spinwellentheorie berechneten Dispersionen das Anregungsspektrum ausreichend beschreiben können. Deshalb wurde, parallel zur Spinwellenrechnung, entsprechend von Anregungen durch die Doktorarbeit von Julien Robert [Rob07] zusätzlich eine numerische Simulation entwickelt, die wiederum auf den Ergebnissen der Monte Carlo Simulation aufbaut. Der Vorteil einer solchen numerischen Simulation ist, dass Anharmonizitäten wie die Dämpfung automatisch berücksichtigt werden.

Auf Grund der Verwendung dieser verschiedenen Methoden ergibt sich eine sehr umfangreiche Beschreibung der Spindynamik in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Die zum Verständnis notwendige Theorie wird in Kapitel 2 aufgearbeitet. Danach werden im Kapitel 3 die Proben charakterisiert und die Funktionsweise sowie die Durchführung der Neutronenexperimente erläutert. Die Ergebnisse aus den Monte Carlo Simulationen bezüglich der Phasenübergänge findet sich dann in Kapitel 4. In Kapitel 5 wird die Spinwellendynamik sowohl von der experimentellen als auch theoretischen Seite betrachtet und im darauffolgenden Kapitel 6 werden diese Ergebnisse miteinander in Verbindung gebracht. Im Anhang befindet sich neben den Nebenrechnungen zur Spinwellenrechnung (Anhang H) auch Grundsätzliches zu den Formen des Magnetismus (Anhang D) und der Neutronenerzeugung (Anhang F). Außerdem werden kurz die verwendeten Definitionen der Kristallographie aufgegriffen und die bisherigen Ergebnisse zu der Kristallstruktur von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ präsentiert (siehe Anhang E).

Kapitel 2

Theoretische Grundlagen

Sowohl magnetische Phasenübergänge als auch die Spindynamik treten ausschließlich in magnetischen Materialien auf. Deshalb wird als erstes ein Überblick über die Grundlagen des Magnetismus gegeben. Für eine ausführlichere Beschreibung mit der Ausrichtung auf das Thema Spinwellen sei hier auf [SP09] verwiesen. Darüber hinaus werden dann die Grundlagen der Spinwellentheorie geklärt. Darauf folgt ein kurzer Einblick in die Funktionsweise der Neutronenstreuung und im Anschluss wird dann das Prinzip der Monte Carlo Simulation erklärt. Das letzte Unterkapitel beschäftigt sich mit dem Aufbau einer numerischen Spinwellensimulation. Da die Bandbreite der verwendeten Theorie sich sehr weit spannt, ist es nicht möglich und auch gar nicht gewünscht jedes Gebiet in völliger Gänze zu erklären. Es wird deshalb versucht die zum Verständnis notwendigen Schritte aufzuzeigen und die relevanten Ergebnisse zu präsentieren. An geeigneter Stelle wird dann auf weiterführende Lektüre verwiesen.

2.1 Grundlagen des Magnetismus

In diesem Unterkapitel werden zuerst die Grundbegriffe des Magnetismus erklärt, um dann auf den Effekt der geometrischen Frustration einzugehen. Nach dieser Vorbereitung wird dann das zur Beschreibung der magnetischen Korrelationen verwendete Modell erläutert. Eine grundsätzliche Erklärung zu den Formen des Magnetismus findet sich in Anhang D.

2.1.1 Grundbegriffe

Materialien, die permanent magnetische Ionen besitzen, können durch die Orientierung der Ionen spins eine langreichweitige Ordnung ausbilden. Diese langreichweitige Ordnung kann beim Ferromagneten makroskopisch anhand der Summe der Spins pro Einheitsvolumen beschrieben werden, dies nennt man das makroskopische Moment pro Einheitsvolumen \mathbf{M} oder auch die Magnetisierung. Für den Antiferromagneten verschwindet die Magnetisierung gerade. Die langreichweitige Ordnung kann dann aber über die Untergittermagnetisierung beschrieben werden. Die Art und Weise, wie die Magnetisierung eines Materials auf ein äußeres Feld \mathbf{H} reagiert, wird beschrieben durch die magnetische Suszeptibilität $\bar{\chi}$ und die Größen hängen zusammen über:

$$\mathbf{M} = \mathbf{M}_0 + \bar{\chi} \cdot \mathbf{H}, \quad (2.1)$$

wobei \mathbf{M}_0 als die Magnetisierung des Materials in Abwesenheit eines magnetischen Felds definiert ist. Anzumerken ist, dass $\bar{\chi}$ im Allgemeinen durch einen Tensor 2. Stufe dargestellt wird

und nur für isotropische Materialien reduziert sich dieser zu einem Skalar. Dieses lineare Gesetz ist aber nur für kleine, angelegte Felder gültig. Die verschiedenen Komponenten, aus denen die Suszeptibilität aufgebaut ist, lassen sich in folgende Formen des Magnetismus unterteilen: Dia-, Para-, Ferro-, Ferri- und Paramagnetismus. Diese werden im Anhang D genauer betrachtet. Doch zunächst soll der Ursprung des Magnetismus etwas genauer betrachtet werden. So stellt man fest, dass nahezu die vollständigen magnetischen Eigenschaften von der orbitalen Bewegung und den Spins der Elektronen herrühren. Der Anteil der nuklearen Spins ist um einen Faktor 1000 geringer. Somit ist direkt klar, dass zu einer Beschreibung des Magnetismus die klassische Physik nicht ausreicht (Bohr und van Leeuwen), sondern die Quantenmechanik notwendig ist. Diese wird vor allem dann unabdingbar, wenn man sich mit der Spinwellentheorie beschäftigt. Ansonsten gelingt es auch klassische bzw. semi-klassische Modelle zu erstellen, die eine gute Beschreibung der makroskopischen Effekte liefern¹. So lassen sich über Analogien zu klassischen Problemen, wie z.B. dem Vergleich der Bewegung eines Spins mit der eines Kreisels, analoge Gesetzmäßigkeiten finden. Stellt man sich eine sehr dünne stromdurchflossene Leiterschleife in einem magnetischen Feld vor, so ist das resultierende magnetische Moment definiert als:

$$\boldsymbol{\mu} = IA\hat{\mathbf{n}} \quad (2.2)$$

mit $\hat{\mathbf{n}}$ als Normalenvektor der Kreisfläche ist $\boldsymbol{\mu}$ entsprechend der "Rechten-Hand-Regel" ausgerichtet. Als Zusammenhang zwischen magnetischem Moment und Drehmoment \mathbf{J} ergibt sich mit dem gyromagnetischen Verhältnis γ :

$$\boldsymbol{\mu} = \gamma\mathbf{J}. \quad (2.3)$$

In Analogie zum Kreisel erhält man dann als Bewegungsgleichung:

$$\frac{d\mathbf{J}}{dt} = \gamma\mathbf{J} \times \mathbf{B}, \quad (2.4)$$

wobei \mathbf{B} die magnetische Flussdichte von der magnetischen Feldstärke \mathbf{H} ist. Damit präzediert das Moment um die Richtung der magnetischen Flussdichte. Die Frequenz der Rotation ist proportional zu \mathbf{B} und wird Larmorfrequenz genannt:

$$\omega_L = |\gamma\mathbf{B}|. \quad (2.5)$$

Wie zuvor erwähnt, wird das magnetische Moment und somit auch das Drehmoment von den Elektronen hervorgerufen. Dieses lässt sich aber noch in zwei Teile separieren: das Bahndrehmoment \mathbf{L} und das Spindrehmoment \mathbf{S} :

$$\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S} \quad (2.6)$$

Das Bahndrehmoment lässt sich klassisch beschreiben durch $\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mathbf{p}$, mit dem Vektor \mathbf{r} zur Position des Elektron und dem Impuls \mathbf{p} . Das Spindrehmoment ist aber ein rein quantenmechanischer Effekt ohne klassische Analogie. Um dies also letztlich beschreiben zu können, benötigt man nun den vollständigen quantenmechanischen Operatorformalismus. Davon kann hier nur das Nötigste dargelegt werden. Für eine ausgiebige Beschreibung sei auf [SP09] verwiesen. Im Wesentlichen werden Teilchen durch Wellenfunktionen beschrieben, und unter Anwendung des geeigneten Operators erhält man die jeweilige Eigenschaften. Hierbei muss zwischen der

¹Bei der Betrachtung eines makroskopischen Materials nähert sich auf Grund der daraus folgende große Anzahl an gequantelten Spins die Gesamtwirkung der klassischen Beschreibung an.

Darstellung im Orts- und Impulsraum unterschieden werden. Denn je nach gewünschter Betrachtung muss entweder \mathbf{p} (im Ortsraum) durch $\frac{\hbar}{i}\nabla_{\mathbf{r}}$ oder \mathbf{r} (im Impulsraum) durch $i\hbar\nabla_{\mathbf{p}}$ ersetzt werden. Grundlegend ist hier die Heisenbergsche Unschärferelation, nach der nicht Ort und Impuls bzw. Energie und Zeit gleichzeitig scharf gemessen werden können. Demzufolge wird von Operatoren nur der Erwartungswert betrachtet.

Untersucht man nun das Drehmoment \mathbf{L} in der Quantenmechanik, wird folgende Ersetzung vorgenommen:

$$\mathbf{L} = \mathbf{r} \times \mathbf{p} \xrightarrow{QM} \mathbf{L} = \mathbf{r} \times \frac{\hbar}{i}\nabla_{\mathbf{r}}. \quad (2.7)$$

In Komponenten geschrieben erhält man:

$$L_x = \frac{\hbar}{i} \left(y \frac{\partial}{\partial z} - z \frac{\partial}{\partial y} \right) \quad (2.8)$$

$$L_y = \frac{\hbar}{i} \left(z \frac{\partial}{\partial x} - x \frac{\partial}{\partial z} \right) \quad (2.9)$$

$$L_z = \frac{\hbar}{i} \left(x \frac{\partial}{\partial y} - y \frac{\partial}{\partial x} \right) \quad (2.10)$$

Nun da das Drehmoment in die quantenmechanische Schreibweise überführt wurde, wird postuliert, dass diese Gleichungen ebenso für das hier relevante Spinnmoment \mathbf{S} gelten. Dies ist der Ausgangspunkt für die Spinwellentheorie. Dort wird die Entwicklung der Operatoren zur Beschreibung von Spins und deren Wechselwirkung fortgesetzt. Zur Klärung weiterer wichtiger Begrifflichkeiten sind im Anhang D kurze Erläuterungen zu den verschiedenen Formen des Magnetismus aufgeführt.

Ergebnisse zu $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ In der Diplomarbeit von Erik Rosén wurde durch Messungen der Suszeptibilität Folgendes festgestellt: Bei der Messung bei hohen Temperaturen zeigt sich ein lineares Verhalten der reziproken Suszeptibilität in Bezug auf die Temperatur. Die daraus bestimmte Weiss-Temperatur $\theta \approx -1542 \pm 117\text{K}$ weist auf eine starke antiferromagnetische Kopplung hin. Hieraus lässt sich die effektive Austauschwechselwirkung zwischen nächsten-Nachbarn mit folgender Formel, hergeleitet aus der "mean field" Theorie (siehe [BN05]), bestimmen:

$$\theta = \frac{3}{2} \left[\frac{2JS(S+1)}{3k_B} \right] \Leftrightarrow J = \frac{\theta k_B}{S(S+1)} \quad (2.11)$$

Die magnetischen Elemente in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ sind Cobalt ($S = \frac{3}{2}$) und Eisen ($S = \frac{5}{2}$). Für einen angenommen Spin von $S = \frac{3}{2}$ bestimmt sich die Austauschwechselwirkung zu $J_{eff} \approx 35\text{meV}$. Aus der Messung bei tiefen Temperaturen ließ sich die Néeltemperatur zu $T_N \approx 161\text{K}$ bestimmen. Dies wurde durch die Messung der spezifischen Wärme bestätigt. Das Verhältnis von $\frac{-\theta}{T_N} \approx 10$ weist auf eine starke Frustration im Kristall hin [Ram94], auf die als nächstes genauer eingegangen wird.

2.1.2 Geometrische Frustration

Die Frustration ist das vorherrschende Charaktermerkmal der antiferromagnetisch gekoppelten Momente im Schwedenborgit und ist die Ursache für magnetische Effekte, deren Untersuchung

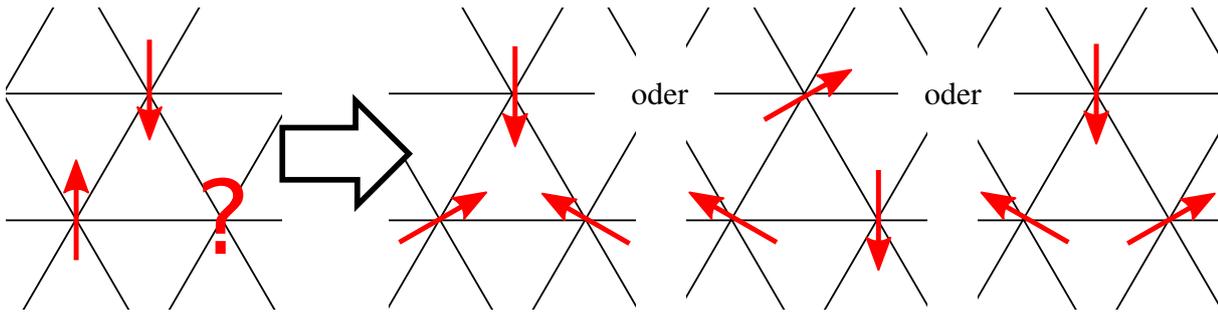


Abbildung 2.1: Geometrische Frustration bei einem antiferromagnetischen Dreiecksgitter und Übergang zu einem energieminimierenden Zustand.

von besonderem aktuellem Interesse ist. Im Allgemeinen bezieht sich frustrierter Magnetismus auf ein magnetisches System, in dem kein Zustand existiert, in dem gleichzeitig alle Wechselwirkungen vollständig erfüllt werden können. Das trifft z.B. auch auf Systeme zu, in denen eine ferromagnetische Kopplung zwischen benachbarten Spins und eine antiferromagnetische zwischen übernächsten Nachbarn existiert. Hierbei ist das System frustriert, weil diese beiden Kopplungen gegeneinander arbeiten. Bei $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ geht es aber um Frustration, die allein auf der Geometrie des Gitters beruht.

Ein einfaches Beispiel dafür ist ein Antiferromagnet mit einer Dreiecksgitterstruktur. Ausreichend für geometrische Frustration ist dann ein einzelnes Dreieck mit einem Spin auf jeder Ecke. Entsprechend den Anforderungen durch den Antiferromagnetismus müssten die Spins alle antiparallel ausgerichtet werden (vgl. Abbildung 2.1). Dies kann offensichtlich für den dritten Spin nicht gelingen und gilt folgerichtig für jedes Dreieck im Gitter. Das System befindet sich dann in seinem energieminimierenden Zustand, wenn über die gesamte Wechselwirkung zwischen den Spins gemittelt wird. Das ergibt sich, wenn alle Spins im Winkel von 120° zueinander stehen. Dann besitzt jede Bindung die Hälfte der Bindungsenergie einer typischen antiferromagnetischen Bindung. Gleichzeitig wird an der Voraussetzung für die Orientierung der Spins deutlich, dass es nicht mehr genau einen Grundzustand gibt, da die Spins gemeinsam rotieren können. Somit ist der Grundzustand degeneriert (es existieren mehrere energieminimierende Zustände, vgl. Abbildung 2.1).

Beim Kagomegitter bilden die Kanten eines regelmäßigen Sechsecks wieder jeweils eine Kante eines gleichseitigen Dreiecks. Das Sechseck ist an sich erst einmal nicht frustriert, sondern die Frustration entsteht wieder auf den Dreiecken. Durch die Entartung des Grundzustands bleibt die Entropie selbst beim absoluten Nullpunkt endlich. Das bedeutet, dass das Ausbilden einer langreichweitigen Ordnung erschwert wird. Vergleicht man die resultierenden Variationsmöglichkeiten des Grundzustands auf dem Dreiecks- und Kagomegitter, so zeigt sich, dass, sobald die Ausrichtung von zwei benachbarten Spins auf dem Dreiecksgitter festgelegt worden ist, ist damit auch die Ausrichtung aller weiteren Spins fixiert. Denn die beiden Startspins legen unter der Bedingung von 120° zwischen jedem Spin die gemeinsam benachbarten Spins fest. Dies lässt sich fortführen, bis alle Spins fixiert sind und als Freiheitsgrad nur die globale Rotation aller Spins übrig bleibt. Beim Kagomegitter jedoch lässt sich aus zwei festgelegten benachbarten Spins nur ein weiterer fixieren und dessen zwei Nachbarn haben mehr als eine Möglichkeit, sich zu stellen, um die Bedingung zu erfüllen. Bisher wurde intuitiv davon ausgegangen, dass die Spins coplanar liegen. Löst man sich davon und lässt Spinausrichtungen zu, die nicht mehr in der Ebene liegen, dann können bestimmte Spins je nach Struktur gemeinsam rotieren, zusätzlich zu der globalen Rotation aller Spins. Diese Bewegung kostet keine Energie, wird deshalb auch

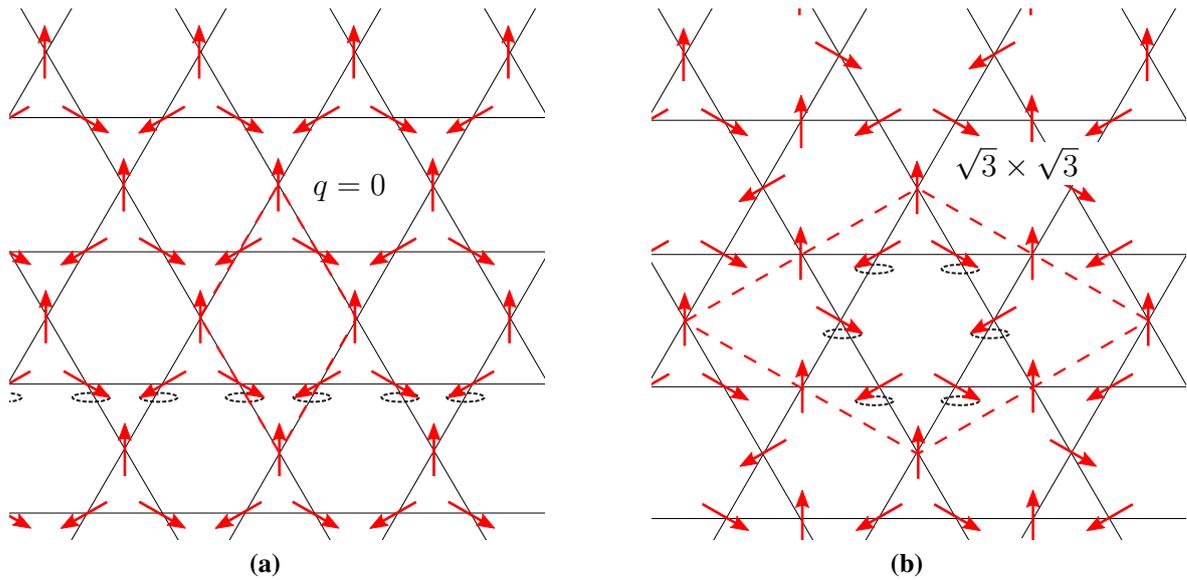


Abbildung 2.2: Grundzustände beim antiferromagnetisch gekoppelten 2D Kagomegitter und die möglichen Spinbewegungen ohne Energiekosten (gestrichelten Ellipsen)
(a) $q = 0$ -Grundzustand **(b)** $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand

”zero-energy mode” genannt. Dies führt zu einer zusätzlichen Entartung des Grundzustands. Zwei koplanare antiferromagnetisch geordnete Grundzustände, welche die 120° Bedingung erfüllen, und als am wahrscheinlichsten angenommen werden können², sind die sogenannten ” $q = 0$ ” und ” $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ ” Zustände, zu sehen in den Abbildungen 2.2a und 2.2b mit den ”zero-energy modes”.

Bisher wurden nur zweidimensionale Gitter betrachtet. Bei der Struktur von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ handelt es sich aber nicht nur um eine entkoppelte Aufsichtung von Kagomegittern, sondern um einen realen dreidimensionalen Kristall. So befinden sich oberhalb und unterhalb (in c Richtung des Kristalls) jedes zweiten Dreiecks des Kagomes jeweils ein weiteres Atom. Es ergeben sich somit alternierende Kagome- und Dreiecksgitterebenen deren Spins zueinander antiferromagnetisch gekoppelt sind. Als Grundelement erhält man dann einen Tetrader bzw. Doppeltetrader. Um auch hier den energieminimierenden Zustand zu finden, wird wieder über die Wechselwirkungen gemittelt. Es zeigt sich aber, dass das Spinsystem abhängig von der Stärke der Wechselwirkung zwischen den Spins unterschiedliche Lösungen bildet, sofern es dem Spinsystem überhaupt noch gelingt zu ordnen. Für die vermuteten Wechselwirkung ($J_2/J_1 > 0.75$) zeigt sich, dass innerhalb dieses Doppeltetraeders sich die drei Spins aus der Kagomeebene parallel zueinander orientieren und die beiden Spins der Dreiecksgitterebenen sich antiparallel zu diesen ausrichten [KMMC10] (siehe Abbildung 2.3). Dies ist für einen Antiferromagneten eine recht erstaunliche Lösung und um diese zu verstehen, benötigt es einer genaueren Betrachtung des verwendeten Modells, eine Variante des Heisenberg Modells.

²besitzen eine hohe Dichte an ”zero-energy modes” und sind somit thermisch bevorzugt, nach dem Prinzip ’Order by disorder’ [VBCC80]

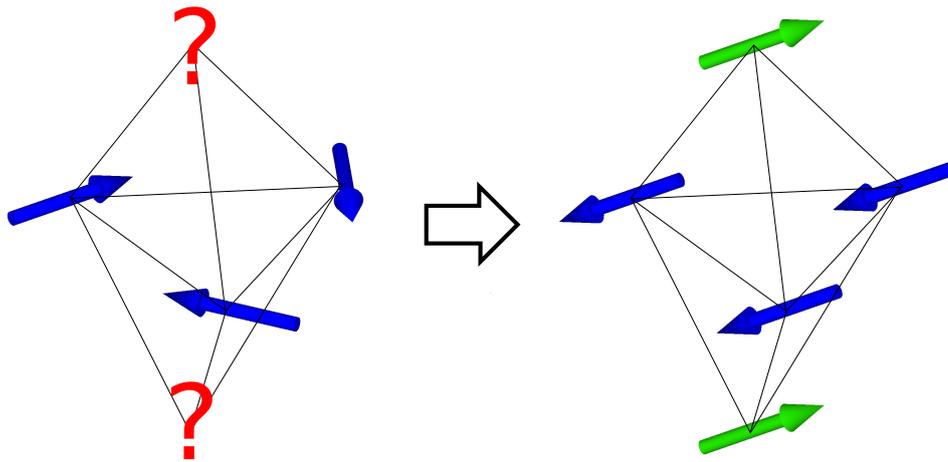


Abbildung 2.3: Auswirkung der geometrischen Frustration im Doppeltetraeder bei $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$, nach [KMMC10]

2.1.3 Das Heisenberg Modell

Das Heisenberg Modell beschreibt den Hamiltonian durch die magnetischen Austauschwechselwirkung [SP09]. Die berechnete Energie ist abhängig von der Richtung der Spins zueinander und der Entfernung. Diesen Voraussetzungen trägt das Modell beim Hamiltonoperator wie folgt Rechnung:

$$H = \sum_{i,j} J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = \sum_{i,j} J_{i,j} (S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y + S_i^z S_j^z), \quad (2.12)$$

wobei $J_{i,j}$ das Austauschintegral³ für die Spins \mathbf{S}_i und \mathbf{S}_j ist. Durch das Skalarprodukt wird der Beitrag der Wechselwirkung zweier Spins null, wenn diese senkrecht zueinander stehen und wird absolut maximal für parallele oder antiparallele Spins. Um die verschiedenen Formen des Magnetismus berücksichtigen zu können, ist $J_{i,j}$ positiv für ferromagnetische Kopplung und negativ für antiferromagnetische. Somit wird bei letzterer die Energie minimiert, wenn die Spins antiparallel zueinander stehen. In diesem einfachen System werden in dieser Form noch keine Anisotropien berücksichtigt, sondern das Material als isotrop vorausgesetzt.

Das verwendete Modell Das bei der Betrachtung des vorliegenden Kristalls angewandte Modell, zur Beschreibung der Austauschwechselwirkung zwischen den Spins, ist ein leicht abgewandeltes Heisenberg nächst-Nachbar Modell. Dies ist ein Spezialfall des allgemeinen Heisenberg Modells, bei dem die Wechselwirkung zwischen den Spins auf die zwischen benachbarten Spins reduziert wird. Dieses wird nun insofern erweitert, indem nun nicht nur die allernächsten benachbarten Spins betrachtet, sondern, um sowohl die Wechselwirkung in als auch aus der Ebene zu berücksichtigen, wird diese zwischen den nächsten Nachbarn jeweils innerhalb bzw. aus der Ebene unter Berücksichtigung ihres Austauschintegrals $J_{i,j}$ bestimmt.

$$H_{\text{Heisenberg}} = \sum_{\langle i,j \rangle} J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j = \sum_{\langle i,j \rangle | i \wedge j \in \text{gl. Ebene}} J_1 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j + \sum_{\langle i,j \rangle | i \wedge j \notin \text{gl. Ebene}} J_2 \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \quad (2.13)$$

³Die Wechselwirkung wird hier nicht durch die Coulombwechselwirkung sondern durch das Pauli-Prinzip bestimmt.

Das Ergebnis der Strukturanalyse in [Ros11] zeigt, dass die Elementarzelle des Swedenborgits $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ aus 4 in c Richtung übereinander geschichteten Ebenen besteht, wobei sich jeweils eine Kagomegitterschicht und eine Dreiecksgitterschicht abwechseln. Zudem sind die 8 magnetischen Atomplätze in der Kagomeschicht zu 60% mit Co-Atomen und zu 40% mit Fe-Atomen besetzt. Für die Besetzung der jeweils 3 Dreiecksgitterplätze ist das Verhältnis dementsprechend entgegengesetzt mit 85% Fe-Atomen und nur 15% Co-Atomen. Deshalb werden im Weiteren die Ebenen gegebenenfalls auch entsprechend ihrer vorherrschenden Atomsorte bezeichnet, also wird "Co-Ebene" synonym zur Kagomeebene und "Fe-Ebene" synonym zur Dreiecksebene verwendet. Desweiteren sind die Co-Ebenen im Gegensatz zu den Fe-Ebenen nicht deckungsgleich, sondern um 60° zueinander um die c -Achse gedreht.

Wenn nun die Wechselwirkung zwischen denen als nächste Nachbarn definierten Atomen betrachtet wird, so zeigt sich, dass eigentlich 4 Austauschwechselwirkungen unterschieden werden müssten. Jedoch wurde von Khalyavin et al. [KMMC10] gezeigt, dass 2 verschiedene Austauschwechselwirkungen J_1 und J_2 , nämlich die in der Ebene (zwischen zwei Atomen in der Kagomeebene) und die aus der Ebene heraus (zwischen einem Atom aus der Kagomeebene und einem aus der Dreiecksebene), näherungsweise für die Beschreibung der Austauschwechselwirkung im Kristall ausreichen. Eine weitere Vereinfachung der Austauschwechselwirkung ist nicht gewünscht, denn die Veränderung des Verhältnis J_2 zu J_1 eröffnet die Möglichkeit zur Untersuchung von Kristallen mit unterschiedlichen Stöchiometrien von Co zu Fe ([VA02, VSS09]). Deren Beschreibung mit diesem Modell resultiert dann letztlich in anderen Verhältnissen von J_1 zu J_2 .

An dieser Stelle ist es geeignet, noch einmal auf die Ausrichtung der Spins zueinander im Grundzustand zurückzukehren. Trotz der starken antiferromagnetischen Kopplung zwischen den Spins, richten sich einige parallel zueinander aus. Dieses Verhalten ist abhängig von dem Verhältnis J_2 zu J_1 . Gilt für dieses $\frac{J_2}{J_1} \geq 1.5$, dann wird über die stärkeren Korrelationen aus der Ebene praktisch eine ferromagnetische Korrelation auf den Teil der Spins in der Kagomeebene vermittelt. Dies geschieht jedoch nur dort, wo über und unter dem Spindreieck aus der Kagomeebene ein Spin in der trigonalen Ebene ist. Somit entstehen sogenannte Säulen, in denen die Spins zueinander anti- bzw. parallel stehen. Diese Säulen sind dann wie auf einem antiferromagnetisch gekoppelten und somit geometrisch frustrierten Dreiecksgitter angeordnet (siehe Abbildung 2.3 rechts). Eine genauere Betrachtung findet sich im Unterkapitel 5.2.

2.2 Spinwellentheorie

Mit den Erkenntnissen aus 2.1.1 und 2.1.3 soll nun ein Einblick in die Theorie der Spinwellen gegeben werden. Dazu wird die Idee vom Drehmomentoperator weiterentwickelt, um dann nach der sog. Holstein Primakoff Transformation von Spinoperatoren zu sprechen und so auch deren Wechselwirkung miteinander zu berücksichtigen. Dies lässt sich dann nach einer Fouriertransformation mit der Bogoliubov Transformation so transformieren, dass man zum Schluss die Dispersionsrelation der Spinwellen erhält bzw. die Magnonendispersionsrelation. Unter Magnonen versteht man das quantenmechanische Teilchenanalogon zur Spinwelle.

2.2.1 Quantenmechanische Beschreibung

Um zur Quantentheorie der Spinwelle zu gelangen, wird an dieser Stelle auf die Definition des Drehmomentoperators 2.7 zurückgegriffen, jedoch nun auf das Spinnmoment übertragen. Ausgehend von diesem lassen sich die Kommutatorrelationen für diesen Operator aufstellen:

$$[S_x, S_y] = i\hbar S_z \quad (2.14)$$

$$[S_y, S_z] = i\hbar S_x \quad (2.15)$$

$$[S_z, S_x] = i\hbar S_y. \quad (2.16)$$

Dies bedeutet, dass die einzelnen Komponenten des Operators nicht miteinander kommutieren. Als nächstes werden die folgenden Operatoren definiert:

$$S_+ = S_x + iS_y \quad (2.17)$$

$$S_- = S_x - iS_y \quad (2.18)$$

$$S^2 = S_x^2 + S_y^2 + S_z^2. \quad (2.19)$$

S_+ nennt man den Aufsteigeoperator und S_- den Absteigeoperator, weil eine Anwendung dieser auf den Zustand den Erwartungswert für S_z erhöht bzw. erniedrigt. Diese kommutieren weder miteinander noch mit S^z .

Wichtige Grundsätze, die sich hieraus ableiten lassen und für die Spinwellenrechnung relevant sind, sind unter anderem:

- Es können nicht alle drei Komponenten von S gleichzeitig genau bestimmt werden. Dies ist nur möglich für den Erwartungswert von S^2 und einer Komponente (meist wird S_z gewählt).
- Die Einführung der Operatoren gelingt für das Gesamtdrehmoment \mathbf{J} und den Bahndrehmoment \mathbf{L} analog.
- Die Erwartungswerte lauten:

$$\langle S^2 \rangle = \hbar^2 s(s+1) \quad (2.20)$$

$$\langle S_z \rangle = m_s \hbar, \quad (2.21)$$

mit $-s \leq m_s \leq s$.

- Das magnetische Moment selbst ist dann gequantelt als Vielfaches des Bohrschen Magneton $\mu_B = |q| \frac{\hbar}{2m_q}$.

Ein guter Einstieg in die Spinwellentheorie gelingt über die ferromagnetisch gekoppelte unendliche Kette von Spins bei tiefen Temperaturen. Hierzu wurde 1930 die Theorie von Bloch aufgestellt. Betrachtet man eine unendliche Kette von Spins, die ferromagnetisch gekoppelt sind, bei tiefen Temperaturen im Ising-Modell, dann ist der Grundzustand die parallele Ausrichtung der Spins zueinander. Da sich dieses System bei endlichen Temperaturen befindet, existiert eine Wahrscheinlichkeit größer null (Maxwell Boltzmann Gesetz für Bosonen), dass ein oder mehrere Spins angeregt sind. Da die Wahrscheinlichkeit für mehrere Spins rapide absinkt, beschränken wir uns hier auf den Fall eines angeregten Spins. Bei der Anregung wird der Spin um 180° gedreht (“geflippt”) und ist nun antiparallel zu allen anderen. Dieser

Zustand ist die geringst mögliche Anregung in einem Ising-Modell. Zudem kann diese Anregung ohne Aufwand von Energie durch die Kette "wandern". Denn wenn einer der Nachbarn des angeregten Spins flippt und der Spin selbst auch, dann bleibt der Erwartungswert für den Hamiltonoperator gleich. Bei tiefen Temperaturen kann die Spinwellenamplitude als klein angenommen werden und die Wechselwirkung von mehreren somit vernachlässigt werden. Damit kann der Anregungszustand als Summe der Spinwellen berechnet werden. Wenn man die Einschränkung durch das Ising-Modell auflöst und beliebige Spinrichtungen zulässt, kann die wandernde Anregung auf die Spins verteilt werden, wodurch ein Auslenkungsmuster entsteht, das der einer Schallwelle ähnelt. Analog zum dortigen Phonon, kann diese Spinwelle durch ein Teilchen beschrieben werden, dem Magnon. Dieses stellt die Bewegung des Bereichs mit hoher "flipp"-Wahrscheinlichkeit entlang der Kette dar.

Bisher wurden nur nicht interagierende Spinwellen auf einer linearen Kette betrachtet. Um dies auf einen dreidimensionalen Kristall mit interagierenden Spinwellen zu verallgemeinern, ist es angebracht, dass man den Formalismus für die Berechnung geladener Teilchen im quantenmechanischen harmonischen Oszillator aufzugreift:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{d^2\psi}{dx^2} + \frac{1}{2}m\omega^2 x^2\psi = E\psi. \quad (2.22)$$

Bei dem Formalismus der hierfür entwickelt wurde, führt man sogenannte Absteige- und Aufsteigeoperatoren bzw. im Fall des Teilchens Vernichter- und Erzeugeroperatoren ein. Dies ist ein mathematischer Kniff, um auch ohne die Lösung von Differentialgleichungen Aussagen über die Anregungen im harmonischen Oszillator machen zu können. Die Erzeuger- und Vernichteroperatoren sind definiert als:

$$a = \sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} \left(x + i \frac{p}{m\omega} \right) \quad (2.23)$$

$$a^\dagger = \sqrt{\frac{m\omega}{2\hbar}} \left(x - i \frac{p}{m\omega} \right). \quad (2.24)$$

Mit den Kommutatoreigenschaften:

$$[a, a^\dagger] = 1 \quad (2.25)$$

$$[a^\dagger, a^\dagger] = [a, a] = 0. \quad (2.26)$$

Dies sind Eigenschaften, die für Operatoren gelten müssen, die Erzeuger und Vernichter von Bosonen, also z.B. auch Magnonen sind. Für die Anwendung auf den Zustand ψ_n gilt dann:

$$a\psi_n = \sqrt{n}\psi_{n-1} \quad (2.27)$$

$$a^\dagger\psi_n = \sqrt{n+1}\psi_{n+1} \quad (2.28)$$

$$a^\dagger a\psi_n = \hat{n}\psi_n \quad (2.29)$$

gilt und \hat{n} der Teilchenzahloperator ist. Diese Operatoreigenschaften werden bei der Holstein Primakoff Transformation auf das Magnon übertragen. Deshalb können an diesem einfachsten Modell die Konzepte entwickelt werden, die dann in der Spinwellentheorie wiederangewandt werden.

2.2.2 Holstein Primakoff Transformation

Der Hamiltonoperator ist im Spinsystem gegeben durch den bereits besprochenen Heisenberg Hamiltonian oder eine seiner Abwandlungen und gegebenenfalls relevante Anisotropien. Wir beschränken uns hier aber auf den einfachsten Fall:

$$H = \sum_{i,j} J_{i,j} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j. \quad (2.30)$$

Nun werden die Auf- und Absteigeoperatoren 2.17 und 2.18 angewandt:

$$S_i^+ = S_i^x + iS_i^y, \quad (2.31)$$

$$S_i^- = S_i^x - iS_i^y. \quad (2.32)$$

Analog für S_j . Einsetzen in 2.30 ergibt dann:

$$H = \sum_{i,j} \left[\frac{1}{2} (S_i^- S_j^+ + S_i^+ S_j^-) + S_i^z S_j^z \right] \quad (2.33)$$

Betrachtet man nun einen Zustand $|s_i^z\rangle$, wobei die Quantenzahl auf Platz i s_i^z ist. Dann lässt sich die Wirkung von S_i^+ und S_i^- auf den Zustand $|s_i^z\rangle$ bestimmen zu:

$$S_i^+ |s_i^z\rangle = \hbar(s(s+1) - s_i^z(s_i^z + 1))^{\frac{1}{2}} |s_i^z + 1\rangle \quad (2.34)$$

$$S_i^- |s_i^z\rangle = \hbar(s(s+1) - s_i^z(s_i^z - 1))^{\frac{1}{2}} |s_i^z - 1\rangle. \quad (2.35)$$

Wirklich von Interesse ist aber eigentlich die Anzahl der geflippten Spins \hat{n}_i am Platz i . Dazu gehören die Basiszustände $|n_i\rangle$. Erniedrigt man nun n_i um 1, dann erhöht sich s_i^z um 1. Nimmt man S als den totalen Spin auf dem Platz an, erhält man:

$$S_i^z |s_i^z\rangle = \hbar(S - \hat{n}_i) |s_i^z\rangle \quad (2.36)$$

bzw.

$$|s_i^z\rangle = S - \hat{n}_i. \quad (2.37)$$

Verteilt man den geflippten Spin wieder auf mehrere Plätze, kann man diese Auslenkungen als Magnon verstehen. Dann ist es geeignet analog zum harmonischen Oszillator Erzeuger- und Vernichteroperatoren a^\dagger und a einzuführen. Für deren Eigenschaften gilt dann entsprechend den Gleichungen 2.25 fortfolgende:

$$[a_i, a_j^\dagger] = \delta_{i,j} \quad (2.38)$$

$$[a_i, a_j] = [a_i^\dagger, a_j^\dagger] = 0 \quad (2.39)$$

$$a_i |n_i\rangle = \sqrt{n_i} |n_i - 1\rangle \quad (2.40)$$

$$a_i^\dagger |n_i\rangle = \sqrt{n_i + 1} |n_i + 1\rangle \quad (2.41)$$

$$a_i^\dagger a_i |n_i\rangle = \hat{n}_i |n_i\rangle. \quad (2.42)$$

An dieser Stelle sei angemerkt, dass es für mehrere Magnonen erlaubt ist, gleichzeitig an einem Ort zu existieren. Das Pauli Prinzip gilt für sie nicht, da es sich bei ihnen um Bosonen handelt. Wendet man den Aufsteigeoperator S_i^+ auf die neuen Basiszustände an

$$S_i^+ |n_i\rangle = \hbar(s(s+1) - (S - \hat{n}_i)(S - \hat{n}_i + 1))^{\frac{1}{2}} |n_i - 1\rangle \quad (2.43)$$

$$= \hbar\sqrt{2S} \left(1 - \frac{\hat{n}_i - 1}{2S}\right) \sqrt{\hat{n}_i} |n_i - 1\rangle, \quad (2.44)$$

so zeigt sich im Vergleich mit der Eigenschaft 2.40 von a_i die Möglichkeit zur Darstellung in den neuen Erzeuger- und Vernichtoperatoren:

$$S_i^+ = \hbar\sqrt{2S} \left(1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}\right)^{\frac{1}{2}} a_i \quad (2.45)$$

und durch analoge Herleitung für S_i^- :

$$S_i^- = \hbar\sqrt{2S} a_i^\dagger \left(1 - \frac{a_i^\dagger a_i}{2S}\right)^{\frac{1}{2}}. \quad (2.46)$$

Das Einsetzen dieser beiden Gleichungen zusammen mit $S_i^z = S - \hat{n}_i$ in Gleichung 2.33, ist bekannt als Holstein-Primakoff Transformation.

Um die Wurzeln auflösen zu können, muss an dieser Stelle eine Näherung durchgeführt werden. Dabei wird angenommen, dass sich das System bei tiefen Temperaturen befindet und so der Gesamtspin S im Vergleich zu der Anzahl der Magnonen ($\hat{n}_i = a^\dagger a$) sehr groß ist. Dann lässt sich die Wurzel entwickeln um $\frac{a_i^\dagger a_i}{2S} \approx 0$, wobei die Ordnung der Entwicklung die Art der berücksichtigten Wechselwirkung bestimmt. Die Wirkung zweier Operatoren aufeinander repräsentiert nichtinteragierende Magnonen. Wirken drei Operatoren aufeinander, beschreiben diese die Dämpfung bzw. Lebensdauer. Entsprechend gilt dies für Mehrmagnonenwechselwirkung [CZ09]. Zur Bestimmung der Austauschwechselwirkungen J_1 und J_2 reicht es aus, die Schwerpunkte der Dispersionsrelationen mit der Messung zu vergleichen. Diese werden beschrieben durch die Terme zweiter Ordnung in Kombinationen von a und a^\dagger . Zum Verständnis ist hier die Entwicklung bis zur 2. Ordnung in $\frac{\hat{n}_i}{2S}$ angegeben:

$$S_i^z = S - \hat{n}_i \quad (2.47)$$

$$S_i^+ \approx \sqrt{2S} a_i^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} - \frac{1}{8} \frac{\hat{n}_i^2}{4S^2}\right) \quad (2.48)$$

$$S_i^- \approx \sqrt{2S} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} - \frac{1}{8} \frac{\hat{n}_i^2}{4S^2}\right) a_i. \quad (2.49)$$

Da wir uns in der Spinwellenrechnung nur mit nicht interagierenden Magnonen beschäftigen, reicht die Entwicklung bis zur ersten Ordnung aus, und auch davon werden einige Terme vernachlässigt sein. Diese Gleichungen können nun in den Hamiltonian Gleichung 2.33 eingesetzt und Kombinationen aus mehr als 2 Erzeuger- bzw. Vernichtoperatoren vernachlässigt werden. Auf Grund der Wahl unseres Modells werden dann ausschließlich Terme auftauchen, in denen Operatoren benachbarter Plätze aufeinander wirken oder sich Teilchenzahloperatoren befinden. Daraus lässt sich ableiten, dass die Eigenzustände, welche diesen Hamiltonian diagonalisieren, gemeinsame Anregungen beinhalten. Solche Anregungen lassen sich durch Fouriertransformieren der Operatoren darstellen:

$$a_i = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mu} e^{i\mathbf{r}_i \cdot \boldsymbol{\mu}} a_{\mu} \quad (2.50)$$

$$a_i^\dagger = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mu} e^{-i\mathbf{r}_i \cdot \boldsymbol{\mu}} a_{\mu}^\dagger, \quad (2.51)$$

wobei \mathbf{r}_i der Vektor zum i -ten Spin ist.

Den Hamiltonian, den man dann erhält, lässt sich als Matrix schreiben. Um die Eigenwerte dieser zu bestimmen, wird die Bogoliubov Transformation verwendet.

2.2.3 Bogoliubov Transformation

Eine ausführliche Herleitung zu diesem Thema findet sich z.B. in [Wag86]. Hier soll kurz das Grundprinzip erklärt werden. Die wichtigste Eigenschaft der Bogoliubov Transformation an dieser Stelle ist, dass sie den Hamiltonian diagonalisiert, also die Eigenwerte berechenbar macht, und dabei die bosonischen Vertauschungsrelationen erhält. Sie gehört zu der Klasse der unitären Transformationen. Um die Bogoliubovtransformation zu verstehen, muss man sich ein wenig mit dieser Klasse beschäftigen:

Generell lassen sich hermitesche Operatoren durch unitäre Transformationen diagonalisieren :

$$\mathbf{H} = \mathbf{U}^\dagger \mathbf{D} \mathbf{U}.$$

mit der hermiteschen Matrix \mathbf{H} , der unitären Matrix \mathbf{U} und der Diagonalmatrix \mathbf{D} . Dies lässt sich in den einfachen Fällen dadurch lösen, indem man die Eigenvektoren von \mathbf{H} bestimmt, damit dann \mathbf{U} erzeugt und die Diagonalmatrix enthält dann die Eigenwerte. Wenn man jedoch zu sehr großen Matrizen für \mathbf{H} übergeht, wird dieses Verfahren beliebig schwierig durchzuführen. So geht man dazu über \mathbf{U} geschickt zu raten. Abhängig von der Struktur von \mathbf{H} gibt es jedoch auch feste Lösungstransformationen. Für die hier erzeugte wurde von Bogoliubov die nach ihm benannte Transformation entwickelt, damals um Suprafluidität zu behandeln. Nun ist es für beliebige Magnonenoperatoren (unabhängig davon ob Erzeuger oder Vernichter) wegen

$$a \cdot a \cdot \dots \cdot a \rightarrow \mathbf{U}^\dagger a \mathbf{U} \cdot \mathbf{U}^\dagger a \mathbf{U} \cdot \dots \cdot \mathbf{U}^\dagger a \mathbf{U} = \mathbf{U}^\dagger (a \cdot a \cdot \dots \cdot a) \mathbf{U}$$

möglich, diese einzeln zu transformieren. Als Eigenschaft einer unitären Transformation erhält sie die bosonischen Kommutatorrelationen. So erhält man letztlich die Magnonendispersionsrelationen, bei denen man analog zu denen der Phononen zwischen akustischen (berühren die elastische Linie) und optischen (berühren diese nicht) unterscheidet. Die ausführliche Rechnung hierzu mit anschließender Diskussion findet sich in Abschnitt 5.2

2.3 Neutronenstreuung

Den experimentellen Bestandteil der Untersuchung bilden die Experimente mittels Neutronenstreuung. Im Gegensatz zu anderen Teilchen bzw. Strahlung besitzen Neutronen den deutlichen Vorteil für die Untersuchung von Magnetismus, dass diese einen Spin haben und schwer im Vergleich zu Elektronen sind, aber keine elektrische Ladung besitzen. Das bedeutet, dass sie nicht durch die Ladung der Elektronen und Protonen im Material abgelenkt werden und somit eine höhere Eindringtiefe haben. Somit kann das eintreffende Neutron nur über sein magnetisches Moment oder durch das Kernpotential mit dem Material wechselwirken. Diese beiden Streumöglichkeiten sind von ihrer Streuwahrscheinlichkeit vergleichbar. Des Weiteren passt die Energie des Neutrons zu der typischen Anregungsenergie von Magnonen. Das macht die Neutronstreuung zu einer so bevorzugten Untersuchungsmethode für Spinwellen. Wie jedes Teilchen kann auch das Neutron nach de Broglie als Welle aufgefasst werden, mit einer Wellenlänge von

$$\lambda(\text{\AA}) = \frac{2\pi}{k} = \frac{h}{mv} = \frac{0.286}{\sqrt{E(\text{eV})}}.$$

Im Laufe dieser Arbeit wurde an Experimenten gearbeitet, bei denen sich die Erzeugung der verwendeten Neutronen unterscheidet. Da die Erzeugung Einfluss auf die Art des Experiments hat, ist diese zusammen mit den Eigenschaften der erzeugten Neutronen in Kürze im Anhang F angerissen.

Als nächstes wird kurz die elastische Streuung und die magnetische Streuung erläutert, um dann auf die inelastische Streuung an Spinwellen eingehen zu können, eine ausführlichere Beschreibung findet sich zB. in [BHR⁺10].

2.3.1 Elastische Streuung

Elastische Streuung ist definiert als der Anteil der Streuung, bei dem die Veränderung der Energie der Neutronen bzw. der verwendeten Teilchen vernachlässigbar ist. Wenn dies nicht zutreffend ist, spricht man von inelastischer Streuung, die später erklärt wird. Um die elastische Streuung zu beschreiben, werden die Neutronen und Atome des Materials als Punktobjekte angenommen. Zudem seien die Atome fixiert auf ihren Gitterplätzen und es wird im Bereich der Fraunhofernäherung gerechnet, d.h. dass die Probengröße im Vergleich zum Abstand von Quelle zur Probe und Probe zum Detektor klein ist. Als letzte Bedingung soll die Quelle monochromatische Strahlung emittieren, also hier Neutronen mit einer bestimmten Energie. Betrachtet man die Neutronenstrahlung als Welle, dann kann nach der Fraunhofernäherung die einfallende Welle an der Probe als auch die gestreute Welle am Detektor als ebene Welle mit dem Wellenvektoren \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f genähert werden. Da bei der elastischen Streuung keine Energieveränderung auftreten soll, gilt dann:

$$k_i = |\mathbf{k}_i| = |\mathbf{k}_f| = k_f = \frac{2\pi}{\lambda} \quad (2.52)$$

mit λ der dazugehörigen Wellenlänge. Der Streuvektor ist dann definiert durch

$$\mathbf{Q} = \mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i \Rightarrow Q = |\mathbf{Q}| = \frac{4\pi}{\lambda} \sin \theta. \quad (2.53)$$

Da der Impuls erhalten bleibt, gilt nach de Broglie 2.3:

$$\hbar\mathbf{Q} = \hbar(\mathbf{k}_f - \mathbf{k}_i) = \hbar\mathbf{p}_f - \hbar\mathbf{p}_i. \quad (2.54)$$

Bei einem Streuexperiment wird dann die Intensität in Abhängigkeit vom Streuvektor gemessen: $I(\mathbf{Q})$. Diese ist proportional zum sogenannten Streuquerschnitt $\frac{d\sigma}{d\Omega}$, welcher aus der Geometrie so definiert ist, dass er den Anteil an Teilchen angibt, die in das Raumwinkelement $d\Omega$ gestreut werden. Um diesen zu bestimmen, bedient man sich der Bornschen Näherung. Diese besagt, dass für den Fall einer einlaufenden Welle auf ein punktförmiges Streuzentrum diese eine kugelförmige Welle aussendet. Wobei die Intensität der auslaufenden Welle am Punkt \mathbf{r}' proportional zum Wechselwirkungspotential $V(\mathbf{r}')$ ist. Formal lässt sich dies mit der einlaufenden Wellenfunktion ψ^0 und der Greenschen Funktion ($G(\mathbf{r}, \mathbf{r}') = \frac{e^{ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}}{4\pi|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|}$) wie folgt schreiben:

$$\Psi(\mathbf{r}) = \psi^0(\mathbf{r}) + \frac{2m}{\hbar^2} \int (G(\mathbf{r}, \mathbf{r}')V(\mathbf{r}')\Psi(\mathbf{r}')d^3r'. \quad (2.55)$$

Das bedeutet, dass wenn man das Wechselwirkungspotential vernachlässigt, ist Eingangs- gleich Ausgangswelle. Vernachlässigt man dies nicht, so nähert man das Potential entsprechend seiner

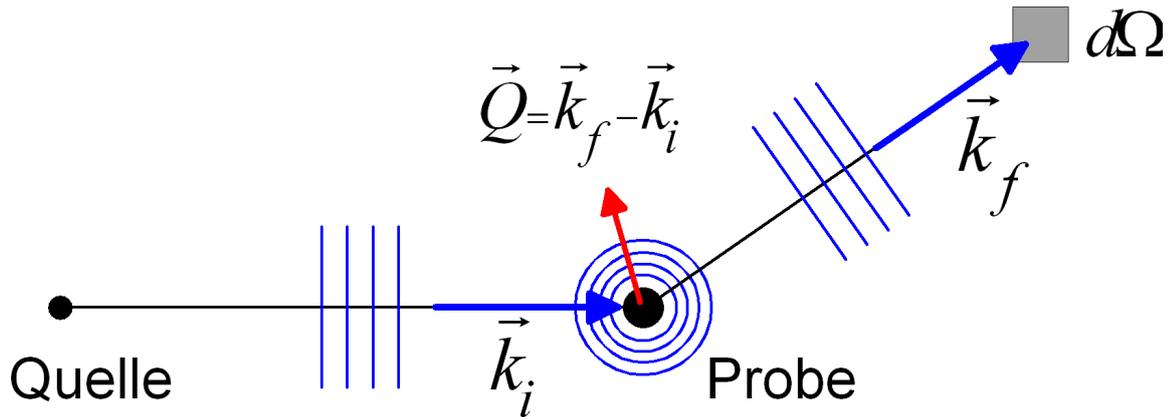


Abbildung 2.4: Skizze zur Streuung im Rahmen der Fraunhofer Näherung (Aus [Ros11]).

Stärke in sofern, ob die Welle nur einmal (schwaches Potential) oder öfter (stärkeres Potential) gestreut wird. Daraus ergibt sich die sogenannte Bornserie (in vereinfachter Schreibweise):

$$\Psi^0 = \psi^0 \text{ keine Streuung} \quad (2.56)$$

$$\Psi^1 = \psi^0 + \mathbf{G}V\psi^0 \text{ einmal gestreut} \quad (2.57)$$

$$\Psi^2 = \psi^0 + \mathbf{G}V\psi^0 + \mathbf{G}V\mathbf{G}V\psi^0 \text{ zweimal gestreut} \quad (2.58)$$

⋮

Die Neutronenstreuung lässt sich auf Grund des schwachen Potentials gut in erster Näherung beschreiben. Hiermit lässt sich dann der differentielle Streuquerschnitt bestimmen. Dieser stellt sich dar als Element einer Übergangsmatrix für das Wechselwirkungspotential vom Zustand der einfallenden Welle zu dem der gestreuten Welle:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{m}{2\pi\hbar^2} \right)^2 | \langle \mathbf{k}_f | V | \mathbf{k}_i \rangle |^2. \quad (2.59)$$

Betrachtet man beispielsweise die Streuung an einem Atomkern am Ort \mathbf{R} , dann lässt sich das Wechselwirkungspotential durch ein Fermi-Pseudopotential nähern:

$$V(\mathbf{r}) = \frac{2\pi\hbar^2}{m} b\delta(\mathbf{r} - \mathbf{R}). \quad (2.60)$$

Die Streulänge b ist ein Maß für die Intensität der Streuung und ist unterschiedlich für verschiedene Elemente und deren Isotope.

Zuletzt sei noch daraufhin gewiesen, dass bei einem Streuexperiment zwei verschiedene Arten von Streuung auftreten: kohärente und inkohärente Streuung. Der Streuquerschnitt setzt sich dann wie folgt zusammen:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{koh} + \left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{inkoh}. \quad (2.61)$$

Die kohärente Streuung beschreibt die Interferenz der Streuung der Gitterplätze des Systems mit einer gemittelten Streulänge (für das obige Fermi-Pseudopotential):

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{koh} = |\bar{b}|^2 \left| \sum_j e^{i\mathbf{Q}\cdot\mathbf{R}_j} \right|^2. \quad (2.62)$$

Die inkohärente Streuung gibt die Abweichung von der kohärenten Streuung an:

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega}\right)_{inkoh} = N(|\bar{b}|^2 - |\bar{b}|^2). \quad (2.63)$$

2.3.2 Magnetische Streuung

Die magnetische Streuung beruht auf der Wechselwirkung des Neutronenspins mit dem magnetischen Feld, welches von dem magnetischen Moment der ungepaarten Elektronen des streuenden Atoms erzeugt wird. Der wichtigste Unterschied zur nuklearen Streuung rührt daher, dass sowohl der Spin des Neutrons μ_N als auch das von den magnetischen Momenten der Elektronen erzeugte Magnetfeld $\mathbf{B} = \mathbf{B}_{Spin} + \mathbf{B}_{Bahn}$ eine Richtung besitzen und die Streuung abhängig davon ist, wie diese zueinander stehen. Dies wird beschrieben durch das Zeemanpotential:

$$\mathbf{V}_m = -\boldsymbol{\mu}_N \cdot \mathbf{B} = -\gamma_n \mu_N \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{B}. \quad (2.64)$$

Wobei γ_n der gyromagnetische Faktor des Neutrons, μ_N das nukleare Magneton und $\boldsymbol{\sigma}$ der Spinoperator ist. Legt man nun die Quantisierungsachse o.B.d.A. in z-Richtung und lässt für die Streuung eine Veränderung des Spinzustands des Neutrons zu, dann lässt sich für den differentiellen Streuquerschnitt folgendes berechnen:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \left(\frac{m_n}{2\pi\hbar^2}\right)^2 |\langle \mathbf{k}_f \sigma_f^z | \mathbf{V}_m | \mathbf{k}_i \sigma_i^z \rangle|^2 \quad (2.65)$$

$$= (\gamma_n r_0)^2 \left| -\frac{1}{2\mu_B} \langle \sigma_f^z | \boldsymbol{\sigma} \cdot \mathbf{M}_\perp(\mathbf{Q}) | \sigma_i^z \rangle \right|^2. \quad (2.66)$$

$\mathbf{M}_\perp(\mathbf{Q})$ ist die fouriertransformierte Magnetisierung der Probe, diese ist mit der Definition $\mathbf{M}_\perp(\mathbf{Q}) = \hat{\mathbf{Q}} \times \mathbf{M}(\mathbf{Q}) \times \hat{\mathbf{Q}}$ senkrecht zum Streuvektor \mathbf{Q} . Aus der Gleichung 2.66 lassen sich zwei wichtige Erkenntnisse herleiten. Erstens trägt nur die Magnetisierung senkrecht zum Streuvektor zur Streuung bei und zweitens ist die Streuung abhängig von der Ausrichtung des Neutronenspins (hieraus ergibt sich die Methode zur Polarisationsanalyse [Sch10]).

Die magnetische Streuung (im Gegensatz zur nuklearen Streuung) hat einen magnetische Formfaktor $f_m(\mathbf{Q})$. Dieser beschreibt die Verringerung der Intensität bei Abweichung von der Vorwärtsstreuung und ist zudem materialspezifisch, da er durch die Fouriertransformation der atomaren Spindichte bestimmt ist.

Die Streuung setzt sich aus der nuklearen (N_Q) und der magnetischen also wie folgt zusammen:

$$F_{\mathbf{Q}} = N_Q + \hat{\boldsymbol{\sigma}} \cdot \mathbf{M}_\perp \quad (2.67)$$

mit einem differentiellen Streuquerschnitt von

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = |F_{\mathbf{Q}}|^2. \quad (2.68)$$

Hierbei ist der magnetische Formfaktor schon in \mathbf{M}_\perp enthalten.

2.3.3 Inelastische Streuung an Spinwellen

Bisher wurde angenommen, dass sich bei der Streuung die Energie der Welle bzw. des Teilchens nicht ändert, das soll nun aufgehoben werden. Somit muss nun nicht nur die Impulserhaltung, sondern auch die Energieerhaltung berücksichtigt werden. Dies gelingt im Allgemeinen unter zusätzlichen Berücksichtigung der Spinzustände des Neutrons σ , indem man zum doppeldifferentiellen Streuquerschnitt übergeht [BHR⁺10]:

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} = \frac{k_f}{k_i} \left(\frac{m_n}{2\pi\hbar^2} \right)^2 |\langle \mathbf{k}_f, \sigma_f, \lambda_f | V | \mathbf{k}_i, \sigma_i, \lambda_i \rangle|^2 \delta(\hbar\omega + E_{\lambda_i} - E_{\lambda_f}). \quad (2.69)$$

Um die inelastische Streuung an Spinwellen im Besonderen zu untersuchen, bedient man sich wieder der Spinwellentheorie 2.2.2 bzw. genauer gesagt der linearen Spinwellentheorie, bei der nur Ein-Magnonenprozesse betrachtet werden. Unter den Voraussetzungen der Energie- (Gleichung 2.70) und Impulserhaltung (Gleichung 2.71)

$$\frac{\hbar^2}{2m}(k_i^2 - k_f^2) = \hbar\omega_{\mathbf{q}} \quad (2.70)$$

$$\mathbf{k}_i - \mathbf{k}_f = \boldsymbol{\tau} \pm \mathbf{q} = \mathbf{Q}, \quad (2.71)$$

lässt sich mit der Energieanregung des Magnons $\hbar\omega_{\mathbf{q}}$, einem reziproker Gittervektor $\boldsymbol{\tau}$ und dem reduzierten Wellenvektor \mathbf{q} der Streuquerschnitt eines Magnons herleiten (für eine ausführliche Herleitung siehe [Squ78]):

$$\begin{aligned} \frac{d^2\sigma}{d\Omega dE_f} &= (\gamma r_0)^2 \frac{k_f}{k_i} \frac{1}{2\pi\hbar} \frac{1}{2} S(1 + \hat{Q}_z^2) \left(\frac{1}{2} g F(\mathbf{Q}) \right)^2 e^{-2W} \\ &\times \sum_{\boldsymbol{\tau}, \mathbf{q}} (\delta(\mathbf{Q} - \mathbf{q} - \boldsymbol{\tau}) \delta(\hbar\omega_{\mathbf{q}} - \hbar\omega) \langle n_{\mathbf{q}} + 1 \rangle \\ &+ \delta(\mathbf{Q} + \mathbf{q} - \boldsymbol{\tau}) \delta(\hbar\omega_{\mathbf{q}} + \hbar\omega) \langle n_{\mathbf{q}} \rangle). \end{aligned} \quad (2.72)$$

Hierbei ist der thermische Mittelwert der Anzahl an Magnonen bei \mathbf{q} durch die Bose Statistik gegeben:

$$\langle n_{\mathbf{q}} \rangle = \frac{1}{e^{\frac{\hbar\omega_{\mathbf{q}}}{k_B T}} - 1}. \quad (2.73)$$

Innerhalb der Summe existieren zwei voneinander verschiedene Summanden, wobei der erste die Erzeugung und der zweite die Vernichtung eines Magnons beschreibt. Aus der Gleichung 2.72 ist ersichtlich, dass der Streuquerschnitt mit dem magnetischen Formfaktor skaliert, ganz im Gegensatz zu dem Streuquerschnitt der Phononen, der im Mittel mit höherem \mathbf{Q} ansteigt [Squ78]. Dadurch lässt sich die Magnonenstreuung von der Phononenstreuung unterscheiden, wie bei den Messergebnissen von ARCS zu sehen sein wird. Sind die Vektoren \mathbf{k}_i und \mathbf{k}_f für jeden gemessenen Peak bekannt, ist es mit den beiden Gleichungen möglich für den Peak die Werte $\omega_{\mathbf{q}}$ und \mathbf{q} der Spinwelle zu berechnen und sich die Magnonendispersionsrelation bestimmen (siehe Abbildung 3.7). Bei einem Experiment bedeutet dies folgendes: Die Eingangsenergie E_i bestimmt die Höhe in der Energie eines umgestülpten Paraboloids. Auf der Oberfläche dieses Paraboloids liegen die möglichen Messpunkte. Somit ist die Ausgangsenergie E_f direkt an die gemessene Koordinate im \mathbf{k} -Raum gekoppelt.

2.4 Monte Carlo Simulation

Der Name "Monte Carlo Simulation", kurz MCS, leitet sich von dem Grundprinzip ab: Simulation unter Verwendung von Zufallszahlen. Computer Simulationen bilden heutzutage neben dem Experiment und analytischen Theorie das dritte Standbein der Untersuchungen. Die MCS wird hier angewandt, um allgemeine Erkenntnisse über das Verhalten der Spins in Abhängigkeit von Parametern wie den Austauschwechselwirkungen, aber auch verschiedenen Anisotropien zu erhalten. Für die Betrachtung großer Systeme eignet sie sich gegenüber der analytischen Untersuchung, da bei dieser auf Grund der großen Anzahl an möglichen Zuständen stark genähert werden muss.

MCS ist dann geeignet, wenn es darum geht, in der statistischen Physik Durchschnittswerte für makroskopische Observablen zu bestimmen. Da der gesamte Phasenraum zu groß ist, um daraus die Mittelwerte zu bestimmen, ist es grundlegend wichtig, ein geeignetes Verfahren zu wählen, wie die relevanten Zustände für die Mittelwerte bestimmt werden können. Von den verfügbaren Verfahren wurde das "importance sampling" ausgewählt. Hier werden die Zustände des Phasenraums nicht rein zufällig bestimmt, sondern nur der erste x_l und dann soll der jeweils darauffolgende x_{l+1} aus dem vorherigen mit einer geeigneten Übergangswahrscheinlichkeit $W(x_l \rightarrow x_{l+1})$ berechnet werden (Markov Prozess). Dies wurde vorgeschlagen von Metropolis [MRR⁺53]. Die Übergangswahrscheinlichkeit kann so gewählt werden, dass die Verteilungsfunktion $P(x_l)$ im Grenzfall unendlich vieler Schritte sich der Gleichgewichtsverteilung

$$P_{eq}(x_l) = \frac{1}{Z} e^{-\frac{H(x_l)}{k_B T}} \quad (2.74)$$

annähert. Z ist hier die Zustandssumme und $H(x_l)$ der Hamiltonian des Zustands x_l . Ein solcher Markov Prozess benötigt eine Übergangswahrscheinlichkeit, die der Bedingung des "detailed balance" Faktors genügt:

$$P_{eq}(x_l)W(x_l \rightarrow x_{l'}) = P_{eq}(x_{l'})W(x_{l'} \rightarrow x_l). \quad (2.75)$$

Nimmt man die Gleichungen 2.74 und 2.75 zusammen, dann ergibt sich als Bedingung für die Übergangswahrscheinlichkeit

$$\frac{W(x_l \rightarrow x_{l'})}{W(x_{l'} \rightarrow x_l)} = e^{-\frac{\delta H}{k_B T}} \quad (2.76)$$

mit der Energieveränderung $\delta H = H(x_{l'}) - H(x_l)$ vom Ausgangszustand zum Endzustand. Die Lösung der Bedingungen ist nicht eindeutig, aber da das Ergebnis der Simulation unabhängig von der Wahl der Formel ist, kann eine beliebige aus dem Lösungsraum gewählt werden. Hier wird für die Übergangswahrscheinlichkeit die Boltzmannverteilung ($e^{-\frac{\delta H}{k_B T}}$) gewählt:

$$W(x_l \rightarrow x_{l'}) = \begin{cases} e^{-\frac{\delta H}{k_B T}} & \text{wenn } \delta H > 0, \\ 1 & \text{sonst.} \end{cases} \quad (2.77)$$

Wenn das System bei dem Übergang seine Energie verringern kann, dann wird der Übergang ausgeführt, ohne die Übergangswahrscheinlichkeit zu bestimmen. Das heißt, die Übergangswahrscheinlichkeit wird nur für den Übergang zu einem energetisch ungünstigeren Zustand beschränkt.

Das Modell, das hier verwendet wird, ist das Heisenberg nächst-Nachbar Modell aus 2.1.3, mit den Austauschwechselwirkungsparametern J_1 und J_2 . Die Wahl eines geeigneten Modells

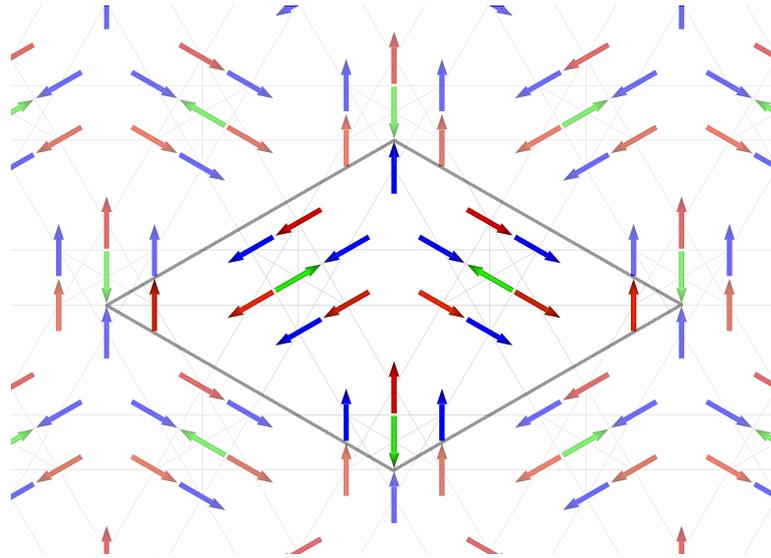


Abbildung 2.5: Der $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand, der für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ ermittelt wurde [Ros11]

spielt nach [BH10] in Bezug auf die thermodynamische Grenze $N \rightarrow \infty$ zwar kaum eine Rolle, da verschiedene Modelle hier das gleiche Ergebnis erzielen. Jedoch hängen die von den endlichen Abmaßen des Systems hervorgerufenen Effekte stark vom verwendeten Modell ab. Eine Besonderheit bei der Verwendung des Modells zeigt sich bei der Bestimmung der Spinauslenkung. Bei tiefen Temperaturen, gerade bei Systemen mit hohem Freiheitsgrad, ist die Wahrscheinlichkeit, dass eine Spinauslenkung gewählt wird, die dann abgelehnt wird, sehr groß (vgl. Gleichung 2.77). Dadurch wird die Dauer der effektiven Rechenzeit stark verlängert. Deshalb bietet es sich an, die Auslenkung zu beschränken. So kann man abhängig von der Temperatur einen Bereich definieren, in dem die Ausrichtung des neuen Spins auf kleine Werte skaliert wird. Dadurch erhält man gerade in der Nähe des Grundzustands ein besseres Relaxationsverhalten (siehe auch [Zhi08], dort für die z-Achse des Spins verwendet). Die verfolgte Absicht bei der Verwendung der MCS ist zum einen das bei Khalyavin [KMMC10] dargelegte Phasendiagramm für J_2 in Abhängigkeit von J_1 bei konstanter Temperatur nachzuvollziehen, als auch die vom ihm nicht betrachtete Temperaturabhängigkeit zu untersuchen. Somit soll ein Phasendiagramm für T in Abhängigkeit von dem Verhältnis J_2/J_1 bestimmt werden. Hierbei insbesondere soll der antiferromagnetische Bereich untersucht werden ($J_1, J_2 < 0$).

Nach diesen eher allgemeinen Überlegungen kann nun die grundsätzliche Struktur der MCS dargelegt werden. Zuerst wird die Größe des Spinsystems $L_x \times L_y \times L_z$ festgelegt und die periodischen Randbedingungen eingebaut. Nun benötigt die MCS noch eine Anfangskonfiguration, dafür wurde in den meisten Fällen der geordnete $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand gewählt (siehe Abbildung 2.5). Das für die Simulation der Spins im Schwedenborgit entwickelte Programm richtet sich nach dem von Binder in [BH10] vorgeschlagenen Prinzip für das Ising Modell; hier erweitert für das Heisenberg nächst-Nachbar Modell. Von dem Grundzustand aus startet dann die MCS, bei der die folgenden fünf Schritte als ein Monte Carlo Schritt immer wieder wiederholt werden:

Algorithmus:

1. Wähle einen Spin S_i des Systems zufällig aus.
2. Bestimme eine zufällige Auslenkung.

3. Berechne die Energieveränderung δH .
4. Berechne die Übergangswahrscheinlichkeit W für die Auslenkung.
5. Vergleiche diese mit einer Zufallszahl zwischen null und eins, sollte die Übergangswahrscheinlichkeit oberhalb der Zufallszahl liegen, wird der Spin ausgelenkt, ansonsten nicht.

Dieser Algorithmus wird so oft durchgeführt, dass im Durchschnitt jeder Spin den Algorithmus einmal durchlaufen hat. Dies wird definiert als 1 Monte Carlo Schritt pro Platz, kurz MCS/Platz. Jedoch ist dieser neue Spinzustand noch sehr stark mit dem vorherigen korreliert. Deshalb wird die Anzahl an MCS/Platz so gewählt, dass im Durchschnitt jeder Spin hinreichend oft den Algorithmus durchlaufen hat. Damit aber die Korrelation zwischen zwei Systemzuständen, die weggeschrieben werden, nach Möglichkeit nicht mehr zu erkennen sind, muss MCS/Platz hinreichend groß gewählt werden. Eine häufig gewählte Korrelationszeit des Systems ist $\tau < 150$ MCS/Platz.

Bei der Definition des Spinsystems wird dieses notwendigerweise als endlich definiert ($L_x \times L_y \times L_z$) werden müssen. Somit spielen Grenzeffekte einen sehr starken Einfluss. Um dieses teilweise zu kompensieren, führt man periodische Randbedingungen ein, durch die die Randspins des Systems mit denen am gegenüberliegenden Rand verknüpft werden. Jedoch muss dann bei der Wahl der Systemgröße beachtet werden, dass die Längen des Systems Vielfache der periodische Spinstrukturen in der entsprechenden Dimension sein müssen, da diese sonst nicht ausgebildet werden können. Da der gewählte Grundzustand in x- und y-Richtung eine Periode von drei atomaren Einheitszellen (entsprechend der Definition des $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustands in 2.1.2) besitzt, wird das System zumindest in den x- und y-Richtungen immer als ein Vielfaches von 3 gewählt. Allgemein spricht man davon, dass die langreichweitige Ordnung kommensurabel mit der Systemgröße sein muss. In z-Richtung stimmt die Periode mit der magnetischen Elementarzelle überein.

2.4.1 Grundzustand und Ergodizität

Bei Khalyavin [KMMC10] wird ein sogenanntes "simulated annealing" verwendet, um in den Grundzustand zu gelangen. Dabei wird das Spinsystem aus einer zufälligen Startkonfiguration innerhalb der Simulation langsam "abgekühlt", um sicherzustellen, dass der energieminimierende Grundzustand erreicht wird. Dieses erfordert unter Umständen einen enormen zusätzlichen Rechenaufwand. Die Notwendigkeit dessen ist hier überprüft, denn ist erstmal dieser Grundzustand bestimmt worden, so lässt sich zur Vermeidung dieses Rechenaufwands genauso gut dieser als Startkonfiguration wählen. Somit wurde bei der Durchführung der MCS in den meisten Fällen der $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand als Startkonfiguration gewählt. Um dieses Vorgehen zu rechtfertigen, muss zum einen der Grundzustand als solcher verifiziert als auch das System auf seine Ergodizität überprüft werden. Denn gerade bei Systemen mit einer starken Frustration und der Mehrdeutigkeit der Zustände, ohne dass diese ineinander über gehen könnten, ist es zu erwarten, dass das System in einen von dem angenommenen Grundzustand verschiedenen Zustand relaxiert, aus diesem nicht mehr herausfindet und so nicht den vollständigen Phasenraum durchlaufen kann (nicht ergodisch). Betrachtet man zwei voneinander verschiedene Zustände A und B , wobei A und B beliebige Zustände des Phasenraums sind, so muss das Potential, das überwunden werden muss, um von Zustand A nach B zu gelangen, endlich sein. Dann ist das System im Limes unendlicher Simulationsschritte ergodisch. Jedoch kann es in bestimmten

Fällen dazu kommen, dass selbst wenn ein System ausschließlich solche beschränkten Potentiale aufweist, sich im Phasenraum ein vom Rest disjunkter Teilphasenraum bildet. Dies lässt sich nicht allgemein klären, sondern ist abhängig vom jeweiligen Algorithmus. Um dies für das vorliegende System zu untersuchen, wird eine Art simuliertes Aufheizen aus dem vorgegebenen Grundzustand durchgeführt und der Verlauf des Ordnungsparameters ψ (siehe 2.4.2) mit dem, aus der entsprechenden Abkühlung aus einer zufälligen Startkonfiguration verglichen, jeweils für verschiedene Verhältnisse von J_2 zu J_1 . Daraus ergibt sich die Abbildung 2.6.

Deutlich zu erkennen ist, dass das System bei Verhältnissen von J_2 zu J_1 , die zu einer vollstän-

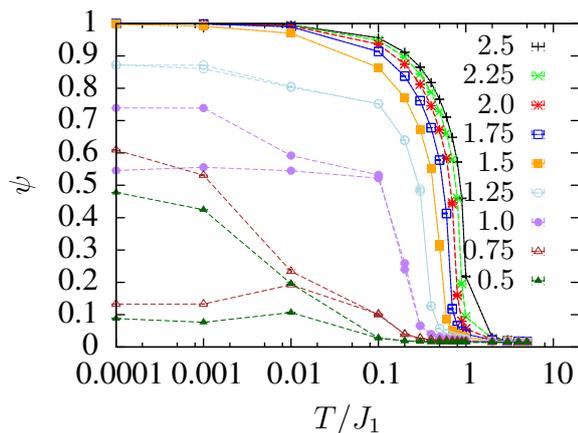


Abbildung 2.6: Vergleich der Ordnungsparameter für simuliertes Abkühlen und Aufheizen bei verschiedenen Verhältnissen J_2/J_1 .

digen Ordnung führen, keine ersichtlichen Differenzen zwischen dem Verlauf des Ordnungsparameters beim Aufheizen und Abkühlen erkennen lässt. Dies deckt sich mit der subjektiven Erfahrung während des Simulierens. Für Systeme mit kleineren Verhältnissen wird zwar die vollständige Ordnung nicht mehr erreicht, aber auch bei sehr tiefen Temperaturen relaxiert das Spinsystem instantan aus dem vorgegebenen Grundzustand in einen ungeordneteren Zustand (siehe Abbildung 2.6). Das heißt, dass das Ergodizitätproblem hier nicht existiert. Neben der eigentlichen MCS beinhaltet das Programm auch die Möglichkeit zur Berechnung verschiedener physikalischer Größen und der Streubilder aus dem simulierten Spinzustand.

2.4.2 Funktionen zur Analyse

Um aus der MCS die entsprechenden Schlussfolgerungen ziehen zu können, sind verschiedene Programmfunktionen entwickelt worden, die jeweils einen anderen Teil des Spinsystems beleuchten.

Spinbilder sind letztlich die gespeicherten Spinkonfigurationen aus der Simulation. Aus der Betrachtung dieser lassen sich verschiedene erste Erkenntnisse ziehen, die in den berechneten Größen schon nicht mehr zu erkennen sind, da man hier noch deutlich die stochastische Bewegung der Spins im Verlauf der Simulation verfolgen kann. Jedoch ist die Datenmenge zu groß und die subjektive Betrachtung zu unspezifisch, weswegen für globalere Untersuchungen die berechneten Größen am zweckmäßigsten sind.

Makroskopische Werte , die zu Analysezwecken bestimmt werden, sind vor allem die Energie und Untergittermagnetisierung. Erste errechnet sich aus dem Heisenberg nächst-Nachbar Hamiltonoperator und letztere aus der summierten Ausrichtung der jeweiligen Untergitterspins. Mit der Energie hat man ein Werkzeug zur Hand, mit dem man unter anderem relaxierte Zustände miteinander vergleichen kann um z.B. den energieminimierenden Zustand zu finden. Die Untergittermagnetisierung gibt Hinweise über die Ausrichtung der Spins und zu Phasenübergängen.

Der Ordnungsparameter ψ gibt das Verhältnis der Ausrichtung der Spins zum definierten $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand (vgl. Abbildung 2.5) an. Somit eignet sich der Ordnungsparameter sehr gut dazu, um Phasenübergänge zu erkennen und zu bestimmen. Der Ordnungsparameter ist so definiert, dass sowohl eine einheitliche Untergittermagnetisierung innerhalb einer Spinsäule, als auch die Orientierung dieser Säulen zueinander berücksichtigt wird. Da dies über Betragsquadrate realisiert wird, ist der Ordnungsparameter immer positiv definit. Diese relative Definition erlaubt den Spins die Rotation um eine globale Achse ohne Einbußen in der Ordnung, wie es gefordert ist. Jedoch ist der Ordnungsparameter nicht ganz eindeutig festgelegt, besitzt aber gleichzeitig den Vorteil, dass nicht über eine Vielzahl eindeutiger Ordnungsparameter gemittelt werden muss. Eine klare Bestimmung, welche Ordnung vorliegt, erhält man dann aus dem Streubild.

Streubilder werden über eine Fouriertransformation der Spins im Raum berechnet und bieten die Vergleichsmöglichkeit zu den Daten aus der Neutronenstreuung. Diese Streubilder lassen sich auch für einzelne Terme wie der chiralen Streuung, der Streuung in x-y- oder z-Richtung anzeigen. Besonders interessant ist, dass sich ein Einfluss des Verhältnisses von J_2 zu J_1 erkennen lässt. Vergleicht man die berechneten Intensitäten mit den gemessenen, ist es möglich, die Austauschwechselwirkungsparameter anzupassen. Dieses gelingt jedoch nur sehr ungefähr und für eine genauere Anpassung ist es geeigneter das Spektrum der Spinwellenanregungen zu verwenden.

2.4.3 Bestimmung thermischer Mittelwerte und Phasendiagramm

Die Temperatur kommt ins Spiel durch die verwendete Boltzmannverteilung als Gewichtungsfaktor bei der Bestimmung der Veränderung der Spinausrichtung. Hier ist es angebracht, die Sprache der Thermodynamik zu verwenden und es lässt sich ein Spinzustand als ein Ensemble verstehen, bei dem die Temperatur T und das magnetische Feld \mathbf{H} unabhängige thermodynamische Zustandsgrößen sind und z.B. die Magnetisierung $\langle M \rangle_T$ eine von H abgeleitete Zustandsgröße ist. Die thermischen Mittelwerte der abgeleiteten Zustandsgrößen lassen sich bestimmen über die Wahrscheinlichkeit P_μ für die abgespeicherten Zustände $\mu = 1, \dots, n$ mit $n \gg 1$ in denen sich die Zustandsgröße A_i befindet:

$$\langle A \rangle = \sum_{\mu=1}^n P_\mu A_\mu. \quad (2.78)$$

Da man nun Zustandsgrößen wie die Untergittermagnetisierung thermisch mitteln kann, ließe sich nun anhand dieser als Ordnungsparameter der Phasenübergang vom geordneten antiferromagnetischen Zustand zum paramagnetischen untersuchen, wie es im Ising Modell der linearen

Kette gemacht wird. Jedoch stellt man fest, dass sich zwar innerhalb der jeweiligen Phase Fluktuationen gegenüber der großen Untergittermagnetisierung wegmitteln lassen, dies aber nicht am Phasenübergang gelingt. Hier fällt die Untergittermagnetisierung stark ab, aber die Fluktuationen nehmen stark zu bis hin zur Größenordnung der Untergittermagnetisierung selbst. Um diese Probleme zu bewältigen, könnte man die Wurzel aus dem Erwartungswert des Quadrats der Untergittermagnetisierung einführen $M'_{rms} = \sqrt{\langle M'^2 \rangle_T}$, also den Effektivwert der Untergittermagnetisierung. Jedoch ist dieser Effektivwert für alle Temperaturen ungleich null, und deshalb schwierig zu betrachten.

Deshalb geht man über zu dem zuvor definierten Ordnungsparameter ψ . Bei Temperaturen weit oberhalb und unterhalb der Ordnungstemperatur T_c und solange die Dimensionen des Spinsystems L die Korrelationslänge ξ übersteigen, sollte der Ordnungsparameter im Verlauf der MCS Schritte für eine Konfiguration eine gaussförmige Verteilungsfunktion $P_L(\psi)$ besitzen. Im Bereich des Phasenübergangs, zeigt diese zwei gegeneinander verschobene Gaussverteilung. Da die Korrelationslänge in praktischen Anwendungen nicht notwendigerweise bekannt ist, wurde zur Betrachtung der Verteilung des Ordnungsparameters das Konzept der Kumulante 4. Ordnung von Binder entwickelt [BH10]:

$$U_L = 1 - \frac{\langle \psi^4 \rangle_L}{3 \langle \psi^2 \rangle_L^2}. \quad (2.79)$$

Bei dieser wird ein höheres Moment der Verteilungsfunktion verwendet, wodurch diese empfindlicher gegenüber Phasenübergängen ist. Die höheren Momente geben die Abweichungen von der gaussförmigen Verteilungsfunktion des Ordnungsparameters an, im Gegensatz z.B. zu einer Mittelwertbildung, bei der diese mitunter gerade rausgemittelt wird. Wichtige Eigenschaften der Kumulante sind die folgenden:

- Für $T > T_c$ und $L \gg \xi$ gilt: U_L geht gegen 0, da $U_L \propto L^{-d}$
- Für $T < T_c$ und $L \gg \xi$ gilt: U_∞ geht gegen $2/3$
- Für $L \ll \xi$ gilt: U_L variiert nur schwach mit der Temperatur und linear mit der Dimension

Diese Eigenschaften machen die Kumulante 4. Ordnung zum idealen Werkzeug zur Bestimmung von Phasenübergängen bzw. T_c . Wenn man U_L für verschiedene Systemgrößen berechnet und gegen die Temperatur aufträgt, dann schneiden sich die Graphen der U_L bei T_c , wobei bei kleinen Systemgrößen am ehesten Abweichungen zu erwarten sind. Dies lässt sich zeigen durch Betrachtungen der Korrelationen beim "finite size scaling" (siehe [BH10]).

Mit diesen Voraussetzungen kann nun ein Phasendiagramm bestimmt werden. Interessant ist sowohl die Bestimmung der Übergangstemperatur T_c in Abhängigkeit von J_2/J_1 , als auch das Phasendiagramm für J_2 aufgetragen gegenüber J_1 , um für weitere Untersuchungen herauszufinden, wann das System klar im geordneten Zustand ist und inwiefern das Verhältnis J_2/J_1 die Ordnung beeinflusst.

Wie sich gezeigt hat, führen die stochastischen Bewegungen und die wirklichen physikalischen Bewegungen zu dem gleichen thermischen Gleichgewicht für unendlich viele Spins, aber letztlich hat die stochastische Spinbewegung sehr wenig mit der wirklichen Bewegung zu tun. Denn die stochastischen Bewegungen beschreiben nur ein reines Relaxtionsverhalten und nur über die Betrachtung physikalischer Bewegung (Berücksichtigung der Drehimpulserhaltung) lassen sich Spinwellenanregungen untersuchen.

2.5 Simulation der Spinwellendynamik

Durch die am Dreiachsenspektrometer PANDA gemachten Beobachtungen, war nicht klar ob mit dem bei der Spinwellenrechnung verwendeten Modell die gemessenen Spinwellenanregungen ausreichend beschrieben werden können. Deshalb wurde als zusätzliche Möglichkeit zur Anpassung eines Modells an die Messdaten eine numerische Simulation der Spinwellendynamik entwickelt. Besondere Anregung dazu gab die Doktorarbeit von Julien Robert [Rob07]. Innerhalb dieser wurde jedoch ausdrücklich nur ein ideales 2D Kagomegitter betrachtet. Dieses wurde dann auf das vorliegende Spinsystem und Heisenberg nächst-Nachbar Modell übertragen. Ausgehend von einem in der Monte Carlo Simulation ausreichend lang relaxierten Spinsystem werden die zukünftigen Spins unter Berücksichtigung des Heisenberg Modells berechnet. Ein Spinsystem mittlerer Größe enthält bei den Monte Carlo Simulationen Kantenlängen von $12 \times 12 \times 12$ Elementarzellen und enthält insgesamt 13824 Spins. Über die Wechselwirkung mit ihren Nachbarspins bzw. unter dem Einfluss des Molekularfeld der benachbarten Spins verändert jeder Spin seine Richtung in der Zeit:

$$\frac{dS_i}{dt} = S_i \times \sum_j S_j = S_i \times H_{MF,i}. \quad (2.80)$$

Hierfür muss für jeden Spin ein System von drei gewöhnlichen Differentialgleichungen gelöst werden. Dieses Anfangswertproblem wird für jeden Zeitschritt für jeden Spin mittels des Runge-Kutta Verfahren 8. Ordnung Prince-Dormand aus der Gnu Scientific Library [GDT⁺03] gelöst, welches bei richtiger Parameterwahl, wie bei [Rob07] beschrieben, sich als geeignetes Verfahren heraus gestellt hat. Der Neuberechnete Zustand ergibt dann den Anfangswert für die Bestimmung des darauffolgenden Zustands.

2.5.1 Numerische Simulation

Ausgehend von der Eulermethode zur numerischen Integration, lässt sich die Runge-Kutta Methode entwickeln [PTVF92]. Bei beiden wird über die Taylorentwicklung von $y(t+h)$ um t aus $y(t)$ das benachbarte $y(t+h)$ bestimmt:

$$y(t+h) = y(t) + h \frac{dy}{dt} + \frac{h^2}{2!} \frac{d^2y}{dt^2} + \frac{h^3}{3!} \frac{d^3y}{dt^3} + \mathcal{O}(h^4). \quad (2.81)$$

Demzufolge ist h hier die Schrittweite. Der Unterschied von Runge-Kutta gegenüber der Euler-Methode ist, dass Erstere es erlaubt, die Terme höherer Ordnung in h zu berechnen (bei der Euler-Methode wird nur die erste Ordnung in h berücksichtigt). Diese Zunahme an Präzision bezahlt man mit einem entsprechendem Zuwachs an Rechenzeit. Die vorherige Schrittweite h wird hier weiter unterteilt und dabei werden zusätzliche Stützstellen berechnet. Für die Methode zweiter Ordnung wird ein zusätzlicher Wert k_2 für einen Zeitpunkt in der Mitte des Intervalls $[t_n, t_n + h]$ berechnet:

$$k_1 = h \cdot f(t_n, y_n) \quad (2.82)$$

$$k_2 = h \cdot f\left(t_n + \frac{h}{2}, y_n + \frac{h}{2}k_1\right) \quad (2.83)$$

$$y_{n+1} = y_n + k_2 + \mathcal{O}(h^3). \quad (2.84)$$

Bei dem speziellen Runge-Kutta-Verfahren 8. Ordnung werden 12 Stützstellen verwendet.

2.5.2 Fouriertransformation in Raum und Zeit

Sind mit dem Runge-Kutta-Verfahren ausreichend viele Zeitpunkte von aufeinanderfolgenden Spinzuständen simuliert worden, werden diese sowohl in Raum als auch in Zeit fouriertransformiert, um den dynamisch magnetischen Strukturfaktor zu bestimmen:

$$S(\mathbf{Q}, \omega) = \frac{1}{N_{Sp}} \left\langle \tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{Q}, \omega) \cdot \tilde{\mathbf{S}}^*(\mathbf{Q}, \omega) \right\rangle = \frac{1}{N_{Sp}} \left\langle \left| \tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{Q}, \omega) \right|^2 \right\rangle, \quad (2.85)$$

wobei $S(\mathbf{Q}, \omega)$ die Intensität, $\tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{Q}, \omega)$ die Amplitude und N_{Sp} die Anzahl der Spins ist und

$$\tilde{\mathbf{S}}(\mathbf{Q}, \omega) = \sum_{i=1}^{N_{Sp}} \int_{-\infty}^{\infty} dt \mathbf{S}_i(t) e^{-i\mathbf{Q} \cdot \mathbf{R}_i} e^{-i\omega t} \quad (2.86)$$

gilt. Die Fouriertransformation im Raum entspricht der, die auch bei der Berechnung des Streubilds aus der Monte Carlo Simulation verwendet wird. Da diskrete Spins an fixierten Punkten transformiert werden, handelt es sich um eine diskrete Fouriertransformation. Wichtig hierbei ist dann, dass die Grenzen und Auflösung auf die Systemgröße angepasst ist (Auflösung in eine Richtung ist das Reziproke der Systemlänge in diese Richtung). Für die Fouriertransformation in der Zeit, wird der berechnete Zeitausschnitt durch wiederholtes Anfügen vergrößert. Damit es zu keinen Unstetigkeitsstelle an den Übergängen kommt, wird der Ausschnitt immer mit einer gaussförmigen Einhüllenden multipliziert. Danach wird über diese Zeitpunkte diskret fouriertransformiert. Auch hier muss die Auflösung $\Delta\omega$ an die simulierten Zeitpunkte angepasst sein.

Kapitel 3

Experimentelles

3.1 Proben

In den in dieser Diplomarbeit durchgeführten Neutronenstreuexperimenten wurde an zwei verschiedenen Kristallen von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ gemessen. Das Ausgangsmaterial bei der Probenzucht wies nach Auskunft des Herstellers für CaCO_3 , BaCO_3 und $\frac{2}{3}\text{Cu}_3\text{O}_4$ eine Reinheit von pro Analyse auf und Fe_2O_3 eine von mindestens +99%. Die daraus gezogenen Kristalle wurden unterschiedlich orientiert um die Messung unterschiedlicher Ebenen im reziproken Raum zu ermöglichen, für die $hk0$ -Ebene und hhl -Ebene. Die Genauigkeit dieser Vorzugsachsen liegt untersucht mit dem Laueverfahren bei 1° bis 2° . Bei den durchgeführten Rockingkurven ergab sich für die Halbwertsbreite der strukturellen Braggpeaks 0.2° . Dies weist auf eine entsprechend gute Mosaizität hin. Das Volumen des $hk0$ -Kristalls ist ungefähr 1.6 cm^3 und das des hhl -Kristalls ist ungefähr 0.9 cm^3 .



Abbildung 3.1: Die beiden verwendeten Kristalle, oben hhl -Kristall und darunter der $hk0$ -Kristall. Hier mit den Halterungen für das Dreiachsenspektrometer PANDA.

Die Herstellung der für die Experimente notwendigen Proben fand durch Martin Valldor vom 2. Phys. Institut der Universität Köln statt. Da ich an dieser nicht beteiligt war, möchte ich auf das entsprechende Kapitel in Erik Roséns Diplomarbeit hinweisen, in der die Herstellung ausführlich beschrieben und dokumentiert ist.

3.2 Dreiachsenspektrometer: PANDA

Das Experiment PANDA ist ein Dreiachsenspektrometer an der kalten Quelle des Kernreaktors FRM II [LP99]. Somit treten am Experiment Neutronen mit Energien von bis zu 20 meV auf. Dies ist jedoch durch den speziellen Aufbau des Experiments weiter eingeschränkt. Der

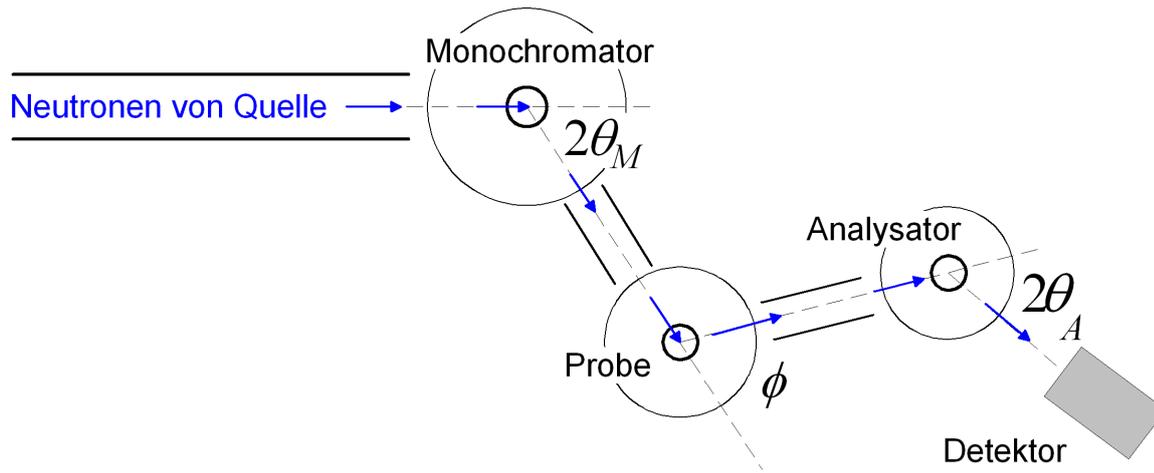


Abbildung 3.2: Schematischer Aufbau eines Dreiachsenspektrometers. Gekennzeichnet sind die drei Rotationsachsen. Aus [Ros11]

grundsätzliche Aufbau, unabhängig von den verwendeten Neutronen, besteht aus den drei Achsen und dem Detektor zur Messung der gestreuten Neutronen (vgl. Abbildung 3.2). Ausgehend von den aus dem Reaktor kommenden Neutronen treffen diese zuerst auf den horizontal und vertikal fokussierenden Monochromator (1. Achse). An diesem werden die Neutronen abhängig ihrer Energie gestreut, so lässt sich über die Bragg-Bedingung mit der Rotation um die Achse die gewünschte Eingangswellenlänge bzw. Eingangsenergie $E_i = E_M$ der Neutronen auswählen. Diese Neutronen werden unter einem Winkel von $2\theta_M$ zur Probe (2. Achse) reflektiert, wobei der Probenstisch entsprechend dem Ausfallwinkel um die Monochromatorachse rotiert werden muss. Die Probe kann auch um sich selbst rotiert werden. Um die Probenachse rotiert der Analysator mit dem Winkel ϕ . Der Analysator (3. Achse) entspricht dem Monochromator ist aber nur horizontal fokussierend. Wieder über die Bragg-Bedingung mit der entsprechenden Rotation des Analysators können die Neutronen einer bestimmten Energie $E_f = E_A$ ausgewählt werden. Diese werden dann zum Detektor unter dem Winkel $2\theta_A$ reflektiert. Durch die Kombination aus Monochromator und Analysator lässt sich für eine festgelegte Energieveränderung $E_i - E_f$ der Neutronen deren Intensität pro Zeit messen. Gilt $E_i - E_f \neq 0$, dann misst man inelastische Streuung [SLE⁺06], ansonsten elastische. Zusätzlich gibt es die Möglichkeit zwischen zwei verschiedenen Filtern zu wählen, diese werden zwischen Probe und Analysator eingebaut und beeinflussen die durchgelassenen Neutronen abhängig von ihrer Wellenlänge und so auch den Neutronenfluss. Zu Beginn des Experiments war der Be-Filter installiert. Bei diesem hat man einen Fluss von $1.9 \cdot 10^7 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ am Probenort bei einer Durchlasswellenzahl von $k_i = 1.5 \text{ \AA}^{-1}$. Im Verlaufe des Experiments wurde der Beryllium-Filter gegen den Pyrolytischer Graphit-Filter getauscht, dieser hat mit $5.5 \cdot 10^7 \text{ n/cm}^2/\text{s}$ bei einer Eingangswellenzahl von $k_i = 2.662 \text{ \AA}^{-1}$ einen wesentlich höheren Neutronenfluss. Je nach Wahl des Filters wird der Monochromator entsprechend eingestellt. Somit ist man hier durch die Filter auf die beiden Eingangswellenzahlen beschränkt. In den Abbildungen 3.3a und 3.3b ist der Einbau der Probe dargestellt. Damit die Probe im Kryostat sich nicht von der Halterung lösen und dann in diesen hinabfallen kann, wird die Probe mit Aluminiumfolie umwickelt und diese an der Halterung fixiert. Danach wird abgemessen, ob sich die Probe zentral im Strahl befindet, dazu wird sie an dem Probenstab fixiert. In Abbildung 3.3c ist das Instrument Panda im Gesamten zu sehen. Innerhalb des grünen Zylinders befindet sich der Monochromator. Unterhalb des schmalen blauen Zylinders, dies ist der Kryostat, ist die Probe eingebaut. Zur Justierung ist dieser Teil auf zwei

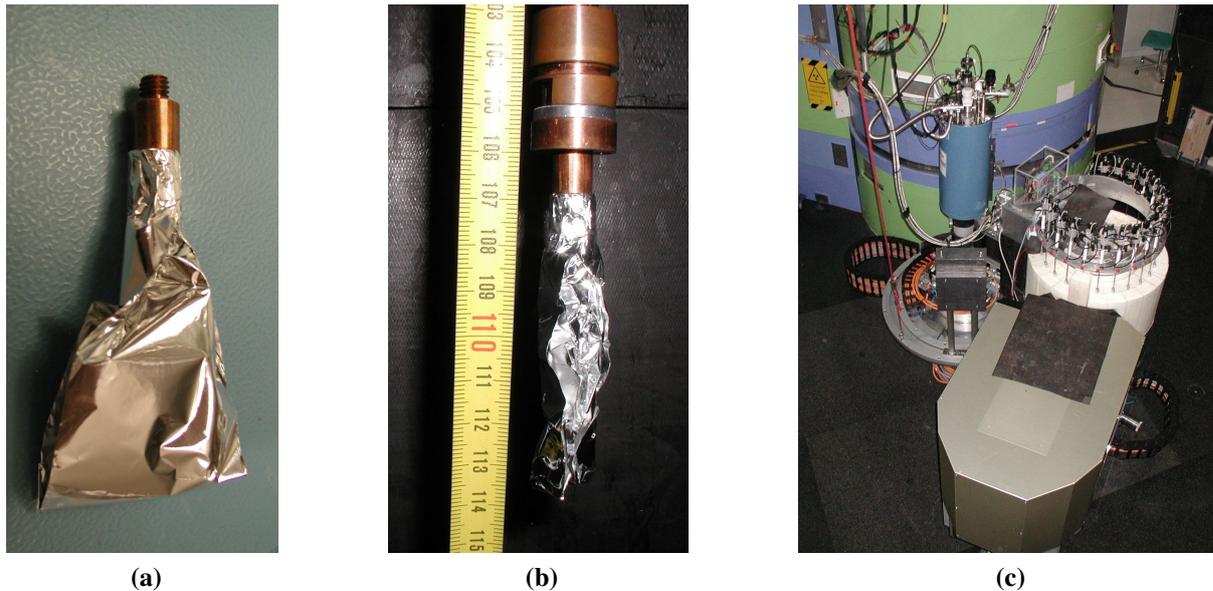


Abbildung 3.3: Einbau der Probe am Experiment Panda.

(a) Umhüllung der Probe und deren Halterung mit Aluminium, (b) Montage am Probenstab und Sicherstellung der Zentrierung der Probe, (c) Ansicht des Experiments aus der Experimentierkabine,

Eulerwiegen montiert, so kann die Probe nachträglich genau ausgerichtet werden. Innerhalb des weißen Zylinders befindet sich der Analysator und zuletzt kommt das Gehäuse mit dem Detektor. Die Teile können durch Druckluft mit sehr geringen Kräften über den "Tanzboden" rotiert werden.

Für die Messungen wurde der Neutronenstrahl mit Blenden auf die Probenquerschnittsfläche angepasst, um den Untergrund zu reduzieren.

Abhängig von der Einstellung des Analysators ergibt sich ein entsprechendes Auflösungsellipsoid. Dieses ist gestreckt, d.h. in der gestreckten Richtung hat man die geringere Auflösung, sammelt aber mehr Intensität ein. D.h. wenn man Abbildung 3.7 betrachtet, wird für den Punkt in Raum und Energie, an dem man misst, die gesamte Intensität von der Oberfläche des Paraboloids, der in den Bereich des Auflösungsellipsoids fällt, eingesammelt. Somit ist klar, dass eine bessere Auflösung gleichzeitig mit einem Verlust von Intensität einhergeht. Eine Auswirkung dieser Streckung des Auflösungsellipsoid zeigt sich Abbildung 3.4b. Dies ist ein Ausschnitt der Messung am hhl Kristall bei 5K. Deutlich sieht man bei kleinen Energien einen linearen Anstieg, innerhalb des eingezeichneten Auflösungsellipsoids. Der Einfluss ist hier besonders stark, da die Intensität des Braggpeaks die der inelastischen Streuung um mehrere Potenzen überstrahlt. In diesen Abbildungen wird auch verdeutlicht, wie aus den Messpunkten die Intensitätskarte erzeugt wird. Hierbei werden die Intensitäten der 4 Eckpunkte eines Vierecks gemittelt. Dieser Wert wird dann der Farbe des Vierecks zugeordnet.

Um sicherzustellen, dass das System ausreichend geordnet ist, wurde bei möglichst niedrigen Temperaturen gemessen (5 K). Bei so tiefen Temperaturen existieren aber kaum angeregte Spinwellen, deshalb ist die Wahrscheinlichkeit für einen Energiegewinn des Neutrons sehr gering. Deswegen werden die Messungen des Energieübertrags ausschließlich bei einem positiven Übertrag von Neutron auf Spinwelle durchgeführt. Das heißt, die Anregungsmöglichkeit von Spinwellen wird untersucht. Um aber auch die Temperaturabhängigkeit zu untersuchen,

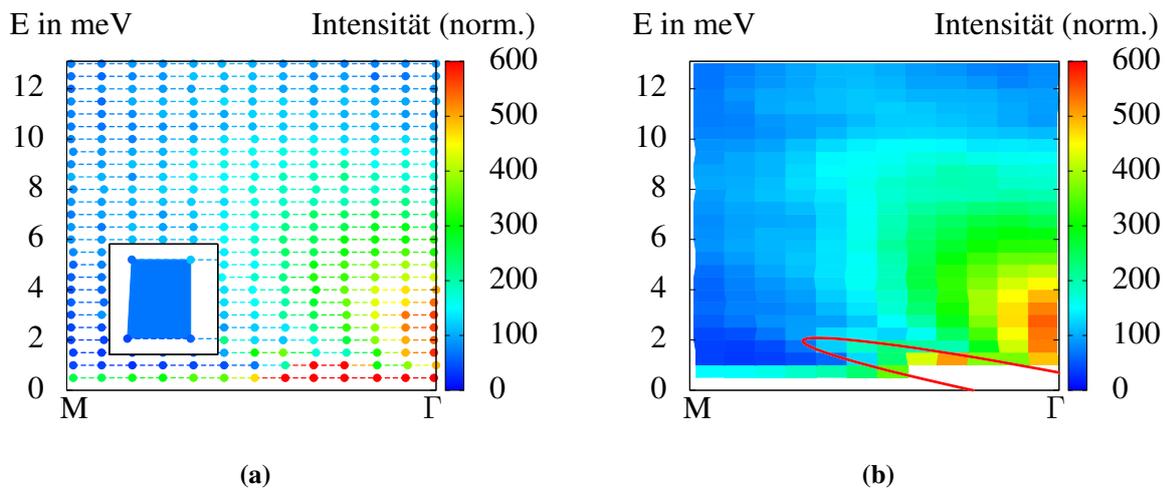


Abbildung 3.4: Beispielmessung in der hhl-Ebene.

(a) Darstellung jedes einzelnen Messpunkts. Die Richtung der Messungen läuft entlang den Linien von Γ nach M. (b) Intensitätskarte der Messung des hhl Kristalls bei 5K. Markiert ist der Einfluss des Auflösungsellipsoid.

wurden die gleichen Messungen bei einer weiteren Temperatur (60 K) unterhalb der Ordnungstemperatur durchgeführt.

Mit Hilfe von "constant energy scans" wird, ausgehend von einem zentralen magnetischen Peak, ein "energymapping" entlang den Symmetrierichtungen der dazugehörigen magnetischen Brillouinzone durchgeführt. Dies geschieht schrittweise entlang der Richtung, wobei für jede Messung entlang der Symmetrierichtung der Energieübertrag schrittweise erhöht wird (siehe Messpunkte in Abbildung 3.4a). Dadurch erhält man letztlich eine vollständige Karte der Intensität in Abhängigkeit von Energieübertrag und q .

3.3 Flugzeitspektrometer: ARCS

ARCS ist ein Flugzeitspektrometer an der Spallationsquelle SNS (Abbildung 3.5a). Der Vorteil eines Flugzeitexperiments an einer Spallationsquelle ist, dass im Gegensatz zu der Neutronenstrahlung bei einem Reaktor, nicht aus einem konstanten Neutronenfluss Pulse durch sogenannte "chopper" herausgeschnitten werden müssen, sondern der Neutronenfluss ist von vornherein gepulst. Wird nun die Schneidfrequenz geeignet gewählt können die benötigten Pulsen mit weniger Neutronenverlust erzeugt werden. Dieses Flugzeitspektrometer ist im Besonderen auf einen sehr hohen Fluss an der Probenposition und eine große Abdeckung des Winkelbereichs mit Detektoren ausgelegt. Das Instrument wurde bestmöglich darauf optimiert, dass die an der Probe gestreuten Neutronen bis zum Detektor nicht mehr gestreut werden. Somit wird die Untergrundstreuung minimiert, aber, wie in Abbildung 3.6c zu sehen ist, ist es trotzdem möglich die Probe und Probenumgebung schnell zu wechseln.

Um dieses zu ermöglichen, wurde das Instrument letztlich unterhalb des Hallenbodens aufgebaut und die Probenumgebung und die Detektorbänke (ortssensitive ^3He Detektoren) durch

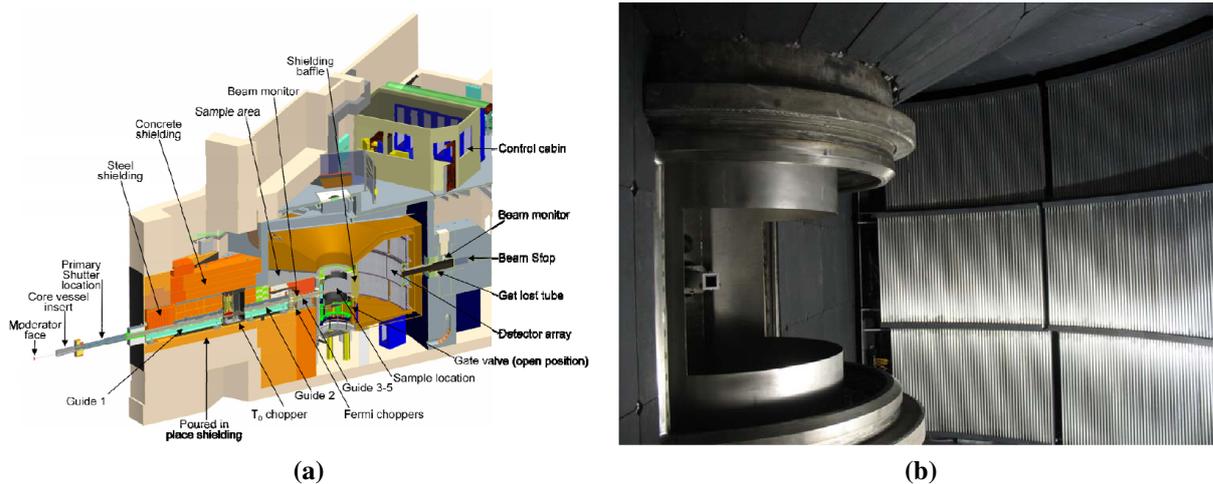


Abbildung 3.5: Aufbau des Flugzeitspektrometers ARCS. Aus [ASL⁺11]

(a) Schematischer Aufbau. Gekennzeichnet sind die einzelnen Komponenten (b) Aufnahme der Detektorbänke.

eine bewegliche Schleuse getrennt, um die Probenumgebung zum Probenwechsel separat von den Detektoren belüften zu können. Die Energie der Neutronen kann durch 2 hintereinander gebaute "Chopper" eingestellt werden. Dies geschieht, indem die Chopper nicht nur zueinander in Phase rotiert werden, sondern auch zu den von der Quelle ausgesandten Neutronenpulsen. Die Detektorbänke sind, wie in Abbildung 3.5b zu sehen ist, horizontal aufgebaut und haben in der horizontalen Richtung eine Abdeckung -28 bis 135° , in der vertikalen eine von -27° bis 26° . Der gesamte Aufbau ist Abbildung 3.5a zu entnehmen. Aus dem Aufbau ergibt sich für das Experiment eine typische Eingangsenergie E_i der Neutronen von 15 bis 1500 meV. Dabei ist die Energieauflösung für die elastische Streuung 3 bis 5 % der Eingangsenergie.

Auch beim Einbau der Probe wird besonderer Wert darauf gelegt, dass möglichst wenig Untergrund erzeugt wird. Aus diesem Grund wird der Halter der Probe mit Blei umwickelt und die Probe in dem Aluminiumbehälter unter niedriger Heliumatmosphäre verschlossen (siehe Abbildung 3.6a). Gleichzeitig dient das Helium als Austauschgas. Als Dichtungsmaterial wird hier Indium verwendet. Dieser Behälter wird dann zuerst am Kryostaten befestigt, Abbildung 3.6b, und, nachdem eine zusätzliche Hülle aus Alufolie angebracht wurde, in der tiefer gelegenen Probenkammer versenkt, siehe Abbildung 3.6c.

Am ARCS kann auf zwei verschiedene Arten gemessen werden. Im Normalfall wird die Eingangsenergie der Neutronenstrahlung durch die zwei Chopper eingeschränkt und so das inelastische Spektrum gemessen. Zudem kann das Instrument auch so eingestellt werden, dass sich ein "weißer"¹ Neutronenstrahl ergibt. Ein solcher eignet sich für Lauemessungen. Diese finden hier zur Orientierung des Kristalls statt.

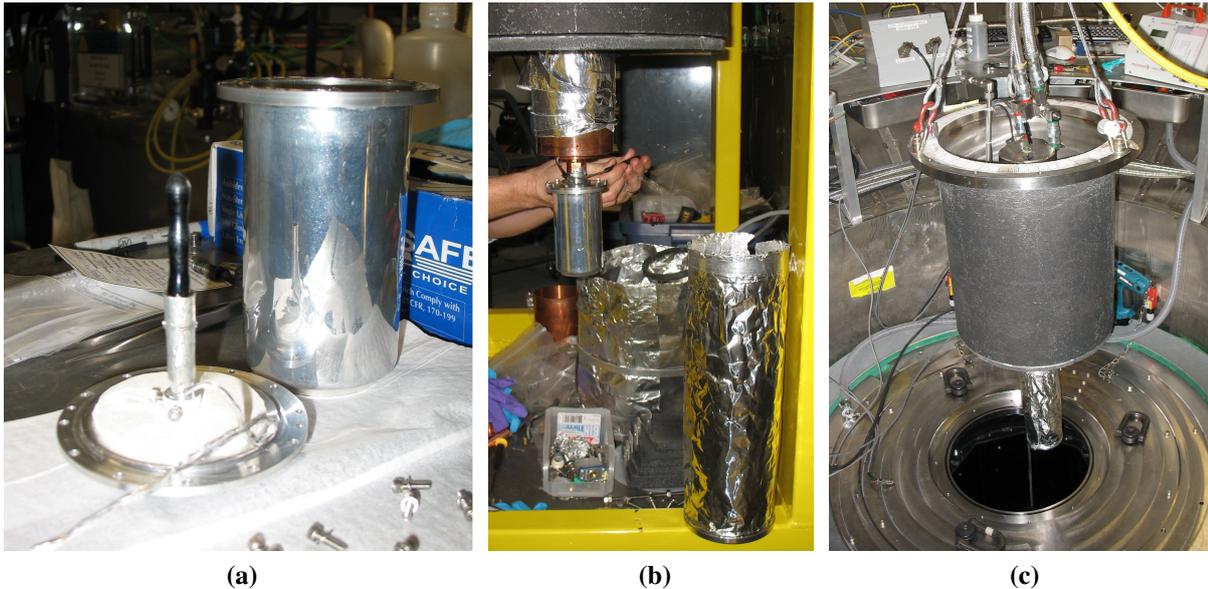


Abbildung 3.6: Einbau des Kristalls in das Experiment ARCS.

(a) Befestigung des Kristalls innerhalb eines Behälters aus Aluminium, (b) Montage des Behälters am Unterteil des Kryostaten, (c) Versenkung des Kryostaten in der Probenvakuumkammer.

3.3.1 Messung des inelastischen Spektrums

Bei der Messung des inelastischen Streuspektrums hält man die Temperatur konstant und rotiert die Probe. Nach jedem Rotationsschritt wird 20 Minuten gemessen und dann um 2° weiter rotiert. Das heißt, dass die gemessene Oberfläche des Paraboloids entlang einer vom Mittelpunkt versetzten Achse durch den k -Raum rotiert wird (vgl. Abbildung 3.7). In der praktischen Ausführung bedeutet das, dass der Kristall zuerst in Winkelschritten von 2° in einem Winkelbereich von 60° vermessen wird und danach werden die Zwischenräume wieder in 2° Schritten aufgefüllt. In jeder Probenposition wurde dann 20 min gemessen. Betrachtet man dies in der Ebene des k -Raums bei konstanter Energie, dann erhält man als Schnittmenge von Paraboloid und Ebene einen Kreis, der, wie in 3.8a zu sehen, um die Drehachse durch den Raum rotiert wird. Es ergibt sich in den Messdaten kein vollständiger Kreis, da die Winkelabdeckung in der Ebene durch Detektoren nicht vollständig ist. Dies zeigt sich auch wenn man einen Schnitt in $h0l$ -Richtung betrachtet. In Abbildung 3.8b sind deutlich die einzelnen Detektorbereiche zu erkennen, aber auch, dass selbst bei der Messung des $hk0$ -Kristalls durch die Höhe dieser Detektoren der Q -Raum mehrere Elementarzellen weit in l -Richtung gemessen wird. Diese Abdeckung in alle Richtungen gibt im Prinzip die Möglichkeit zu einer umfassenden Betrachtung der Spinwellenanregung. Natürlich ist es auch möglich, die Eingangsenergie entsprechend der gewünschten Untersuchungsgebiete zu wählen. Durch eine höhere Wahl der Eingangsenergie wird offensichtlich auch die Abdeckung des Q -Raums vergrößert, gleichzeitig aber auch die Auflösung in Q verschlechtert. Somit muss hierbei ein Kompromiss gefunden werden, der an die für die Untersuchung bedeutsamen Bereiche angepasst ist. Die Messungen erzeugen sogenannte "Neutron Event Files", in denen die Daten Nachweisort und Zeit für jedes einzelne detektierte Neutron gespeichert sind. Für jede Winkelstellung des Kristalls wurden 60 bis

¹Mit "weiß" bezeichnet man in Analogie zum Sonnenlicht einen Strahl, der Strahlung vieler Wellenlängen beinhaltet.

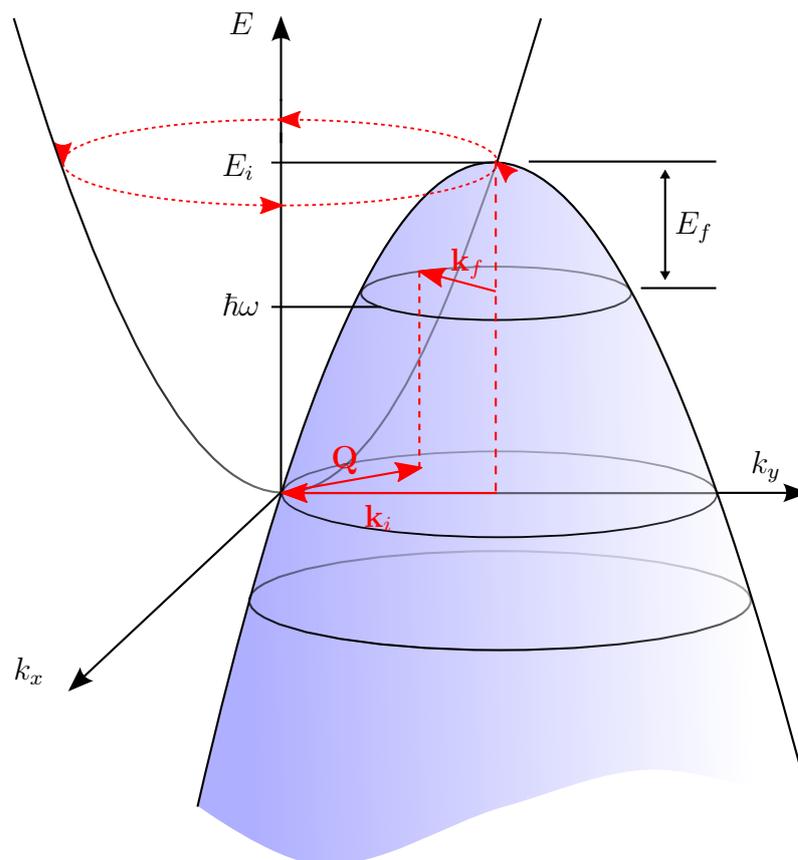


Abbildung 3.7: Schema zum Zusammenhang von Eingangs- (E_i), Ausgangsenergie E_f und \mathbf{k} . Die angedeutete Drehung des Paraboloiden entspricht dem Messvorgang am Flugzeitspektrometer ARCS.

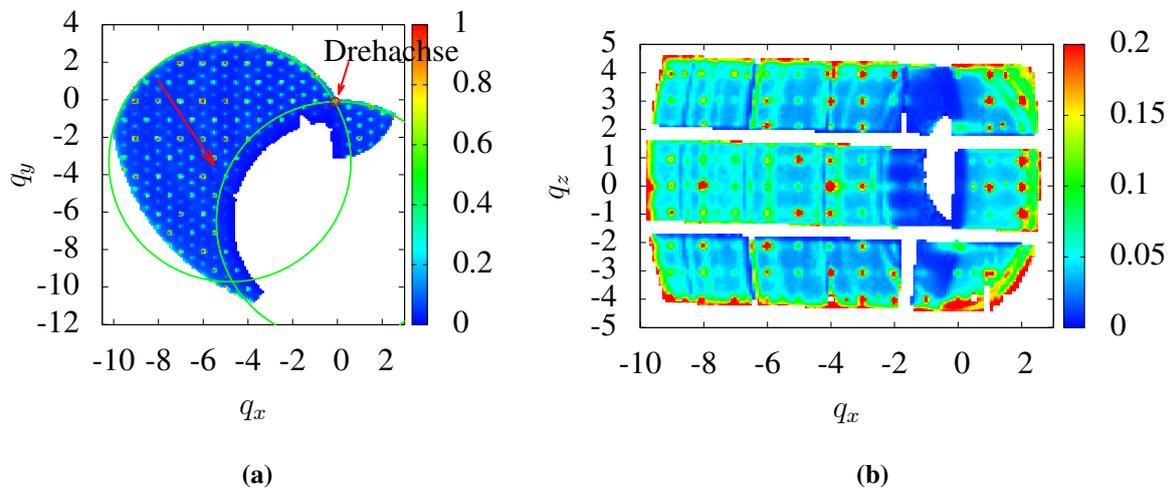


Abbildung 3.8: Q-Raumabdeckung für die Messung am hk0-Kristall bei geringer Integration in der Energie $[0,10]$ meV.

(a) hk0-Ebene aus der Messung des hk0-Kristalls. In grün sind die Schnittkreise dargestellt, auf denen für eine Winkeleinstellung in der Ebene gemessen wird. (b) h0l-Ebene aus der Messung des hk0-Kristalls.

100 MB an Eventdaten aufgenommen. Somit erhält man für einen kompletten Datensatz gleiche Eingangsenergie ein Datenvolumen von über 4 GB. Dieser Datensatz wird dann zu einer $S(\mathbf{Q}, \omega)$ -Datei zusammengefasst, deren Größe auf Grund der internen Struktur auf 10 bis 13 GB erhöht wird. Für ein solches Datenvolumen sind bei der Auswertung leistungseffiziente Programme von Nöten. Hier wird die Auswertung mit dem Programm "horace" durchgeführt, das bei ISIS für eben solche Messungen entwickelt wird [Hor]. Trotzdem dauert das Zusammenfügen der Messdaten mitunter mehr als eine Stunde, was ein zeitnahes Betrachten der Daten sehr schwierig macht. Dies gilt im Besonderen, da erst wenn ein Großteil der Daten für eine Einstellung gemessen ist, die Paraboloidoberflächen zusammen ein deutliches Bild ergeben. Innerhalb des Programms hat man die Möglichkeit 1D, 2D oder 3D Schnitte in dem 4D Datensatz durchzuführen. Hier zeigt sich eine der Schwierigkeiten aber auch der große Vorzug der Analyse von Flugzeitspektrometerdaten, denn diese umfassen einen ganzen Volumenbereich des k-Raums plus die Dimension der Energie, wobei jeder 4D Punkt mit einer Intensität belegt ist. Somit ist bei der Auswertung immer darauf zu achten, in welchen Bereichen und Richtungen aufintegriert werden darf, um einen aussagekräftige Intensitätsplot zu erhalten.

3.3.2 Lauemessung

Hier werden die beiden Chopper zu der Neutronenpulsfrequenz der Quelle nicht phasenverknüpft eingestellt, dadurch gelangt die vollständige Bandbreite der Neutronenstrahlung zur Probe. Somit wird im k-Raum nicht nur die Oberfläche des zur Eingangsenergie gehörigen Paraboloids abgebildet, sondern für alle Energien der "weißen" Neutronenstrahlung. Dabei geht jedoch die Energieauflösung verloren. Mit diesem Verfahren können wie bei einer gewöhnlichen Lauemessung die Braggpeaks gemessen werden. Diese Messdaten werden dann mit dem Programm „ISAW“ [ISA] ausgewertet (siehe Abbildung 3.9). So lässt sich die Orientierung des

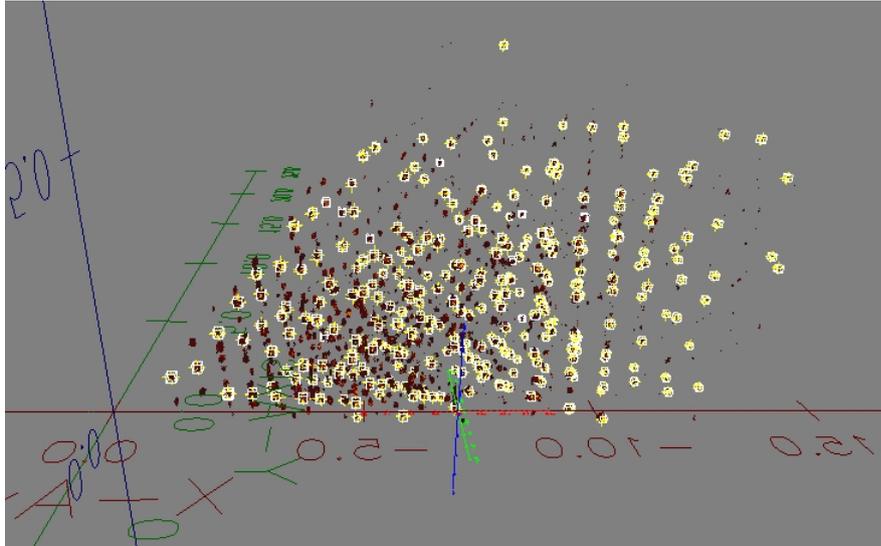


Abbildung 3.9: Darstellung der mit Isaw ausgewerteten Lauedaten. Rot sind die renormierten Messpunkte. Weiß markiert sind die gefundenen Peaks und gelb die mit der gefundenen Elementarzelle indizierten Peaks.

Kristalls bestimmen. Das ist deshalb wichtig, da der zu untersuchende Kristall in der Probenhalterung nicht ausgerichtet werden kann, sondern dies nachträglich bei der Messdatenauswertung geschehen muss. Bei dem abgebildeten Datensatz handelt es sich um eine Messung des $hk0$ -Kristalls bei 5 K. Die Orientierungsmatrix wurde damit zu

$$\begin{pmatrix} -0.076238 & 0.071326 & -0.004955 \\ -0.099581 & -0.030355 & -0.007361 \\ -0.006850 & -0.000626 & 0.096356 \end{pmatrix} \quad (3.1)$$

bestimmt. Für die Gitterparameter $a = 11.0540$, $b = 11.0703$, $c = 10.3519$, $\alpha = 89.9462$, $\beta = 90.0279$ und $\gamma = 120.0560$. Hierbei handelt es sich um die 3 mal größere magnetische Zelle. Die Ergebnisse weichen leicht von dem Ergebnis der Strukturbestimmung am Einkristalldiffraktometer HEIDI ab (vgl. Tabelle E.1).

Kapitel 4

Phasenübergänge

Vor der Betrachtung der Spinwellen ist zu klären, unter welchen Voraussetzungen mit einem geordneten System zu rechnen ist und so den möglichen Parameterraum für die Austauschwechselwirkungen J_1 und J_2 zu beschränken. Dazu wird zum einen ein Phasendiagramm für die Abhängigkeit der Phasen von J_1 und J_2 bei konstanter Temperatur bestimmt und zum anderen die Temperaturabhängigkeit der antiferromagnetischen Phase genauer untersucht.

4.1 Monte Carlo Simulationen

Grundlage für die hier durchgeführten Simulationen ist das beschriebene abgewandelte Heisenberg nächst-Nachbar Modell. Auch werden auf Grund der großen Parametervielfalt Anisotropien vernachlässigt und nur das Grundmodell an sich untersucht. Denn es ist wichtig, dieses vollständig zu verstehen, bevor es mit zusätzlichen Termen erweitert wird. Im Folgenden sollen die Phasenübergänge soweit möglich mittels der Bestimmung der Binderkumulante für verschiedene Systemgrößen ermittelt werden. Wie zuvor in Abschnitt 2.4 dargelegt, wurde von Binder gezeigt, dass der Schnittpunkt der Graphen der Kumulante der einzelnen Systemgrößen als die Phasengrenze bestimmt werden kann.

4.1.1 Phasendiagramm für J_2 gegen J_1

Hierbei wurde bei konstanter Temperatur für festgehaltene Austauschwechselwirkung J_1 der Parameter J_2 verändert. In der Umgebung, in der der Phasenübergang erwartet wird, wurde die MCS, um ausreichende Statistik zu gewährleisten, mit einer 10fach höheren Schrittzahl durchgeführt, da vor allem im Bereich des Phasenübergangs die Relaxation sehr lange benötigt oder sogar gar nicht eintritt. Hier wurde der Bereich $J_1, J_2 = -2.5 \dots 2.5$ mit einer Schrittweite von 0.25 in beiden Parametern simuliert. Auf eine kleinere Schrittweite wurde auf Grund des hierfür erforderlichen Rechenaufwands¹ verzichtet. Die Ergebnisse reichen aber aus, um die grundsätzliche Struktur zu bestimmen und diese mit dem Ergebnis von Khalyavin in [KMMC10] zu vergleichen. Zuerst wurde festgestellt, wie viele durchschnittliche Monte Carlo Schritte pro Platz nötig sind, um Korrelationen zwischen den weggeschriebenen aufeinanderfolgenden Zuständen zu minimieren. Diese Schrittzahl soll so gering wie möglich gewählt werden, da eine hohe Anzahl zu höherer Rechenzeit aber nicht zu höherer Statistik führt. In den

¹Die hier durchgeführten Simulationen benötigten auf einer 8 Kern CPU aktueller Leistung fast 3 Monate.

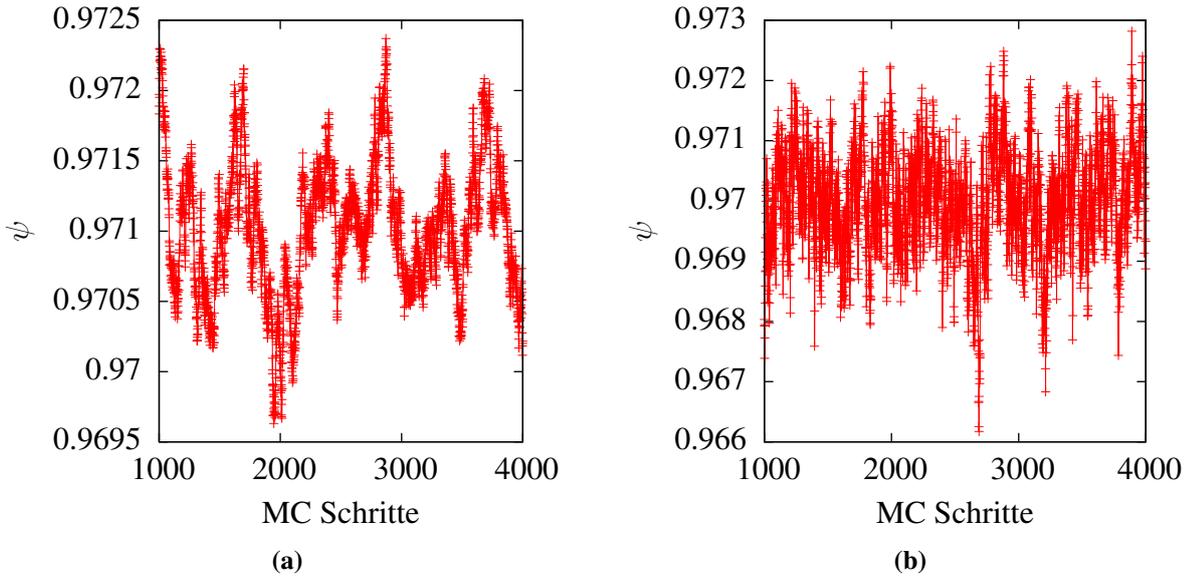


Abbildung 4.1: Vergleich der Korrelationen bei unterschiedlicher Anzahl von Monte Carlo Schritten pro Platz

(a) Entwicklung des Ordnungsparameters bei einem Monte Carlo Schritt pro Platz (b) Entwicklung des Ordnungsparameters bei 150 Monte Carlo Schritten pro Platz

Abbildungen 4.1a und 4.1b zeigt sich der Unterschied zwischen deutlich korrelierten Zuständen und nicht mehr ersichtlich korrelierten. Bevor die eigentliche Simulation gestartet werden kann, müssen die Phasengrenzen abgeschätzt werden. Dazu werden kurze Simulationen für mittlere Systemgröße durchgeführt und anhand der Spinstellung der mögliche Übergang eingegrenzt. Zusammen mit der Voruntersuchung der Phasenübergangsgrenzen sind nun die Voraussetzungen für eine erfolgreiche Simulation gegeben. Hierzu wird für feste J_1 , startend im höher geordneten Zustand $J_2 < 0$, simuliert. Ausgehend von der vermuteten Phasengrenze werden für die 5 nächsten Simulationskonfigurationen in beide Richtungen in J_2 5000 statt 500 „unkorrelierte Zustände“ simuliert. Dann kann aus dem Ordnungsparameter sowohl die Suszeptibilität [BH10]

$$\chi = L_x L_y L_z \cdot \frac{\langle \psi^2 \rangle_L - \langle \psi \rangle_L^2}{T}, \quad (4.1)$$

hier sind L_x , L_y und L_z die Dimensionen des Spinsystems, als auch die Binderkumulante entsprechend 2.79 berechnet werden. Hier mit einer verkürzten Form:

$$U'_L = \frac{\langle \psi^4 \rangle_L}{\langle \psi^2 \rangle_L^2}. \quad (4.2)$$

Diese besitzt aber die gleiche Aussagekraft. Für $J_1 = -1.0$ sind diese in den Abbildungen 4.2a, 4.2b und 4.3 exemplarisch dargestellt. Aus den Graphen der Kumulante lässt sich jedoch kein klarer Schnittpunkt bestimmen. Hierzu wäre eine kleinere Schrittweite sowie höhere Anzahl an simulierten Zuständen (höhere Statistik) nötig. Deutlich zeichnet sich hier aber der vollständig geordnete Bereich bei $U'_L = 0$ ab. Betrachtet man den Verlauf des Ordnungsparameter, so kann man um $J_2 = 0$ einen nahezu vollständig ungeordneten Bereich ausmachen. Zwischen diesen Bereichen muss dann der Phasenübergang liegen. Dieser Übergang ist an Hand der Peaks sehr deutlich bei den Graphen der Suszeptibilität zu erkennen.

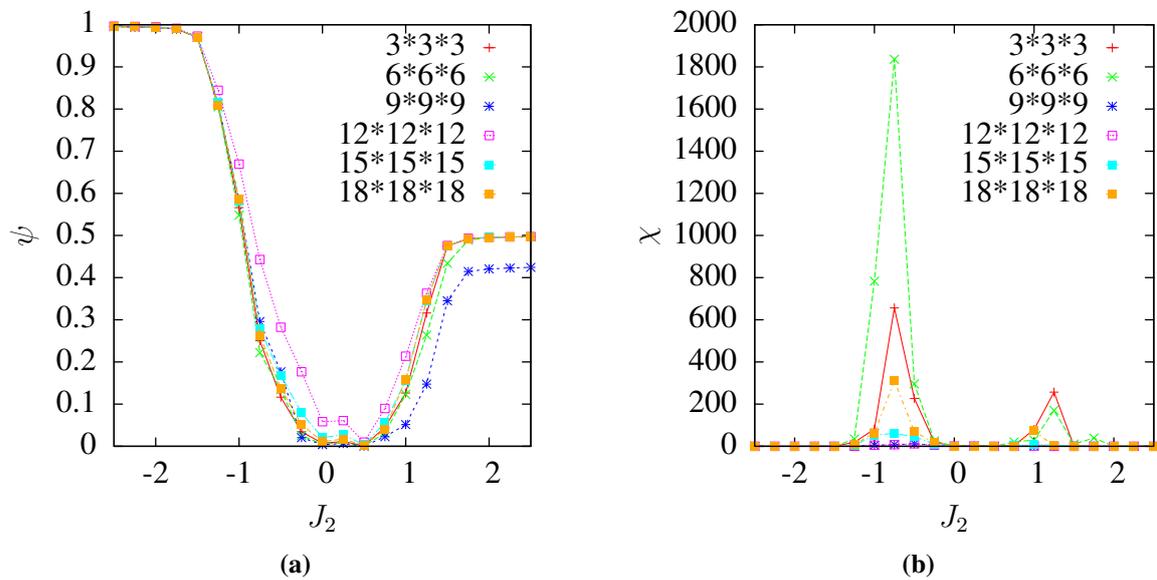


Abbildung 4.2: Beispiel für das Verhalten der Parameter an der Phasengrenze. Hier für $T/|J_1| = 0.01$ und $J_1 = -1.0$.

(a) Variation des Ordnungsparameters in J_2 und Systemgröße (b) Variation der Suszeptibilität in J_2 und Systemgröße

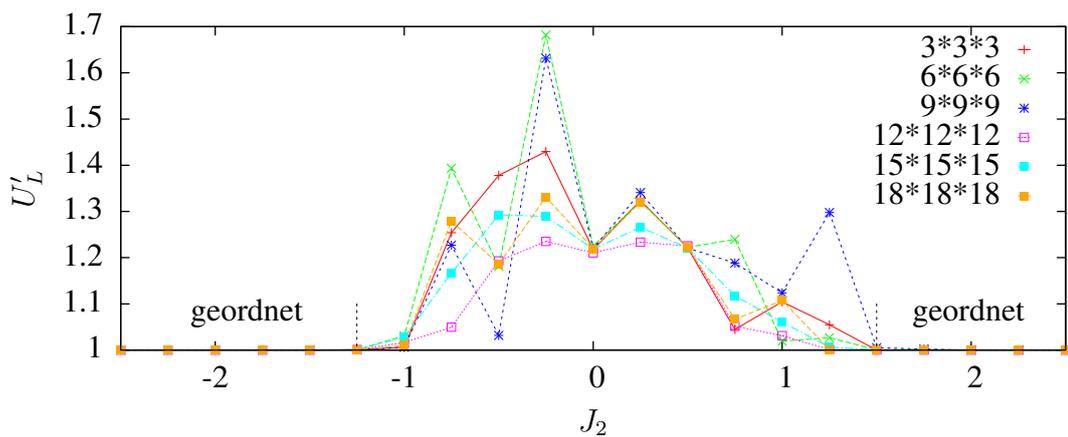


Abbildung 4.3: Beispiel zur Bestimmung der Phasenübergänge in J_2 mittels der Kumulante. Hier für $T/|J_1| = 0.01$ und $J_1 = -1.0$.

Das aus diesen Informationen bestimmte Phasendiagramm für die Temperatur $T = 0.01/J_1$ ergibt dann die Abbildung 4.4. Zu den jeweiligen Phasenbereichen ist jeweils ein typisches Streusowieso Spinbild abgebildet. Anhand der Streubilder, aber auch der Spinstellung im Realraum, können den einzelnen Bereichen bestimmte Arten der Ordnung zugeordnet werden. Hier zeigt sich auch ein großer Vorteil, der Art wie der Ordnungsparameter definiert ist. So ist mit diesem z.B. auch der Bereich der ferromagnetischen Ordnung für positive Austauschwechselwirkungsparameter J_1 zu J_2 im **1. Quadranten** deutlich zu bestimmen. Dies lässt sich natürlich auch klar an der Ausrichtung der Spins im Realraum erkennen und auch das Streubild entspricht der Erwartung. Wichtig ist zu erwähnen, dass auch wenn der Ordnungsparameter nur gegen einen endlichen Wert strebt, der Bereich als geordnet betrachtet werden kann, da nur bei einer genauen Entsprechung der Definition ein Ordnungsparameter von 1 erreicht wird.

Eindeutig ist auch der **4. Quadrant**. Hier ist die Austauschwechselwirkung in der Kagomeebene weiterhin positiv, die zwischen der Kagomeebene und der trigonalen Ebene aber negativ. Daraus ergibt sich ein klares nicht geometrisch frustriertes Resultat, bei dem die Spins aus der gleichen Ebene zueinander parallel stehen, aus verschiedenen Ebenen jedoch antiparallel zueinander sind. Das bedeutet, dass sich hier eine ferrimagnetisch geordnete Struktur mit einem resultierenden magnetischen Moment ausbildet.

Nicht vollständig mit einer Phase ausgefüllt ist zum Beispiel der **2. Quadrant**. Hier ist die Wechselwirkung in der Ebene negativ und die aus der Ebene positiv. Das bedeutet, dass die Spins in den Kagomeebenen geometrisch frustriert sind und die Spins der Zwischenebenen diese bei der Anordnung beeinflussen. Im Prinzip bewirkt dies eine Konfiguration, die nicht zu verschieden von der für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ ist. Das zeigt sich auch im Ordnungsparameter ψ , der hier nur eine halbvollständige Ordnung aufzeigt (vgl. Abb. 4.2a). Hier reicht eine coplanare Ordnung nicht mehr aus, um die geometrische Frustration zu kompensieren, sondern die Spins in der Kagomeebene sind stärker aus der Ebene orientiert. Sie weisen aber dennoch ungefähr eine, bei aus verschiedenen Säulen stammenden benachbarten Spins, 120° Orientierung zu einander auf. Innerhalb der Säulen sind nun alle Spins parallel zueinander, da J_2 positiv ist und sich die Spins auf den Dreiecksgitterebenen nun parallel zu denen der Kagomeebene ausrichten. Im Vergleich mit der Definition des Ordnungsparameters sind diese um 180° gedreht. Auch diese Ordnung ist ferrimagnetisch, da sich durch die stark aus der Ebene orientierten Spins ein resultierendes magnetisches Moment ergibt. Die magnetischen Momente in der Ebene kompensieren sich gerade.

Im **3. Quadranten**, in den sich auch der Kristall $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ einordnen lässt, ist nun sowohl J_1 als auch J_2 negativ. Beide Wechselwirkungen sind also antiferromagnetisch. Auf Grund der Tetraederstruktur zwischen den magnetischen Atomen, kommt es unter diesen Voraussetzungen zur geometrischen Frustration. Die letztlichen Auswirkungen sind aber, wie man deutlich sehen kann, sehr unterschiedlich und stark abhängig von dem Verhältnis von J_2 zu J_1 . Denn als Ursprungsgerade zieht sich die Phasengrenze quer durch den 4. Quadranten (schwarz gestrichelt). Wobei zu größeren J_2 hin die geordnete Struktur vorliegt und zu kleineren hin die ungeordnete bzw. teilweise geordnete. Wenn man die Ausrichtung der Spins im Realraum betrachtet, wird erkenntlich wieso. Denn durch die stärkere Wechselwirkung zwischen den nicht aus derselben Ebene stammenden Spins, wird die antiferromagnetische Wechselwirkung zwischen den Spins in der Ebene unterdrückt, bzw. über den Fe-Spin wird eine stärkere ferromagnetische Wirkung vermittelt. So kommt es zu dem für diesen Kristall typischen Bild der drei parallelen Co-Spins und dem Fe-Spin darüber bzw. darunter (ein Doppeltetraeder). Gleichzeitig zeigt sich zwischen diesen "Säulen" der Doppeltetraeder wieder das klassische Muster der geometrischen Frustration, wie es sich bei einem antiferromagnetisch gekoppelten Dreiecksgitter ausbildet. So lässt

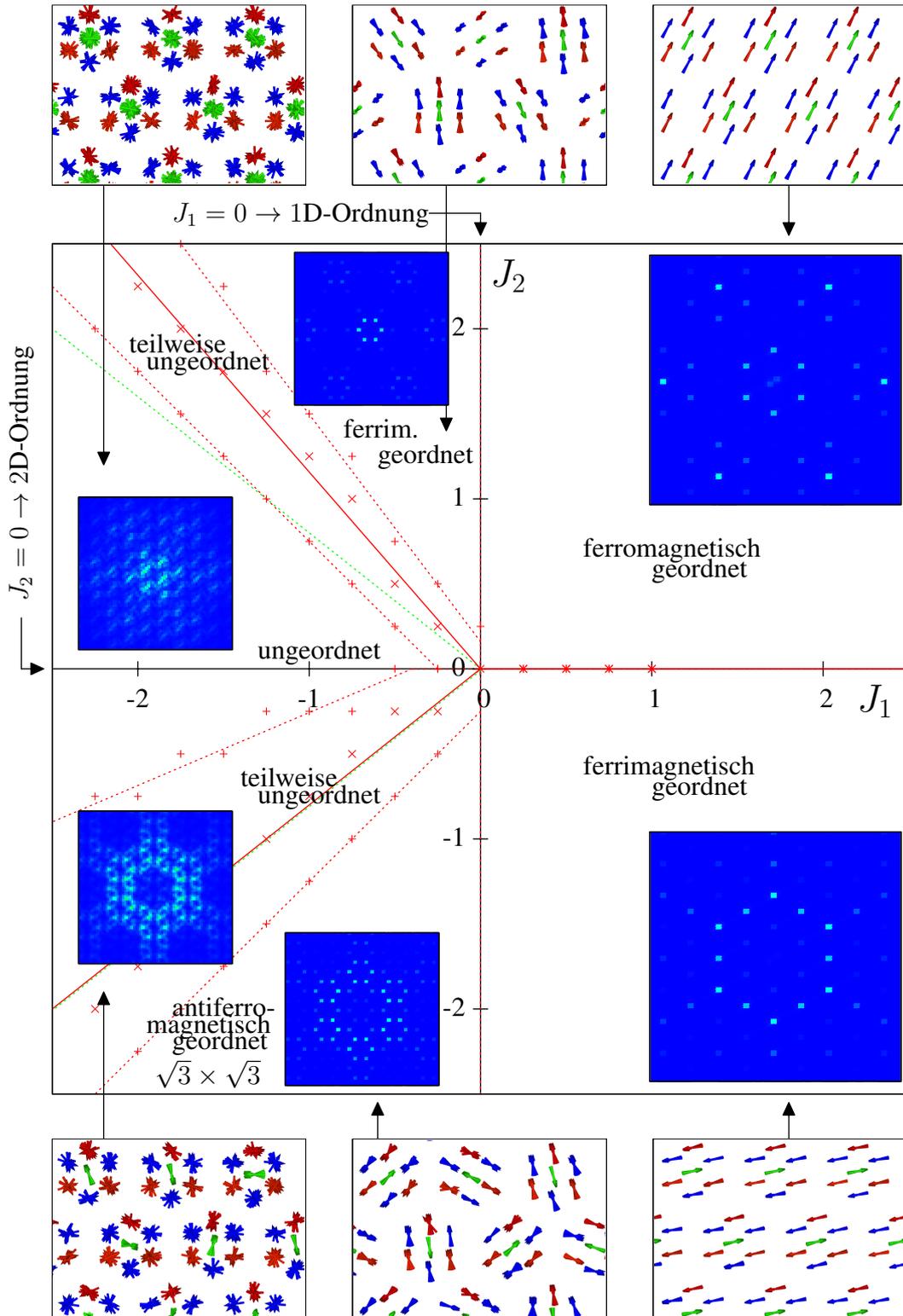


Abbildung 4.4: Phasendiagramm für J_2 gegen J_1 bei $T/J_1 = 0.01$. Den einzelnen Phasen sind ihre typischen Streubilder (Punkte bei exakt $|\mathbf{Q}| = 0$ nicht berechnet) zugeordnet. Besonders markiert ist die vermutete Einordnung von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Die roten Linien markieren die mittels der Suszeptibilität bestimmten Phasengrenzen. Die rot gestrichelten Linien stammen aus der Bestimmung von Phasengrenzen mittels der Kummulante und des Ordnungsparameters. In grün gestrichelt sind zum Vergleich die „mean-field“ Ergebnisse von Khalyavin eingetragen. Der Fehler auf die eingetragenen Messpunkte wird vor allem bestimmt durch die Abstände der Simulationspunkte und liegt somit im Bereich $\sigma_{J_2} = 0.1$.

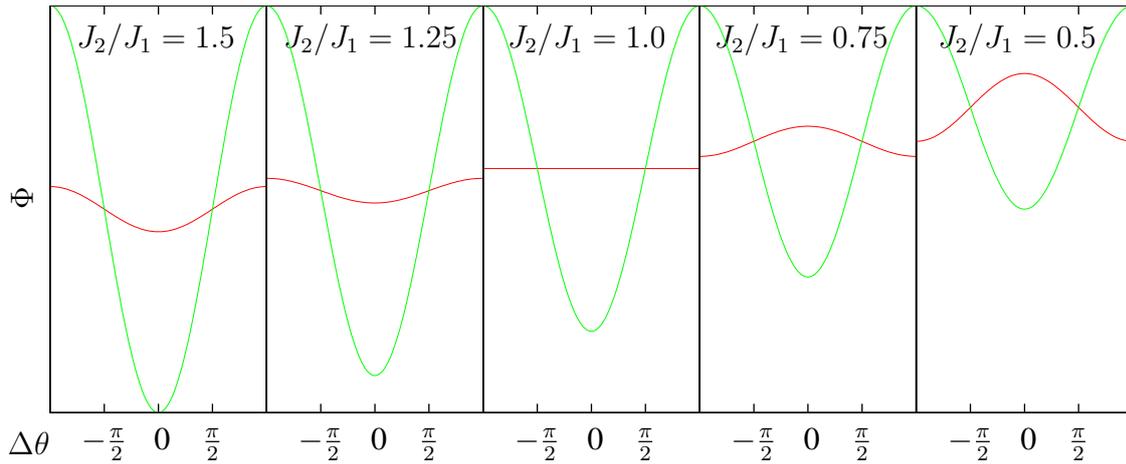


Abbildung 4.5: Energiepotential bei der Auslenkung $\Delta\theta$ eines Spins aus dem $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand in der coplanaren Ebene (vgl. Abbildung 5.17) für verschiedene Verhältnisse von J_2 zu J_1 . Berechnet mit dem abgewandelten nächst-Nachbar Modell. Rot: Kagomespin. Grün: trigonaler Spin.

sich dieser Zustand als Dreiecksgitter mit den Doppeltetraedersäulen als elementare Zelle beschreiben.

Das grundsätzliche Verhalten der Phasengrenzen im 2. und 3. Quadranten ist vergleichbar. Der ungeordnete Bereich dazwischen weist eine nicht absolute vollständige Unordnung auf und ist leicht abhängig davon, ob J_2 positiv oder negativ ist. Das ermittelte Phasendiagramm bestätigt im Prinzip das Ergebnis des mit „mean-field“-Theorie bestimmten Phasendiagramms in [KMMC10] (Im Phasendiagramm grün gestrichelt). Lediglich bei der Phasengrenze im 2. Quadranten zeigen sich Abweichungen.

Bei einer genaueren Betrachtung der Spinbilder zeigt sich, dass ausgehend vom geordneten Zustand im 3. Quadranten mit steigendem J_2 zuerst die Kagomespins beginnen ihre Ordnung zu verlieren und die Spins der trigonalen Ebene länger stabil bleiben und dann vergleichsweise schnell ihre Ordnung verlieren. Um diese Beobachtung analytischer zu betrachten, ist in Abbildung 4.5 für verschiedene Verhältnisse von J_2 zu J_1 das Energiepotential Φ für die Auslenkung aus dem Grundzustand jeweils für den Spin auf dem Kagomegitter und dem auf dem trigonalen Gitter aufgetragen. Deutlich zu erkennen ist, dass bis zu einem Verhältnis von $J_2/J_1 > 1.0$ der $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand für alle Spins energieminimierend ist. Ab einem Verhältnis von $J_2/J_1 \leq 1.0$ ist der Kagomespin nicht mehr bestrebt im Grundzustand zu bleiben, sondern scheint sogar zu höheren Auslenkungen gedrängt zu werden. Da die Berechnung der Energiepotentiale auf der Auslenkung eines einzelnen Spins beruht und die Auslenkung mehrerer Spins nicht berücksichtigt wurde, bei der der Auslenkung entgegenwirkende Kräfte auftreten können, ist dies nur für kleine Auslenkungen gültig. Sicher ist jedoch auf jeden Fall, dass die trigonalen Spins stärker in dem Grundzustand fixiert sind als die Kagomespins und erst wenn diese ausreichend ungeordnet sind, gelangen die trigonalen Spins aus dem Grundzustand.

Da die Streubilder eine gewisse Abhängigkeit von dem Verhältnis aufweisen (vgl. 1.3), wird hier versucht die für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ möglichen Verhältnisse einzuschränken. Dazu sind in Abbildung 4.6 die Streubilder für die Verhältnisse $J_2/J_1 = 1.0, 1.25$ und 1.5 der Messung der magnetischen Streuung gegenübergestellt. Die Messung wurde die obere linke Hälfte beschränkt, wodurch sich unvollständige Muster zeigt. Deutlich lässt sich ein Verhältnis oberhalb von 1.0 annehmen, da das simulierte Streubild hier eine unzureichende Ordnung zeigt. Bei einem Verhältnis von 1.25 ist diese erreicht, jedoch sind im Vergleich zum simulierten Streubild

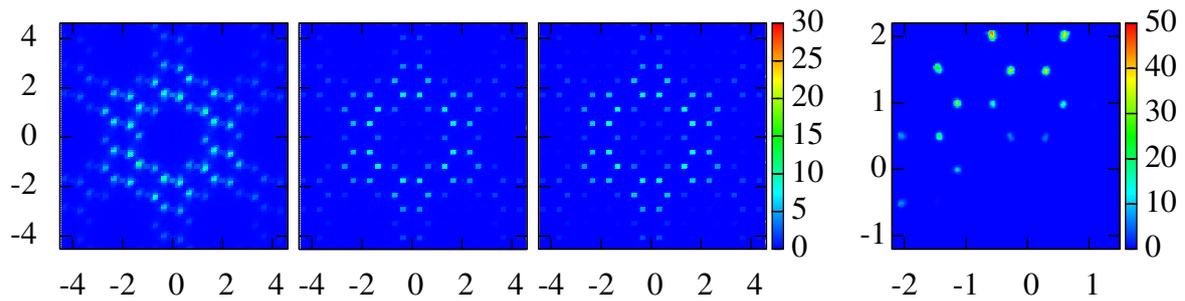


Abbildung 4.6: Vergleich der simulierten Streuung für die Verhältnisse $J_2/J_1 = 1.0, 1.25$ und 1.5 mit der gemessenen magnetischen Streuung in z-Richtung aus [Ros11] (v.l.n.r).

des Verhältnisses 1.5 nicht die Peaks des innersten Sechsecks aus der Messung zu erkennen. Daraus lassen sich die möglichen Verhältnisse auf $J_2/J_1 > 1.25$ beschränken. Letztlich befindet sich $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ mit denen für dieses Material bisher abgeschätzten Parameterwerten klar im Bereich der geordneten Phase. Für weiterführende Untersuchungen lässt sich also mit einer gewissen Sicherheit eine Ordnung im $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand feststellen.

4.1.2 Phasendiagramm für T gegen J_2/J_1

Für den Phasenbereich, in dem $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ angesiedelt ist, werden nun neben den bestimmten Phasengrenzen in Abhängigkeit von den Austauschwechselwirkungsparametern auch die Phasenübergänge in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt. Hierbei wird durchgängig $J_1 = -1.0$ angenommen. Dies ist insofern keine Beschränkung der Allgemeinheit, da die Phasenbereiche nur abhängig von dem Verhältnis J_2 zu J_1 sind (siehe Phasendiagramm Abbildung 4.4).

Zur Bestimmung dieses Phasendiagramms wurde für festgehaltenes Verhältnis der Austauschwechselwirkungsparametern J_1 und J_2 die Temperatur variiert und dies wiederum für verschiedene Systemgrößen, um über die Binderkumulative die Phasengrenzen zu ermitteln. Im Bereich der jeweils vermuteten Phasengrenze wurde wieder mit der 10fachen Anzahl an MCS Schritten simuliert. Wie zuvor wurde aus dem Ordnungsparameter die Suszeptibilität (Gleichung 4.1) und die Binderkumulative (Gleichung 4.2) bestimmt. Betrachtet man Abbildung 4.7a, so sieht man sehr deutlich, dass der Ordnungsparameter für größere Systeme kontinuierlich abnimmt. Das ist zu erwarten, da sich bei einem kleinen System die Spinausrichtung über die Randbedingungen schneller zurückfaltet und so die Ordnung verstärkt. Ansonsten ist ein klarer stetiger Phasenübergang zu erkennen. Der Peak der Suszeptibilität liegt beim Phasenübergang und nimmt mit der Systemgröße zu. Betrachtet man die Graphen der Kumulanten, so zeigt sich, dass abgesehen von dem der kleinsten Systemgröße, sich der Schnittpunkt recht klar bestimmen lässt. Der Graph der Systemgröße "3*3*3" wird vernachlässigt, da dessen Graph auch beim Ordnungsparameter und der Suszeptibilität stark von den übrigen abweicht. Der Fehler auf die bestimmte Übergangstemperatur liegt dann im Bereich von $\Delta T/J_1 \approx 0.1$ und könnte mit zusätzlichem Rechenaufwand noch deutlich reduziert werden. Da es bei diesen Untersuchungen aber darum geht, sich ein Bild von den Phasenübergängen zu verschaffen, ist das Ergebnis in diesem Sinne zufriedenstellend.

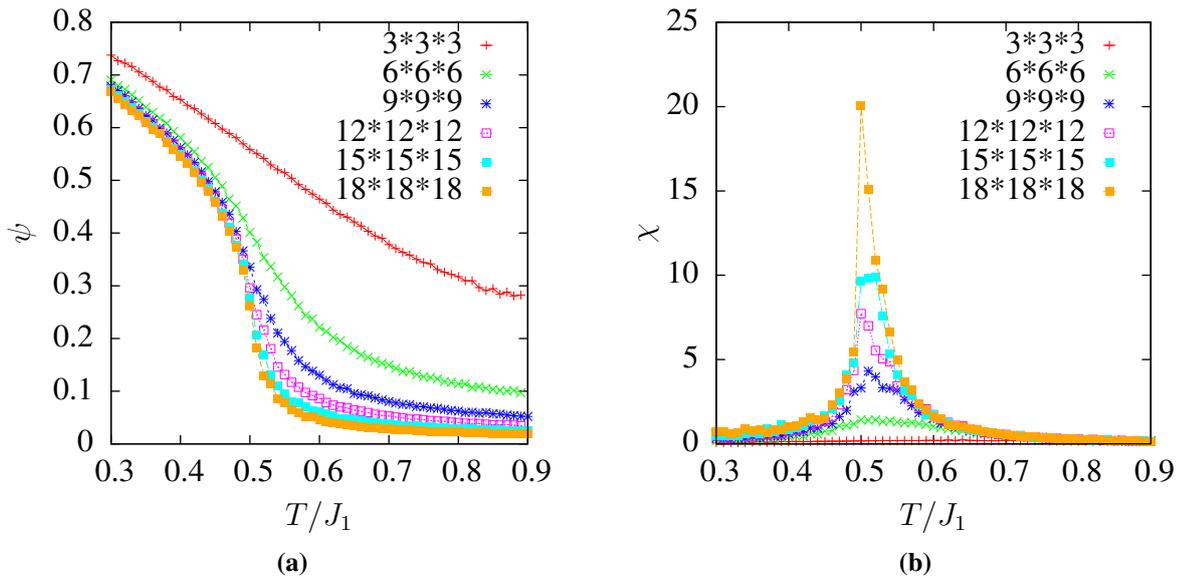


Abbildung 4.7: Beispiel für das Verhalten der Parameter beim Phasenübergang, von geordnet nach ungeordnet. Hier für $J_1 = -1.0$ und $J_2 = -1.5$.

(a) Variation des Ordnungsparameters in Temperatur und Systemgröße (b) Variation der Suszeptibilität in Temperatur und Systemgröße

Jedoch ergaben sich schon bei den Voruntersuchungen einige Herausforderungen. Denn im Bereich für Verhältnisse unterhalb von 0.8 war selbst mit aufwendigen Simulationen kein Übergang deutlich aus zu machen. Auf Grund des durchgängig sehr niedrigen Ordnungsparameters wurde dieser Bereich als ungeordnet bzw. teilweise ungeordnet definiert. Für den Bereich darüber waren die Phasengrenzen sehr eindeutig bestimmbar und gerade für zunehmendes Verhältnis von J_2 zu J_1 sehr deutlich. Betrachtet man das Verhalten des Ordnungsparameters für sehr tiefe Temperaturen, so zeigt sich der Grund für die Abhängigkeit der Streubilder vom Verhältnis J_2/J_1 (vgl. Abbildung 4.6). So ergibt sich in Abbildung 4.9 für Verhältnisse $J_2/J_1 < 1.5$ nur eine unvollständige Ordnung. Das heißt, dass bei solchen Verhältnissen die Spins noch nicht coplanar ausgereichtet sind. Diese Erkenntnisse ergeben dann das in Abbildung 4.10 dargestellte Phasendiagramm. Der Verlauf des Graphen lässt sich für sehr große Verhältnisse abschätzen, indem man $J_1 = 0$ annimmt. Somit geht das Verhältnis dann gegen unendlich. Dabei ist klar, dass sich die Spins innerhalb der Säulen zwar ordnen, aber die Ordnung zwischen den Säulen zusammenbricht. Somit divergiert auch die Ordnungstemperatur. Vergleicht man zuletzt den Bereich der temperaturunabhängigen Unordnung, dann zeigt sich eine Übereinstimmung zu dem vorhergegangenen Phasendiagramm. Denn auch dort zeigt sich im 3. Quadranten bei einer Temperatur von $T/J_1 = 0.01$ ein nur teilgeordneter Grundzustand und, dass das System für Verhältnisse kleiner als $J_2/J_1 \approx 0.85$ in die ungeordnete Phase übergeht. Dies bestätigt die Annahme, dass es sich hierbei um eine ungeordneten Grundzustand handelt.

Eine weitere Möglichkeit, die dieses Phasendiagramm bietet, ist die Berechnung von absoluten Werten für die Austauschwechselwirkungen. Denn eigentlich liefert die Monte Carlo Simulation sämtliche Ergebnisse in Relation zu J_1 , wodurch letztlich auch nur Verhältnisse von Relevanz sind. An dieser Stelle ist es aber möglich, die in der MCS bestimmten Ergebnisse in Relation zu einem im Experiment bestimmten Ergebnis zu setzen, der Neeltemperatur, der

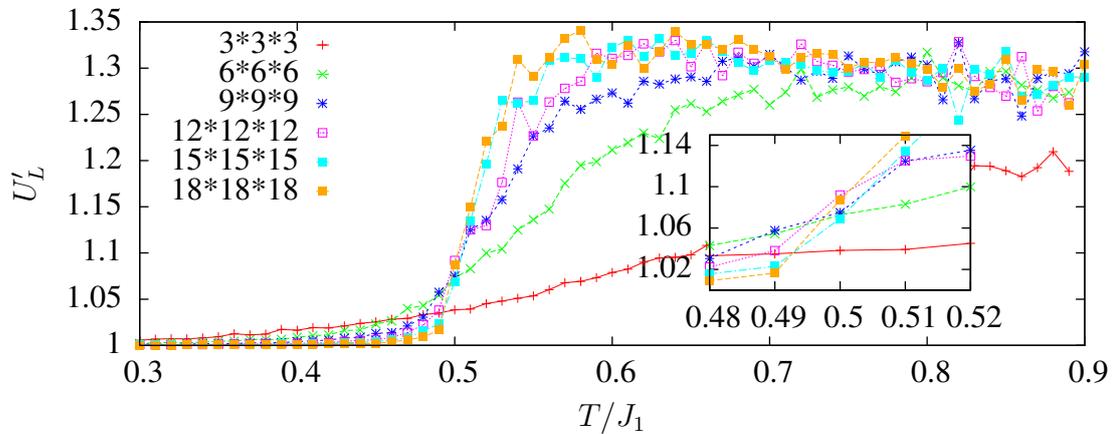


Abbildung 4.8: Beispiel zur Bestimmung der Phasenübergangstemperatur mittels der Kumulante. Vergrößerung zeigt den Schnittpunkt. Hier für $J_1 = -1.0$ und $J_2 = -1.5$.

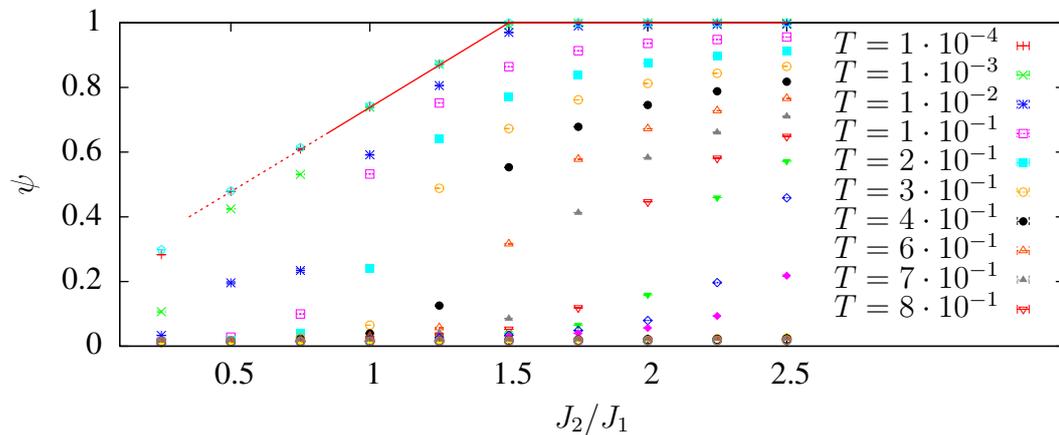


Abbildung 4.9: Maximal erreichter Ordnungsparameter für verschiedene Verhältnisse J_2/J_1 . Die rote Linie markiert die erreichte Obergrenze. Die errechneten Fehlerbalken sind durch die hohe Statistik unterschätzt. Punkte gleicher Art entsprechen Simulationen bei gleicher Temperatur. T in Einheiten von J_1 .

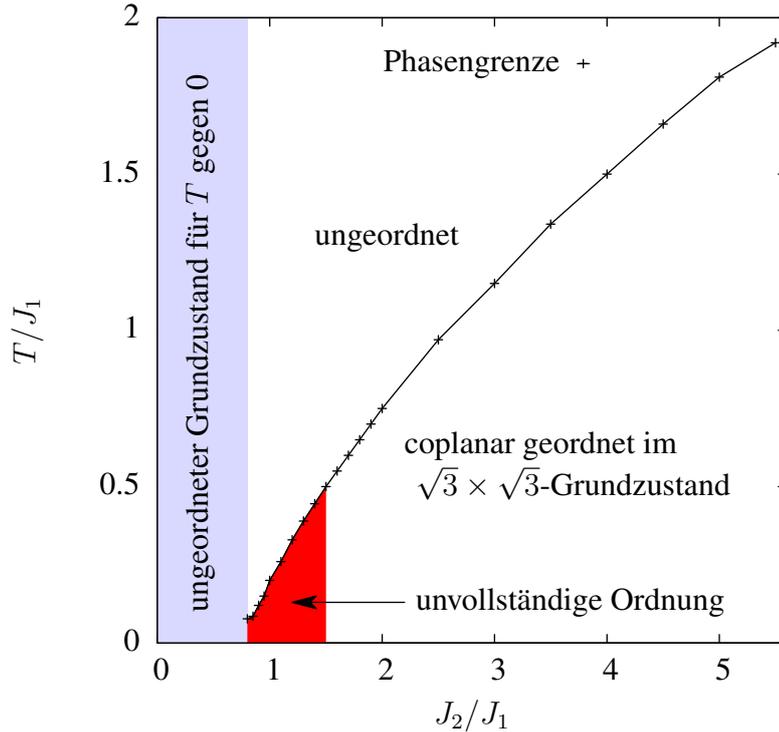


Abbildung 4.10: Phasendiagramm für T/J_1 gegen J_2/J_1 für $J_1, J_2 < 0$. Besonders markiert sind die Bereiche, in dem der Grundzustand ungeordnet ist und in dem das System nur unvollständig ordnet.

Phasengrenze zwischen antiferromagnetischer Ordnung und paramagnetischer Unordnung:

$$T_N = 160K \wedge 0.5 = \frac{T_N}{J_1}. \quad (4.3)$$

Da bisherige Messungen keine unvollständige Ordnung für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ gezeigt haben, wird das Verhältnis auf etwa $J_2/J_1 = 1.5$ geschätzt. Für das Verhältnis ergibt sich dann $J_1 \approx -28 \text{ meV}$ und $J_2 \approx -41 \text{ meV}$ für einen Einheitsspin von $S = 1$. Diese Werte geben trotz der nur ungefähren Bestimmung des Verhältnisses J_2 zu J_1 und der Übergangstemperatur in der Simulation die Größenordnung der Wechselwirkung an. Vergleicht man dies mit dem Ergebnis aus der Curie-Weiss-Temperatur (Gleichung 2.11), dabei ergab sich $J_{eff} \approx -35.4 \text{ meV}$, so passt diese mittlere Wechselwirkung sehr gut zu dem Ergebnis aus der Simulation $J_{\text{MCS, mittel}} \approx -35 \text{ meV}$, für das hier angenommene Verhältnis.

4.2 Zusammenfassung der Ergebnisse

Die Variabilität der magnetischen Struktur bei dieser Kristallklasse wird deutlich, wenn man das Phasendiagramm von J_2 aufgetragen gegen J_1 betrachtet, Abbildung 4.4. Abhängig vom Verhältnis J_2/J_1 beobachtet man eine verschiedene Struktur. Für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ liegt eine antiferromagnetisch geordnete Struktur vor, mit einem Ordnungsübergang bei $T_N = 160 \text{ K}$ und einer starken Frustration (vergleiche T_N mit der Curie Weiss Konstante siehe Gleichung 2.11). Als wichtige Erkenntnisse für die Bestimmung der Kopplungsparameter J_1 und J_2 , lässt sich folgendes feststellen: Das Verhältnis muss deutlich oberhalb von 0.85 liegen, da für kleinere

Verhältnisse der Grundzustand ungeordnet ist. Des Weiteren ist anzunehmen, dass ein Verhältnis von 1.5 plausibel ist, da für kleinere Verhältnisse zwar eine Ordnung aber keine vollständige Ordnung (siehe Abbildung 4.9) beobachtet werden konnte. Dies wird durch den Vergleich von simulierten Streubilder mit den gemessenen Intensitäten bestätigt (vgl. Abbildung 4.6). Aus den Spinbilder ist ersichtlich, dass die Spins sonst noch nicht ganz coplanar liegen. Durch die Verbindung zu den Messergebnissen aus [Ros11] konnte für J_1 und J_2 in Abhängigkeit von ihrem Verhältnis konkrete Austauschenergien angegeben werden. Eine genauere Bestimmung wird die Betrachtung der Spinwellen ermöglichen. Die hier gemachten Beobachtungen über die Ausrichtung der Spins werden bei der Berechnung der Spinwellen eine wichtige Rolle spielen.

Kapitel 5

Spinwellendynamik

In diesem Kapitel kann nun unter Berücksichtigung der Ergebnisse aus dem vorhergegangenen Kapitel die Untersuchung der Spindynamik selbst geschehen. Hierzu wurden bei den Neutronenstreuexperimenten die Spinwellenanregungen gemessen. Darauf folgt die analytische Untersuchung mit Hilfe der semi-klassischen Spinwellentheorie und zuletzt wird ein Einblick in die bisherigen Ergebnisse bei der Simulation dieser gegeben.

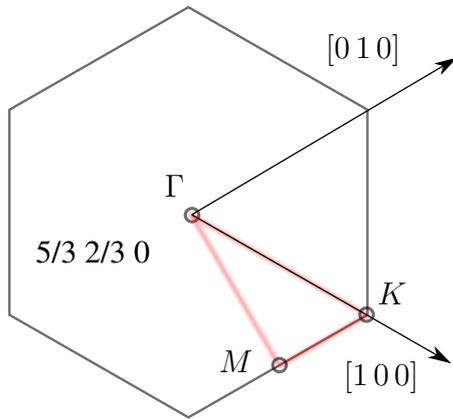
5.1 Neutronenstreuexperimente

Die Neutronenstreuexperimente lassen sich aufteilen in die Untersuchung der niedrigen Energiemoden bis zu 13 meV am Panda und dem gesamten Anregungsspektrum bis zu 150 meV am ARCS. Bei beiden Instrumenten werden die Messungen bei mehreren Temperaturen durchgeführt, vor allem relevant ist aber die Messung bei der Tieftemperatur (bei beiden 5 K). Am Dreiachsenspektrometer ist es möglich, mit hoher Auflösung spezifische Punkte im reziproken Raum zu messen. Da sich bei ARCS gleichzeitig ein großer Bereich des interessanten Q -Raums messen lässt, kann hier auch die Abhängigkeit der Spinwellenanregung von Q betrachtet werden, jedoch sind hier gerade die Niederenergiemoden schwer zu differenzieren. Somit ergänzen sich die beiden Instrumente perfekt, um ein Gesamtbild über die Spinwellendynamik in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ zu geben. Bei den Neutronenstreuexperimenten werden zwei verschiedene Kristalle gemessen (siehe Unterkapitel 3.1). Diese unterscheiden sich in ihrer Orientierung. Der erste Kristall wurde so gewachsen, dass die c -Richtung der Elementarzelle parallel zu der Wachstumsrichtung des Kristalls orientiert ist. Dadurch eignet sich dieser Kristall vor allem zur Untersuchung der $hk0$ -Ebene und wird demzufolge $hk0$ -Kristall genannt. Beim zweiten Kristall wurde sowohl die c -Richtung der Elementarzelle als auch der resultierende Vektor der Summe der beiden übrigen Basisvektoren senkrecht zur Wachstumsrichtung des Kristalls orientiert (vgl. E.1a), so dass nun die hhl -Ebene gut zu messen ist. Dementsprechend wird dieser Kristall hhl -Kristall genannt.

5.1.1 PANDA: Spinwellendispersion entlang der Symmetrierichtungen

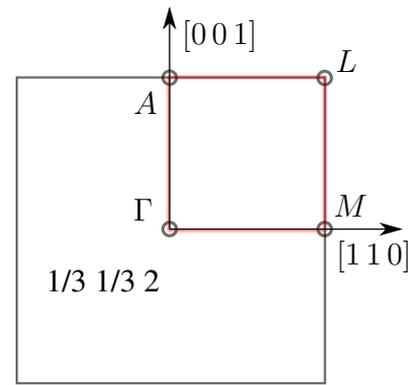
Bei vorhergegangenen Untersuchungen wurde die magnetische Einheitszelle bestimmt [Ros11], somit liegen die Richtungen, die für die Untersuchung von Spinwellenanregungen von vorrangigem Interesse sind, entlang den Symmetrierichtungen der dazugehörigen Brillouinzone. Bei

magnetische Brillouinzone
in der $hk0$ -Ebene



(a)

magnetische Brillouinzone
in der hhl -Ebene



(b)

Abbildung 5.1: Ausgewählte Peaks für die Spinwellenanregung. Messrichtungen sind rot markiert. Die hier definierten Richtungsvektoren entsprechen den Richtungen der Basisvektoren der strukturellen Zelle. Für den Zusammenhang zwischen struktureller und magnetischer Zelle sowie eines dreidimensionalen Bildes der Brillouinzone siehe Abbildung E.3.

(a) Messung um den Peak $5/3 \ 2/3 \ 0$. (b) Messung um den Peak $1/3 \ 1/3 \ 2$.

magnetischen Braggpeaks höchster Intensität werden die meisten Spinwellen angenommen, deshalb wurde beim $hk0$ -Kristall $5/3 \ 2/3 \ 0$ Peak¹ und beim hhl -Kristall der $1/3 \ 1/3 \ 2$ Peak ausgewählt (vgl. Abbildung 5.1a und 5.1b). Ausgehend von den Braggpeaks wurde dann entlang den Symmetrierichtungen gemessen (rote Markierung in den Abbildungen). Dies ergibt die Abbildungen 5.2 bis 5.5 gezeigten Maps².

Deutlich zu sehen ist, wie stark die Spinwellenanregungen gedämpft sind. D.h., dass die Lebensdauer von den hier gemessenen Spinwellen sehr kurz ist und sich nicht eine scharfe Dispersionsrelation bildet, sondern diese so stark verbreitert wird, dass sich mehrere Zweige überlagern. Dies macht es sehr schwer, einzelne Dispersionsrelationen zu bestimmen. Dass es zu dieser Dämpfung kommt, ist in einem geometrisch frustrierten System nicht allzu verwunderlich. Im Gegensatz zu einem nicht frustrierten System, bei dem eine Auslenkung eines Spins eine direkte Auswirkung auf die benachbarten hat, behindert hier die geometrische Frustration die Wechselwirkung der Spins und dämpft so die initiale Auslenkung schnell weg. Bei den Intensitätskarten in der $hk0$ -Ebene (siehe Abbildungen 5.2 und 5.3) lässt sich beobachten, dass die Anregungen sich bei kleinen Energien in Q -Richtung ausbreiten und die Intensität zu höheren Energien hin abnimmt. Bei einem Energieübertrag von 10 meV scheint die Intensität durchgängig abzusinken. In der hhl -Ebene, bei der Richtung vom Γ -Punkt nach A, zeigt sich jedoch ein sehr steiler Ast hin zu hohen Energien. Aus der somit höheren Gruppengeschwindigkeit folgt eine stärkere und weniger frustrierte Kopplung in c -Richtung (Im Modell ist dies J_1). Für die niedrigen Energien vom Γ -Punkt zum Kantenmittelpunkt A scheint es dadurch kaum möglich zu sein, Spinwellen anzuregen. Bei der Messung in der hhl -Ebene bei 5 K zeigt sich eine weitere Besonderheit der Messergebnisse: Es lässt sich eine Anregungslücke am Γ -Punkt beobachten. Diese ist noch bes-

¹Die Nomenklatur ist definiert durch die strukturelle Brillouinzone.

²Der in der Abbildung 5.5 nicht gemessene Bereich kam durch ein verfrühtes Abschalten des Reaktors zustande.

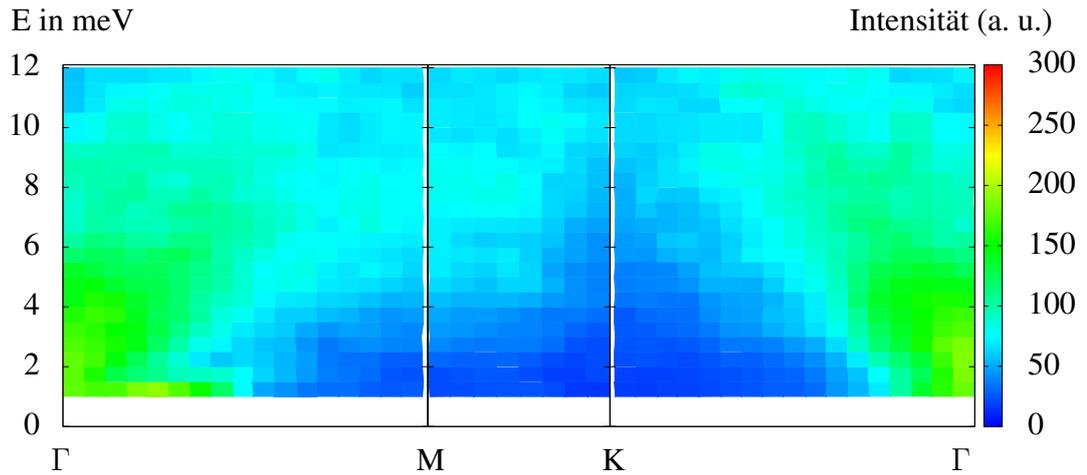


Abbildung 5.2: Gemessene Magnonenanregungen für den $hk0$ -orientierten Kristall bei 5 K

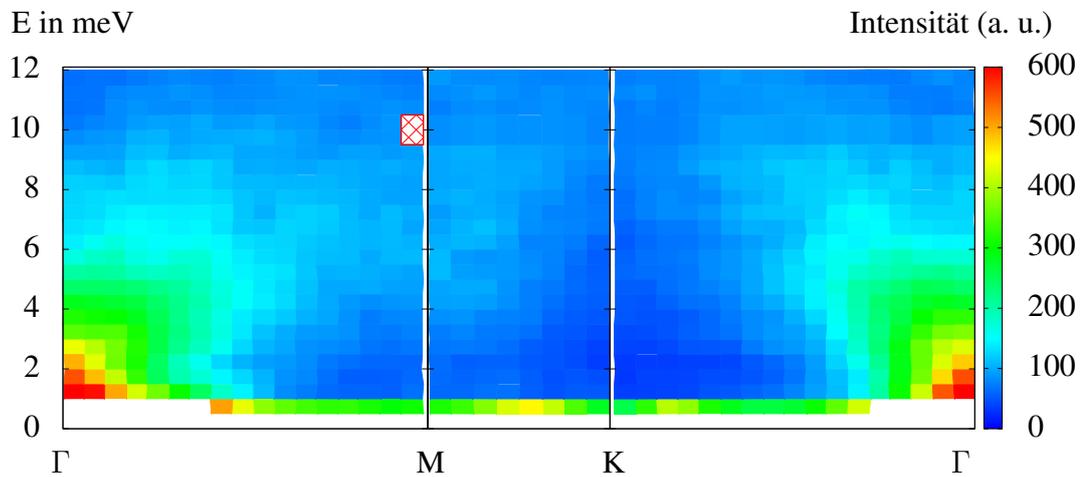


Abbildung 5.3: Gemessene Magnonenanregungen für den $hk0$ -orientierten Kristall bei 60 K. Bei der rot schraffierten Fläche wurde ein Punkt nicht gemessen.

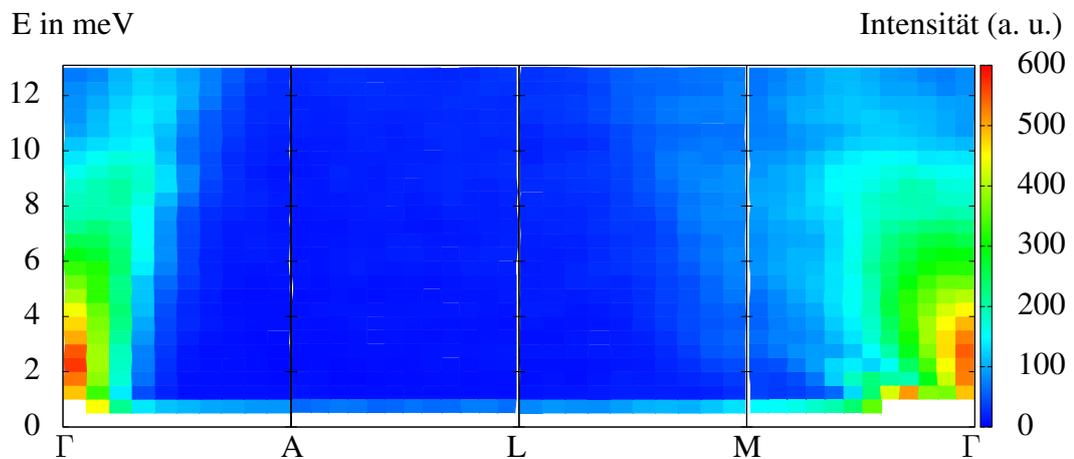


Abbildung 5.4: Gemessene Magnonenanregungen für den hhl -orientierten Kristall bei 5 K

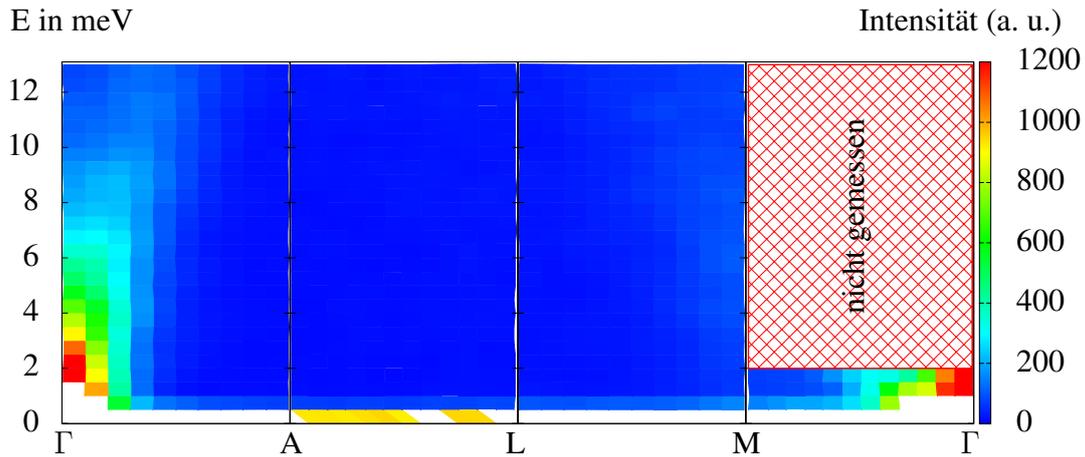


Abbildung 5.5: Gemessene Magnonenanregungen für den hhl-orientierten Kristall bei 60 K

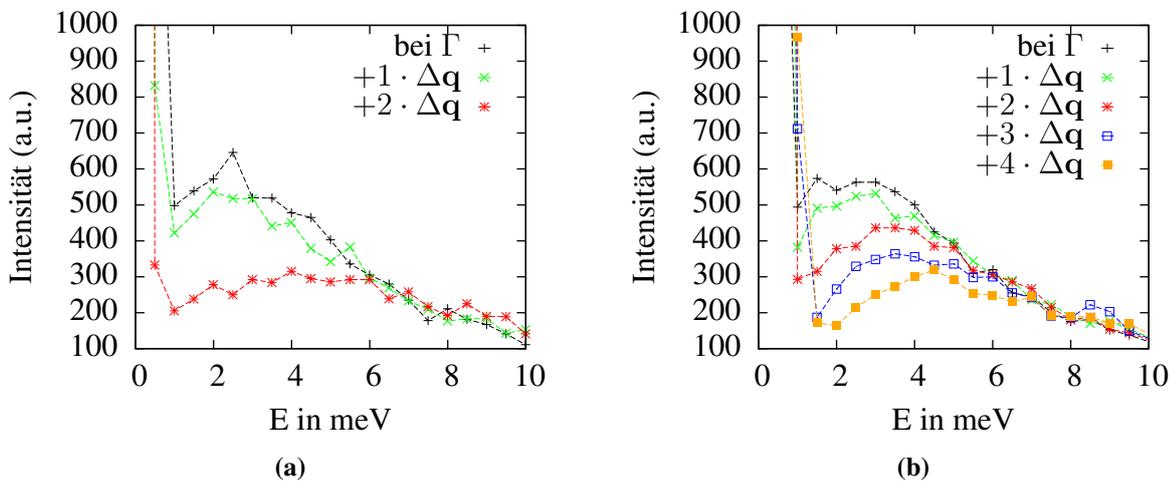


Abbildung 5.6: Anisotropie der Spinwellenanregung am Γ -Punkt

(a) Richtung: Γ nach A, Schrittweite $\Delta Q = (0\ 0\ 0.05)$ (b) Richtung: Γ nach M, Schrittweite $\Delta Q = (0.014\ 0.014\ 0)$

ser in der Abbildung 5.6 zu erkennen. Eine Erklärung dafür, wieso diese bei der Messung in der $hk0$ -Ebene an gleicher Stelle nicht so deutlich zu erkennen sind oder wieso die Intensitätskarte für die Richtung Γ nach M bei beiden nicht identisch ist, kann über eine unterschiedliche Stellung des Auflösungsellipsoid oder durch eine ungleiche unvollständige Ordnung erklärt werden (siehe Anhang G). Es zeigt sich noch ein weiterer Effekt des Auflösungsellipsoids, denn nahe der elastischen Linie findet sich linear ausbreitend eine starke Intensität. Dies sind jedoch keine Spinwellenanregungen, sondern rührt von der stark gestreckten Form des Auflösungsellipsoid her. Dadurch werden dort auch vom Braggpeak gestreute Neutronen detektiert. Vergleicht man die Messungen entsprechend der Temperatur, so zeigt sich deutlich der entsprechend der Bose-statistik (siehe Gleichung 2.73) zu erwartende Intensitätsanstieg abhängig von der Energie. Bei höheren Temperaturen existieren von vorneherein wesentlich mehr Spinwellen und somit ist die Wahrscheinlichkeit eine anzuregen wesentlich höher als bei niedriger Temperatur, bei der die Spinwellen praktisch eingefroren sind.

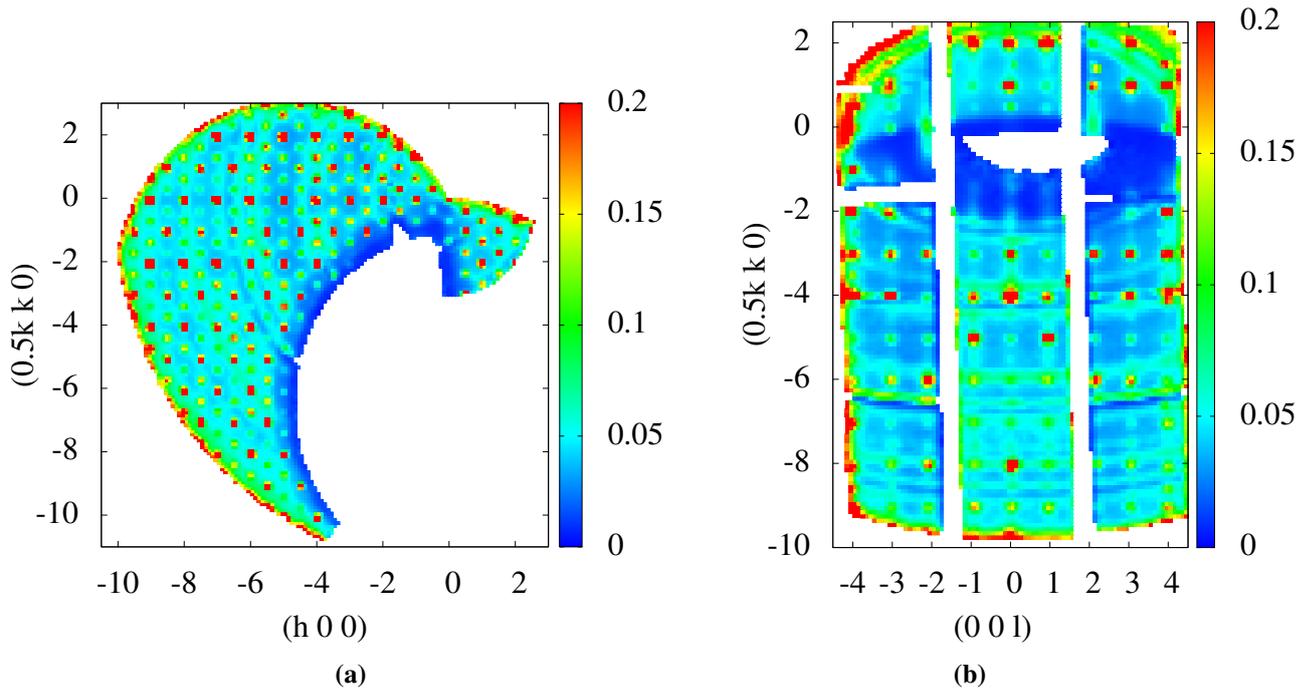


Abbildung 5.7: Übersicht über die gemessenen Daten am $hk0$ -Kristall bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie. Dazu folgende Schnitte durch die Daten der Messung:

(a) Gemessener Bereich der $hk0$ -Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen grün dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Gemessener Bereich senkrecht zur $hk0$ -Ebene. Integration des Energiebereiches wieder nahe der elastischen Ebene.

5.1.2 ARCS: Der Raum der Spinwellenanregungen

Nachdem mit den Pandamesstungen die Spinwellenanregungen bei niedrigen Energien untersucht worden sind, bieten die Messungen an ARCS nun die Möglichkeit die Spinwellenanregungen bei hohen Energien zu betrachten. Bei einer Messung wird immer ein großer Teil des Q -Raums gemessen, deshalb sollen die Messergebnisse erst einmal allgemein betrachtet werden. Die Abbildungen 5.7 und 5.8 geben Aufschluss darüber was für die einzelnen Kristalle gemessen worden ist. Hierbei ist die Nomenklatur zur Benennung der Punkte über die strukturelle Brillouinzone definiert. Das bedeutet, dass sich die strukturellen Braggpeaks bei ganzzahligen Werten in h und k und die ausschließlich magnetischen sich bei den Drittelwerten befinden (z.B. am Punkt $1/3\ 1/3\ 0$). Diese Definition entspricht der Nomenklatur bei Panda.

Deutlich lässt sich die hexagonale Struktur in der $hk0$ -Messung erkennen (vgl. Abbildung 5.7a). Die in der Intensität stärkeren Peaks sind die Braggpeaks der strukturellen Zelle und werden umgeben von den leicht schwächeren ausschließlich magnetischen Braggpeaks. In der hkl -Messung ist die Ausprägung etwas schwächer, da dieser Kristall nachträglich nicht so gut ausgerichtet werden konnte wie der $hk0$ -Kristall (ersichtlich an der kleinen Verschiebungen in Abbildung 5.8b). In c -Richtung des Kristalls stimmt die strukturelle mit der magnetischen Elementarzelle überein. Somit liegen sowohl die strukturellen als auch die magnetischen Peaks in den Ebenen, bei denen $l \in \mathbb{Z}$ gilt. In $[1\ 1\ 0]$ -Richtung der Abbildung 5.7a sieht man wieder deutliche Intensitätsunterschiede, je nachdem ob der Peak strukturellem oder ausschließlich

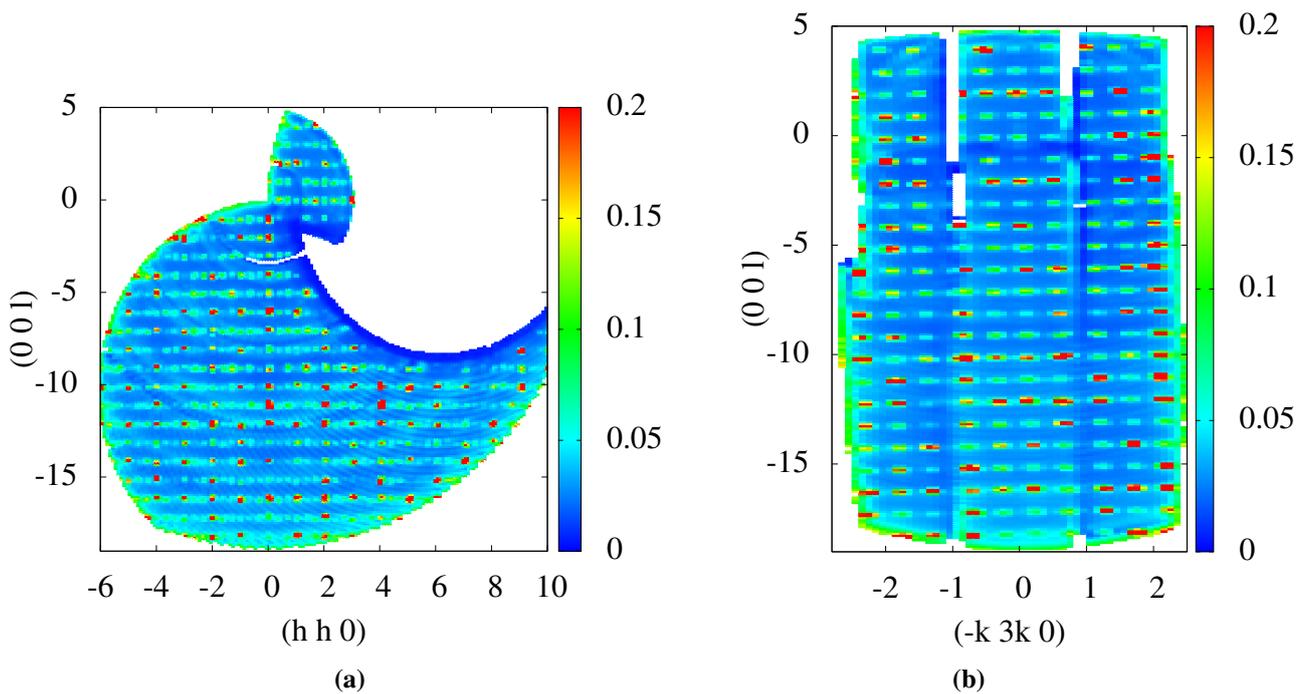


Abbildung 5.8: Übersicht über die gemessenen Daten am hhl-Kristall bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie. Durch die nicht perfekte Ausrichtung des Kristalls passen die Indizes nicht genau zur Orientierung.

Dazu folgende Schnitte durch die Daten der Messung:

- (a) Gemessener Bereich der hhl-Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen grün dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Gemessener Bereich senkrecht zur hhl-Ebene. Integration des Energiebereiches wieder nahe der elastischen Ebene.

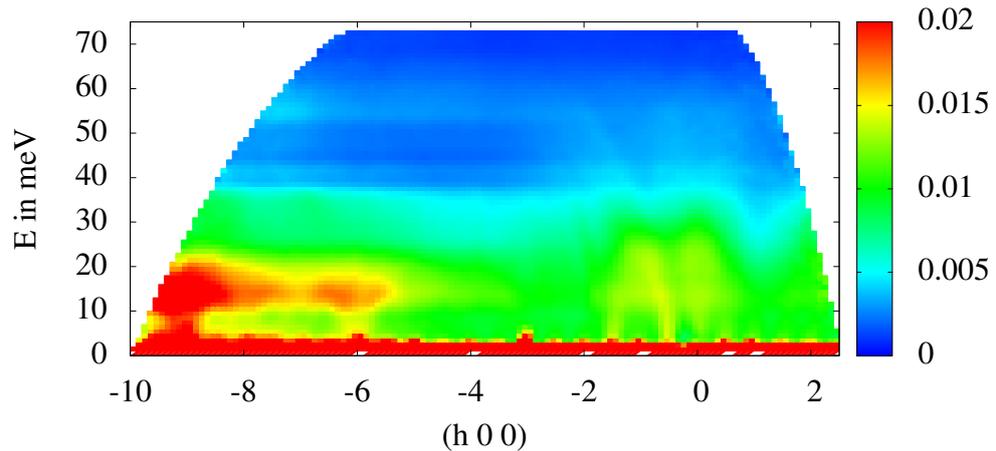


Abbildung 5.9: Anregungsspektrum in $[100]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Betrachtung möglicher Anregungszweige und Intensität aus Phononenstreuung bei $h < -6$. Aus der Messung des $hk0$ -Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.

magnetischem Ursprung ist. So folgen in dieser Richtung auf jeden strukturellen Peak immer zwei magnetische. Des Weiteren ist in Abbildung 5.8a zu erkennen, dass die Auflösung bei größeren Werten auf der x-Achse und kleineren auf der y-Achse abnimmt. Das rührt daher, dass die Kristalle zuerst mit Winkelschritten von 2° gescannt werden und die Zwischenschritte nachträglich aufgefüllt werden. Dieser zweite Schritt wurde hier nicht vollständig durchgeführt, um noch ausreichend Zeit zur Messung des $hk0$ -Kristalls zu haben. Die kreisförmigen Schlieren bei beiden Abbildungen sind Untergrundeffekte, ebenso der Intensitätsanstieg zu den Grenzen des gemessenen Bereichs. Es ist wichtig, sich bei den folgenden Untersuchungen bewusst zu sein, dass nie nur eine Ebene gemessen wird sondern immer der gesamte Raum (vgl. Abbildungen 5.7b und 5.8b) und man notwendigerweise immer über einen Teil davon integrieren muss, um die Intensität in Abhängigkeit der 4D Daten (Q_x , Q_y , Q_z und Energie) auf betrachtbare 1D, 2D oder 3D Datenpunkte herunterzurechnen. Dabei dürfen die Integrationsgrenzen weder zu groß, um keine ungewünschten Intensitäten aufzusummieren, noch zu klein sein, damit die resultierenden Punkte noch ausreichend Statistik besitzen.

Zuerst wird ganz allgemein die Intensität der Anregungen abhängig von einer Koordinate betrachtet, wobei die übrigen über den vollständigen, gemessenen Raum integriert werden. So erhalten wir ausreichend Statistik und Auflösung, um das Anregungsspektrum bewerten zu können. Bei dem $hk0$ -Kristall wird in $[120]$ -Richtung und in $[001]$ -Richtung aufintegriert. Dies ergibt dann die Abbildung 5.9, in der zwar eine einzelne Dispersion nahe des Ursprungs zu erkennen ist, aber sonst ein recht diffuses Spektrum zeigt. Zu großen Q hin wird ein starker Intensitätsanstieg bei ca. 15 meV deutlich. In der Energie zeichnen sich verschiedenen Intensitätsstufen ab, an deren Grenzen die Intensität stark abfällt. Da diese breiten Stufen eine deutliche Q -Abhängigkeit aufweisen, ist es zu vermuten, dass es sich hierbei um Phononanregungen handelt. Um dies zu verifizieren, wird die Intensität durch Q^2 geteilt³. Wenn diese Bänder dann eine konstante Intensität aufweisen, kann davon ausgegangen werden, dass es sich hierbei um einen phononischen Beitrag handelt, da die Spinwellen keine solche Abhängigkeit kennen. Diese Skalierung muss jedoch vor der Integration in den Richtungen erfolgen, da sonst Punkte mit unterschiedlichem $|Q|$ gleich stark skaliert werden. Wird dies berücksichtigt und die Integra-

³Der dynamische Strukturfaktor der Phononen nimmt mit $|Q|$ zu. Somit ist die Intensität proportional zu Q^2 [Squ78].

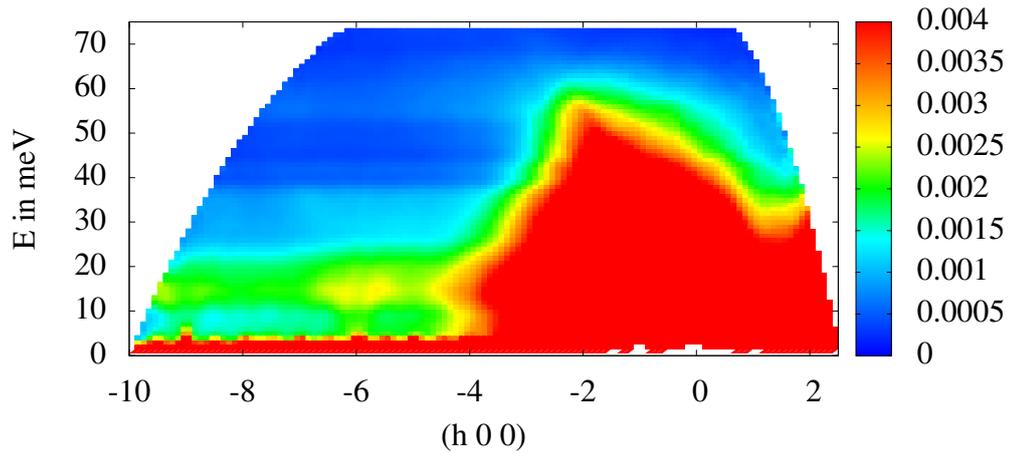


Abbildung 5.10: Skalierung der Intensität mit $1/Q^2$ zur Überprüfung der Phononenanregung. Vollständige Integration in den zur $[1 0 0]$ -Richtung senkrechten Richtungen nach Skalierung. Aus der Messung des $hk0$ -Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.

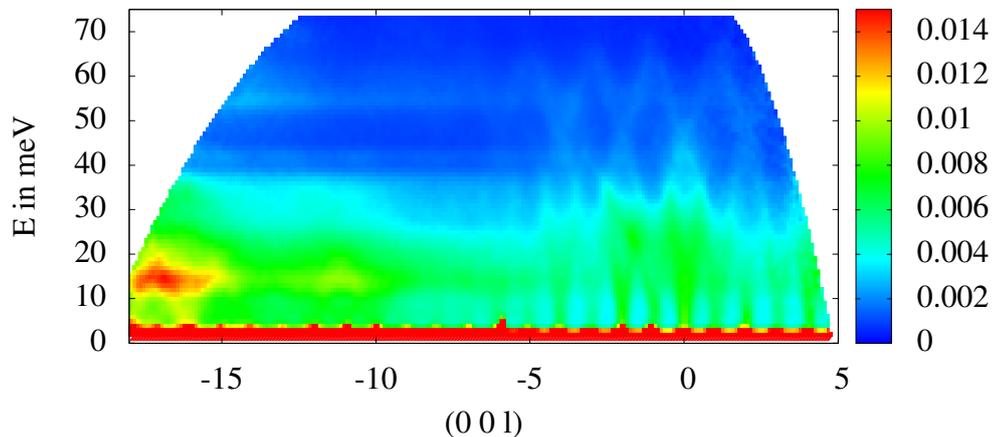


Abbildung 5.11: Anregungsspektrum in $[0 0 l]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Beobachtung steiler Spindispersionsanregungen um $l = 0$ und Phononenanregung für $l < -10$. Aus der Messung des hhl -Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.

tionen wie zuvor durchgeführt ergibt sich die Abbildung 5.10. Im Prinzip zeigt sich neben der magnetischen Streuung (entsprechend dem Intensitätscode rot) bei $h < -6$, dass die Intensität im Vergleich zur Abbildung 5.9 konstant ist. Dass nun ein leichtes Absinken der Intensität zu beobachten ist, weist darauf hin, dass hier möglicherweise noch magnetische Effekte mit hineinspielen.

Beim hhl -Kristall wird in $[1 1 0]$ - und $[\bar{1} 3 0]$ -Richtung integriert, so dass die Betrachtung in Abhängigkeit der $[0 0 1]$ -Richtung erfolgt (siehe Abbildung 5.11). Diese ist im Besonderen relevant, da hier bei PANDA die steile Dispersion (vom Γ -Punkt nach A vgl. Abbildung 5.4) gemessen wurde. Der Unterschied zu den Anregungen des $hk0$ -Kristalls ist signifikant, denn deutlich werden die Erwartungen von PANDA bestätigt und es zeigen sich bei kleinen Q sehr steile, durchgängige Anregungsmuster nachweisbar bis hin zu 67 meV. Auf Grund der Integrationsrichtung breiten diese sich gerade in c -Richtung aus. Bei ungefähr 20 meV schneiden sich die Dispersionzweige ausgehend von benachbarten Braggpeaks und steigen linear weiter an,

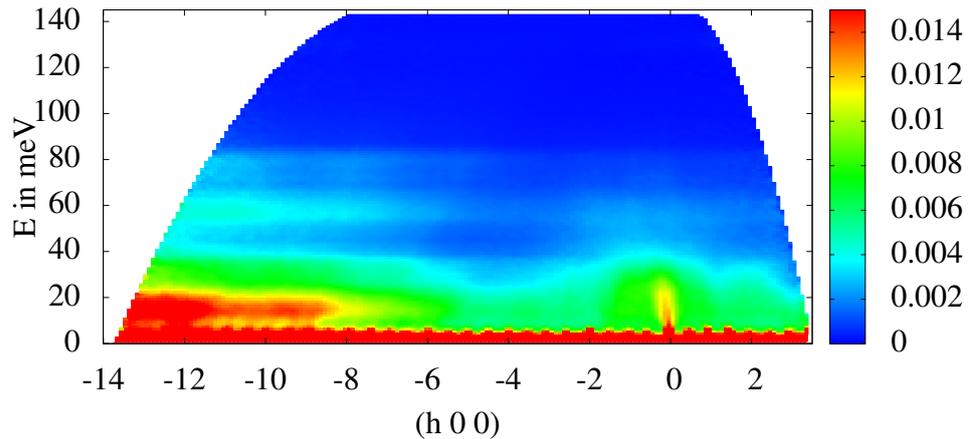


Abbildung 5.12: Anregungsspektrum in $[1\ 0\ 0]$ -Richtung bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Zur Betrachtung der Anregungen bei Energien bis 140 meV. Aus der Messung des $hk0$ -Kristalls bei 5 K und mit einer Eingangsenergie von 150 meV.

so dass es bei ca. 47 meV zu einem weiteren Schnittpunkt der Dispersionsrelationen kommt. Durch die klaren Zweige und eindeutigen Schnittpunkte, eignet sich diese Darstellung sehr gut, um später die theoretischen Ergebnisse anzupassen. Die übrige Struktur ähnelt ansonsten der des $hk0$ -Kristalls, wenn auch die Intensität etwas schwächer ist. Um selbst höchste Anregungen beobachten zu können, wurde eine weitere Messung des $hk0$ -Kristalls bei 150 meV Eingangsenergie durchgeführt. Hier werden die gleichen Integrationsrichtungen wie beim $hk0$ -Kristall zuvor angewandt. Damit zusätzlich auch die Hochenergiemuster aus der hhl -Kristallbetrachtung weiter verfolgt werden können, wird eine Integration durchgeführt, die der beim am hhl -Kristall angewandten entspricht. Die Abbildung 5.12 zeigt wieder sehr deutlich die verschiedenen Intensitätsstufen und auch den Abfall der magnetischen Streuintensität ausgehend vom Ursprung (in Abbildung 5.12 von Farbwert grün nach hellblau). Klar zu erkennen ist auch, dass bei Energien oberhalb von 84 meV keine nennenswerten Anregungen mehr existieren. Diese Messung mit höherer Eingangsenergie gibt zwar Einblick in die höheren Energiebereiche, jedoch unter der Prämisse von schlechterer Auflösung in Q .

Betrachtet man die Anregungsspektren der Abbildungen 5.9, 5.11 und 5.12 im Vergleich, dann zeigt sich bei niedrigen Energien ein schmales Band sehr hoher Intensität mit leichten darüber hinausgehenden Spindispersionen aus der $hk0$ -Ebene (bis ca. 15 meV). Bei den niedrigen Energien ist zu beachten, dass die Energieauflösung bei der elastischen Linie 3% der Eingangsenergie ist, also 2.4 meV (bei der 80 meV Messung) bis 4.5 meV (bei der 150 meV Messung). Deshalb strahlt die sehr hohe Intensität der elastischen Linie noch ein wenig zu höheren Energien. Trotzdem ist in dem niederenergetischen Bereich eine hohe Dichte von Spindispersionen zu erkennen. Eine Betrachtung der Spindispersionen in der hhl -Ebene mit dieser Messung bringt auf Grund der Qualität von Statistik zu Untergrund keine neuen Erkenntnisse.

Als nächstes sollen die einzelnen Messungen genauer untersucht werden. Bei den Anregungsspektren des $hk0$ -Kristalls (vgl. Abbildungen 5.9 und 5.12) waren keine signifikanten Dispersionen bei höheren Energien zu erkennen. Dies könnte jedoch auch daran liegen, dass diese durch die Integration sich nicht verstärken, wie in der hhl -Ebene, sondern durch die kompliziertere hexagonale Struktur in der $hk0$ -Ebene miteinander verwischt werden. Deshalb sollen nun einzelne Schnitte durch die Ebene betrachtet werden. Entsprechend der Ausrichtung in Abbildung 5.7a werden schmale Schnitte in $[1\ 0\ 0]$ - und $[1\ 1\ 0]$ -Richtung ausgewählt. Nach den Messungen

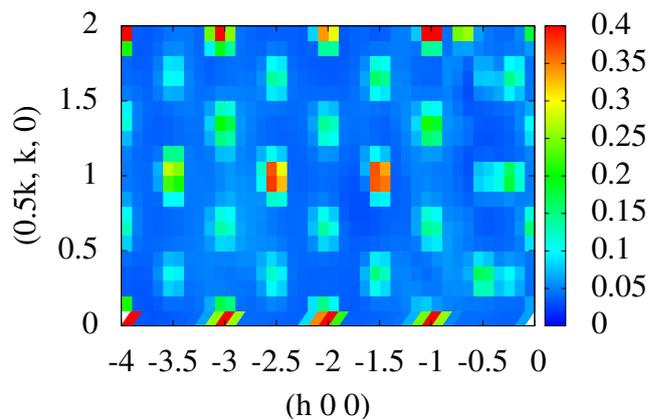


Abbildung 5.13: Ausschnitt der viermal gefalteten hk_0 -Ebene für Bereiche nahe dem Ursprung zur Bestimmung der zunehmenden Unschärfe der Braggpeaks. Aus der Messung des hk_0 -Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.

an Panda sind in dieser Richtung (vom Γ -Punkt zum Eckpunkt K) die in der Energie höheren Anregungen der hk_0 -Ebene zu erwarten sind. Es zeigt sich jedoch, dass auch hier keine klaren Anregungen bei hohen Energien zu erkennen sind und für die Untersuchung der Anregungen kleiner Energie die Auflösung nicht ausreicht. Zumal selbst ein sehr dünner Schnitt zuviel der Intensitäten der dazu senkrechten Richtung mitnimmt und so die Dispersionen verwischt. Auch ein weiterer Schnitt ausgehend vom Punkt $(-1 \ 1 \ 0)$ entlang der $[1 \ 1 \ 0]$ -Richtung, entspricht der Richtung vom Γ -Punkt zur Brillouinzonekantenmitte L, zeigt keine klaren Spinwellenanregungen.

Da es sehr schwierig ist mit den sich negativ beeinflussenden Parametern, gewünschte Intensität und mögliche Auflösung, geeignete Untersuchungen durchzuführen, ist überlegt worden, wie dies unter den gegebenen Möglichkeiten zu verbessern sei. Da die gesamte gemessene Intensität im Q -Raum sehr hoch ist, im Gegensatz zu den Intensitäten einzelner Messpunkte, wäre es ideal die Intensitäten innerhalb der Brillouinzone zu addieren. So wäre es möglich, in der reduzierten Brillouinzone Schnitte hoher Intensität entsprechend den an PANDA gemessenen Richtungen zu vollziehen. Das vorliegende Programm „horace“, besitzt zwar eine Option Brillouinzone symmetrieäquivalent zu kombinieren. Diese können jedoch nicht beliebig gewählt werden und das Programm selbst findet solche nicht. Eine weitere Möglichkeit, ein solches Kombinieren zu bewerkstelligen, wäre die Messdaten an geeigneten Ebenen zu spiegeln und so die Messdaten auf eine Brillouinzone zurückzufalten. Dieses wurde durchgeführt, jedoch zeigt sich schon nach der vierten Spiegelung, dass die Braggpeaks an Schärfe verlieren und die ursprünglichen Grenzbereiche starke Artefakte erzeugen (vgl. Abbildung 5.13). Dies bedeutet, dass auch der hk_0 -Kristall nicht perfekt orientiert werden konnte und die kleine Abweichung über mehrere Brillouinzone hinweg einen entscheidenden Einfluss hat. Leider war es bis zuletzt nicht möglich Zugriff auf die Ausrichtung des Kristalls zu erhalten. Zwar liegen die Daten lokal vor, aber das Erstellen der $S(\mathbf{Q}, \omega)$ -Datei sowie die ganze Analyse der Daten kann mit der Speicherkapazität eines normalen Desktop-Pcs nicht ausgeführt werden. Deshalb wurden die Daten per Remote-Zugriff auf einem Server in Oak Ridge analysiert. Auf diesem war die „horace“-Installation jedoch nicht voll funktionstüchtig und so stürzte die Routine zur Erstel-

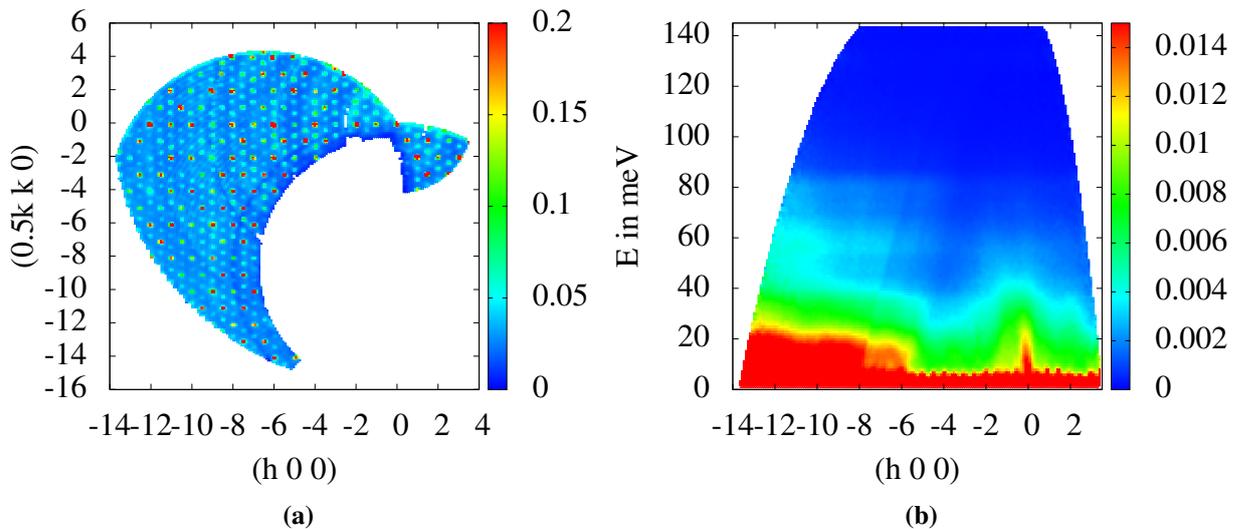


Abbildung 5.14: Betrachtung der Messung des $hk0$ -Kristalls bei 170 K und 150 meV Eingangsenegie. (a) Gemessener Bereich der $hk0$ -Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen hellblau dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Anregungsspektrum in $[1 \ 0 \ 0]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den übrigen Richtungen zur Überprüfung der Existenz von magnetischen und phononischen Anregungen.

lung der $S(\mathbf{Q}, \omega)$ -Datei bei jedem Versuch ab.

Bei der Betrachtung des Anregungsspektrums beim hkl -Kristall (siehe Abbildung 5.11) fallen sehr stark die steilen Dispersionen bei kleinen Q auf. Zusätzlich ist aber auch zu sehen, dass diese nicht gleich stark ausgeprägt sind und neben der allgemeinen Abschwächung hin zu großen Q oszilliert die Intensität leicht. So wechseln sich Dispersionen hoher Intensitäten mit welchen niedrigerer Intensität ab. Dies soll nun genauer untersucht werden indem nur über einen kleinen Bereich in der $[1 \ 1 \ 0]$ -Richtung auf integriert wird. Diese Richtung entspricht in der Brillouinzone die Richtung von Γ nach A. Durch die Verkleinerung des Integrationsbereichs können Einflüsse durch weitreichende Integrationen ausgeschlossen werden. Der Schnitt wird angesetzt am Punkt $(-1/3 \ -1/3 \ 0)$, damit nur die Spinwellenanregungen um rein magnetische Peaks eingefangen wird. Als nächstes kann die hkl -Ebene senkrecht dazu geschnitten werden, also in $[1 \ 1 \ 0]$ -Richtung. Damit dabei zum einen nicht der Phononenbeitrag den der Magnonen dominiert aber gleichzeitig ein ausreichend großer Bereich in dieser Richtung abgedeckt wird, wird vom Punkt $(-3 \ -3 \ -6)$ aus geschnitten. Beide Schnitte zeigen aber, dass die Dispersionszweige im Anregungsspektrum nicht auf Integrationseffekte zurückzuführen ist, sondern es sich um echte Messdaten handelt, die zur Anpassung der theoretisch ermittelten Spinwellendispersionen geeignet sind. Die Schnitte selbst liefern aber nicht ausreichend Statistik, damit eine Anpassung erfolgsversprechend wäre.

Zuletzt soll noch kurz die Messung bei 170 K also leicht oberhalb der Ordnungstemperatur von 160 K betrachtet werden (siehe Abbildung 5.14). In der $hk0$ -Ebene haben die magnetischen Braggpeaks deutlich an Intensität verloren, sind aber immer noch zu erkennen. Im Anregungsspektrum hat der diffuse phononische Beitrag stark an Intensität gewonnen, gerade auch bei kleineren Energien, und gleichzeitig schmierern die Anregungen von Spinwellen aus. Bei der

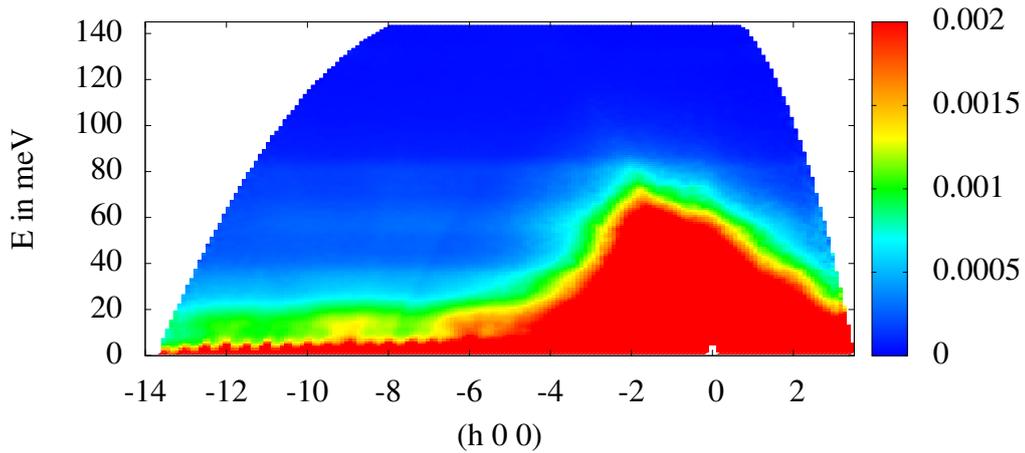


Abbildung 5.15: Skalierung der Intensität mit $1/Q^2$ zur Überprüfung der Phononenanregung. Vollständige Integration in den zur $[1\ 0\ 0]$ -Richtung senkrechten Richtungen nach Skalierung. Aus der Messung des $hk0$ -Kristalls bei 170 K und 150 meV Eingangsenergie.

Betrachtung des mit $1/Q^2$ skalierten Anregungsspektrum (Abbildung 5.15), dass die Intensitäten bei $h < -6$ nicht mehr so stark abnehmen (vgl. Abbildung 5.10). Das verstärkt die Vermutung, dass in diesem Bereich noch Ausläufer der magnetischen Streuung zu finden sind, deren Einfluss bei 170 K nun abgenommen hat.

Nachdem nun die Messungen dargelegt worden sind, ist es nun zur Bestimmung der Austauschwechselwirkungsparameter notwendig diese mit dem theoretischen Modell zu vergleichen. Dazu wurde entsprechend dem Abschnitt 2.2 die folgende Spinwellenrechnung entwickelt.

5.2 Spinwellenrechnung

Die folgende Herleitung ist zur Verbesserung der Lesbarkeit verkürzt worden und soll vor allem den begangenen Weg zur Bestimmung der Spinwellendispersion aufzeigen. Die Zwischenschritte der Herleitung sind separat im Anhang H ausgeführt.

Die Rechnung baut auf den Prinzipien auf, die in 2.2 eingeführt worden sind. Des Weiteren wird hier das Heisenberg nächst-Nachbar Modell verwendet, das in 2.1.3 definiert wurde.

Für den Hamiltonoperator ergibt sich dann:

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} S_i S_j = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} [S_i^{x_0} S_j^{x_0} + S_i^{y_0} S_j^{y_0} + S_i^{z_0} S_j^{z_0}].$$

Da es sich bei dem Grundzustand (siehe Abbildung 5.16) um einen coplanaren Zustand handelt, können die Vektoren auf die x-z-Ebene beschränkt werden. Als Basisvektoren erhält man dann: $a_1 = (\sqrt{3}, 1)$, $a_2 = (-\sqrt{3}, 1)$. Unter Verwendung einer Rotation um die y-Achse im Winkel von θ_i , lassen sich die Spins so transformieren $(x_0, y_0, z_0) \rightarrow (x, y, z)$, dass sie im Grundzustand alle in z-Richtung zeigen.

$$\begin{aligned} S_i^{x_0} &= -S_i^z \sin \theta_i + S_i^x \cos \theta_i \\ S_i^{y_0} &= S_i^y \\ S_i^{z_0} &= S_i^z \cos \theta_i + S_i^x \sin \theta_i. \end{aligned}$$

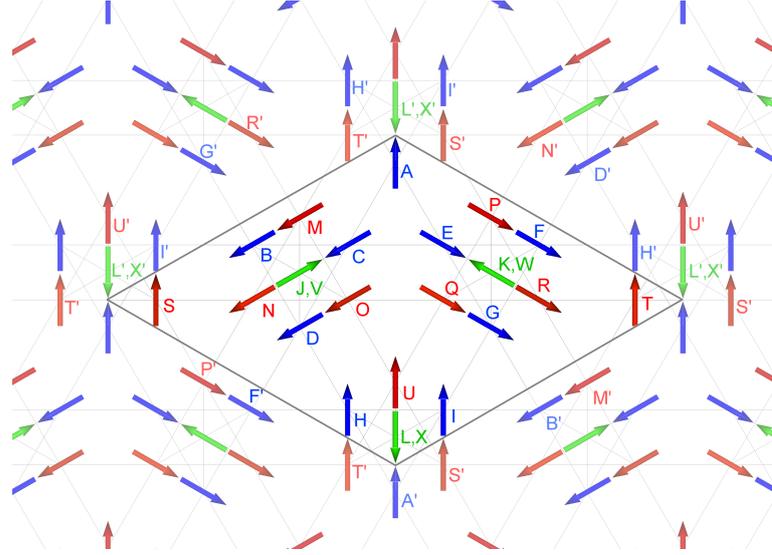


Abbildung 5.16: Elementarzelle des $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand mit nummerierten Spins. Die roten und blauen Spins liegen auf separaten Kagomeebenen und die grünen auf den trigonalen. Dabei ist die Stapelung innerhalb der Elementarzelle in c -Richtung: blau, grün, rot, grün.

Einsetzen in den Hamiltonoperator ergibt:

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} [S_i^y S_j^y + \cos(\theta_i - \theta_j)(S_i^x S_j^x + S_i^z S_j^z) + \sin(\theta_i - \theta_j)(S_i^x S_j^z - S_i^z S_j^x)]. \quad (5.1)$$

Entsprechend dem Abschnitt 2.2.2 werden nun die Auf- und Absteigeoperatoren (2.31, 2.32) eingeführt:

$$S_i^x = \frac{1}{2}(S_i^+ + S_i^-), S_i^y = \frac{1}{2i}(S_i^+ - S_i^-). \quad (5.2)$$

Einsetzen dieser in den Hamiltonian führt zu (Nebenrechnung H.1):

$$\begin{aligned} H = & \frac{1}{4} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} [(\cos(\theta_i - \theta_j) - 1)(S_i^+ S_j^+ + S_i^- S_j^-) \\ & + (\cos(\theta_i - \theta_j) + 1)(S_i^- S_j^+ + S_i^+ S_j^-) \\ & + 4 \cos(\theta_i - \theta_j) S_i^z S_j^z \\ & + 2 \sin(\theta_i - \theta_j)(S_i^+ S_j^z + S_i^- S_j^z - S_i^z S_j^+ - S_i^z S_j^-)]. \end{aligned} \quad (5.3)$$

Nun wird die Holstein-Primakoff-Transformation verwendet und dazu die spinlosen Bosonoperatoren a und a^\dagger (entsprechend 2.48, 2.49) eingeführt:

$$\begin{aligned} S_i^z &= S - a_i^\dagger a_i = S - \hat{n}_i \\ S_i^+ &= a_i^\dagger \sqrt{2S - a_i^\dagger a_i} \\ S_i^- &= \sqrt{2S - a_i^\dagger a_i} a_i. \end{aligned}$$

Der Gesamtspin S müsste an dieser Stelle abhängig von seinem Platz i definiert werden, da $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ sowohl Fe- als auch Co-Atome aufweist. Hinzu kommt, dass diese statistisch auf den Plätzen des Kagome- und Dreiecksgitter verteilt sind. Die Struktur dieser Herleitung

erlaubt es jedoch nicht, diese entsprechend der Besetzungswahrscheinlichkeiten zufällig zu verteilen. Eine andere Möglichkeit wäre, die Elementarzelle zu erweitern, um zumindestens das richtige Verhältnis auf den Kagome- und Dreiecksplätzen zu erreichen. Dies würde aber eine Verfünfachung der Elementarzelle bedeuten und würde die weitere Rechnung in Relation zu den anderen Abschätzungen unnötig verkomplizieren. Deshalb wird hier wie in der Monte Carlo Simulation ein einheitlicher Spin gewählt.

Bei tiefen Temperaturen kann die Taylorentwicklung der Auf- und Absteiger S_i^+ und S_i^- entsprechend 2.48 und 2.49 durchgeführt werden. Da uns vorallem die nichtinteragierenden Magnonen interessieren, wird hier bis zur 1. Ordnung entwickelt:

$$\begin{aligned} S_i^z &= S - \hat{n}_i \\ S_i^+ &= \sqrt{2S} a_i^\dagger \sqrt{1 - \frac{\hat{n}_i}{2S}} \approx \sqrt{2S} a_i^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) \\ S_i^- &= \sqrt{2S} \sqrt{1 - \frac{\hat{n}_i}{2S}} a_i \approx \sqrt{2S} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) a_i. \end{aligned}$$

Nach dem Einsetzen in 5.3 werden die einzelnen Produkte ausgerechnet (Nebenrechnung H.3), so ergeben sich für diese Produkte Terme wie :

$$S_i^+ S_j^+ \approx 2S a_i^\dagger a_j^\dagger - \frac{1}{2} (a_j^\dagger a_i^\dagger \hat{n}_i + a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j) + \frac{1}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j^\dagger \frac{\hat{n}_j}{2S},$$

für Terme wie $S_i^+ S_j^z$:

$$S_i^+ S_j^z \approx \sqrt{2S} S^{\frac{3}{2}} a_i^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i - \sqrt{2S} a_i^\dagger \hat{n}_j + a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{\sqrt{2S}} \hat{n}_j$$

und für den Term $S_i^z S_j^z$:

$$S_i^z S_j^z = S^2 - S \hat{n}_i - S \hat{n}_j + \hat{n}_i \hat{n}_j.$$

So zeigt sich, dass der Hamiltonian sich aus Summanden verschiedener Ordnungen in a zusammensetzt:

$$H = H_0 + H_1 + H_2 + H_3 + H_4 + O(S^{-1}). \quad (5.4)$$

Da bei der Taylorentwicklung schon nach der ersten Ordnung abgebrochen wurden, treten Summanden 7. Ordnung oder höher nicht auf. Jedoch sind auch die Terme 5. und 6. Ordnung des Hamiltonian nicht vollständig bestimmt, da die Taylorentwicklung zu früh abgebrochen wurde. Denn zu diesen trüge auch die 2. Ordnung der Taylorentwicklung bei. Im Weiteren beschränken wir uns auf den Hamiltonian bis zur 2. Ordnung⁴.

Dieser berechnet sich zu (Nebenrechnung H.4):

$$\begin{aligned} H_0 &= \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} S^2 \cos(\theta_i - \theta_j) \\ H_1 &= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger + a_i) \sum_\delta J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta}) \\ H_2 &= S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) - 1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) + \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) + 1}{2} (a_i a_j^\dagger + a_i^\dagger a_j) \\ &\quad - S \sum_i \hat{n}_i \sum_\delta J_{i,i+\delta} \cos(\theta_i - \theta_{i+\delta}), \end{aligned}$$

⁴Eine Betrachtung der 3. Ordnung des Hamiltonian ist interessant für die Lebensdauer der Magnonen bzw. Dämpfung der Spinwellen und die 4. Ordnung für 2-Magnonenprozesse. Der dafür berechnete Hamiltonian für den vorliegenden Grundzustand befindet sich im Anhang H.7

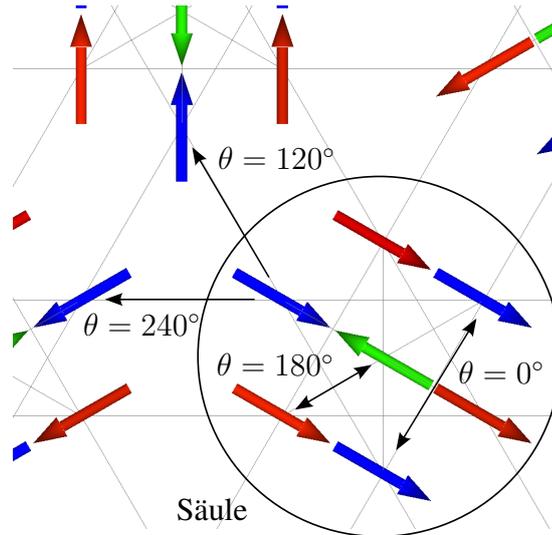


Abbildung 5.17: Die Winkel zwischen ausgewählten benachbarten Spins im $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand

wobei δ der Vektor zu den benachbarten Plätzen ist.

Die bisherigen Überlegungen gelten prinzipiell für jedes nächst-Nachbar Heisenberg Modell. Jetzt soll aber der vorliegende Kristall betrachtet werden.

Wie auf der Abbildung 5.16 zu erkennen, besteht die magnetische Elementarzelle aus drei Säulen (vgl. Abbildung 5.17). Als Säule sollen die Spins definiert werden, die gemeinsam die in c-Richtung gestapelten grüne Spins umgeben. Die dritte Säule ergibt sich durch das Versetzen der Randspins entsprechend der Elementarzelle. Innerhalb dieser Säulen liegen die Spins entweder parallel oder antiparallel zueinander, also $\theta_i - \theta_j = 0$ oder π . Daraus ergibt sich dann $\sin(\theta_i - \theta_j) = 0$ und $\cos(\theta_i - \theta_j) = \pm 1$. Zwischen den Säulen liegen die nächst-Nachbar Spins im Winkel von 120° bzw. $\frac{2\pi}{3}$ zueinander (vgl. Abbildung 5.17), das ergibt dann $\sin(\theta_i - \theta_j) = \pm \frac{\sqrt{3}}{2}$ und $\cos(\theta_i - \theta_j) = -\frac{1}{2}$.

Dann gilt für die Summe in H_1 :

Bei den Spins auf den Kagomeplätzen muss man zwischen der Wechselwirkung in der Ebene und aus der Ebene unterscheiden:

- in der Ebene:
 - Innerhalb der Säule: $2 \cdot J_1 \cdot \sin 0 = 0$.
 - Zwischen den Säulen: $J_1 \cdot \sin(\frac{2\pi}{3}) + J_1 \cdot \sin(-\frac{2\pi}{3}) = 0$.
- aus der Ebene:
 - Innerhalb der Säule: $2 \cdot J_2 \cdot \sin(\pi) = 0$.

Für die Spins zwischen den Kagomeebenen gibt es nur nächst-Nachbarn in anderen Ebenen und somit nur solche Wechselwirkung: $6 \cdot J_2 \cdot \sin(\pi) = 0$.

Wodurch $H_1 = 0$ wird.

Für die Summe in H_2 gilt:

Auch hier muss wieder bei den 18 Spins auf den Kagomeplätzen zwischen der Wechselwirkung in der Ebene und aus der Ebene unterschieden werden:

- in der Ebene:
 - Innerhalb der Säule: $2 \cdot J_1 \cdot \cos 0 = 2J_1$.
 - Zwischen den Säulen: $J_1 \cdot \cos(\frac{2\pi}{3}) + J_1 \cdot \cos(-\frac{2\pi}{3}) = -J_1$.
- aus der Ebene:
 - Innerhalb der Säule: $2 \cdot J_2 \cdot \cos(\pi) = -2J_2$.

Für die 6 Spins zwischen den Kagomeebenen gibt es nur nächst-Nachbarn in anderen Ebenen und somit nur solche Wechselwirkung: $6 \cdot J_2 \cdot \cos(\pi) = -6J_2$.

$$\begin{aligned}
 H_0 &= S^2(18J_1 - 36J_2 - 36J_2) = 18J_1S^2 - 72J_2S^2 \\
 H_1 &= 0 \\
 H_2 &= S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left[\frac{\cos(\theta_i - \theta_j) - 1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) + \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) + 1}{2} (a_i a_j^\dagger + a_i^\dagger a_j) \right] \\
 &\quad + S \sum_{i \in \text{Kagome}} \hat{n}_i (2J_2 - J_1) + 6S \sum_{i \notin \text{Kagome}} \hat{n}_i J_2
 \end{aligned}$$

Dieses Ergebnis ist eine erste Bestätigung, dass der richtige Grundzustand gewählt wurde. Denn wäre H_1 ungleich null, dann wäre der Grundzustand nicht erhalten bzw. die Energieerhaltung nicht erfüllt, da beliebig Magnonen erzeugt oder vernichtet werden könnten.

Da H_0 keine Wechselwirkung von Magnonen beinhaltet und nur den konstanten Energiebeitrag des Grundzustands liefert, betrachten wir H_2 .

Analog zu der Abbildung 5.16 werden die Spins in der Elementarzelle von A bis X durchnummeriert. Definiert man dann $\mathbf{R} = (x, y, z)$ als den Vektor zur abgebildeten Elementarzelle, dann sind alle Spins durch \mathbf{R} und ihren Buchstaben adressiert ($\sum_{\langle ij \rangle} \rightarrow \sum_{\mathbf{R}} (\text{nN-Spinpaare})$). Mit diesen Voraussetzungen können die Operatoren auf den Spinplätzen analog fouriertransformiert werden:

$$\begin{aligned}
 A_{\mathbf{R}} &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mu} e^{i\mathbf{R}\mu} A_{\mu} \\
 A_{\mathbf{R}}^\dagger &= \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_{\mu} e^{-i\mathbf{R}\mu} A_{\mu}^\dagger.
 \end{aligned}$$

Beispielweise ergibt sich dann:

$$\sum_{\mathbf{R}} A_{\mathbf{R}}^\dagger C_{\mathbf{R}}^\dagger = \frac{1}{N} \sum_{\mu} A_{\mu}^\dagger C_{-\mu}^\dagger.$$

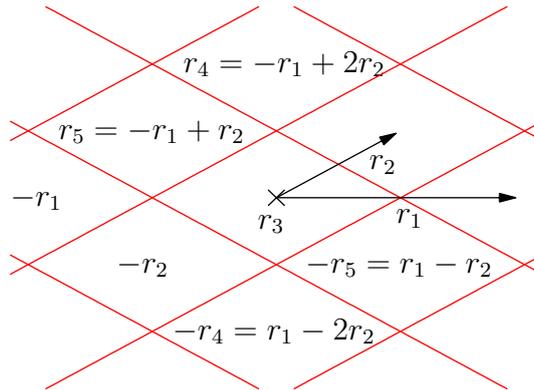


Abbildung 5.18: Definition der Vektoren zu den umliegenden Elementarzellen

Die Nebenrechnungen finden sich dazu bei H.12 (1. Summand), H.13 (2. Summand), H.14 (3. Summand) und H.15 (4. Summand). Nach wie vor soll ausschließlich die Wechselwirkung zwischen nächsten Nachbarn definiert werden. Diese Nachbarn können aber auch in unterschiedlichen Elementarzellen liegen. Die Vektoren zu den umliegenden Elementarzellen werden in Abbildung 5.18 definiert. Zu beachten ist, dass für die Wechselwirkung jedes Nachbarpaar nur einmal berücksichtigt wird.

Nachdem man die Summen fouriertransformiert hat, kann man die Summe der Operatorennachbarn als Matrix umschreiben, wobei nun aus Symmetriegründen sowohl die Wirkung von dem einen Operator auf den anderen als auch umgekehrt eingetragen wird. Daraus ergibt sich eine 48×48 Matrix M , diese ist selbstadjungiert:

$$(A_\mu^\dagger B_\mu^\dagger \cdots W_\mu^\dagger X_\mu^\dagger A_{-\mu} B_{-\mu} \cdots W_{-\mu} X_{-\mu}) \cdot M \cdot \begin{pmatrix} A_\mu \\ B_\mu \\ \vdots \\ W_\mu \\ X_\mu \\ A_{-\mu}^\dagger \\ B_{-\mu}^\dagger \\ \vdots \\ W_{-\mu}^\dagger \\ X_{-\mu}^\dagger \end{pmatrix} \quad (5.5)$$

Diese Matrix lässt sich in 4 Blockmatrizen aufteilen:

$$M = \frac{1}{2} S \begin{pmatrix} A^\dagger \cdot A & A^\dagger \cdot A^\dagger \\ A \cdot A^\dagger & A \cdot A \end{pmatrix}.$$

Hier ist A und A^\dagger ein Platzhalter für die verschiedenen Operatoren der Spinplätze. Auf Grund der Herleitung sind der 1. und 4. Quadrant und der 2. und 3. Quadrant jeweils gleich und da jeder Quadrant als Matrix selbstadjungiert ist, ist die gesamte Matrix auch selbstadjungiert. Eine wichtige Eigenschaft der Matrix ist, dass jeder Eintrag den Faktor J_1 oder J_2 aufweist (vgl. die Auflistung der Matrixeinträge im Anhang bei den Gleichungen H H). Somit lässt sich J_1 aus der Matrix herausziehen und übrig bleiben als Vorfaktoren in der Matrix dann 1 und

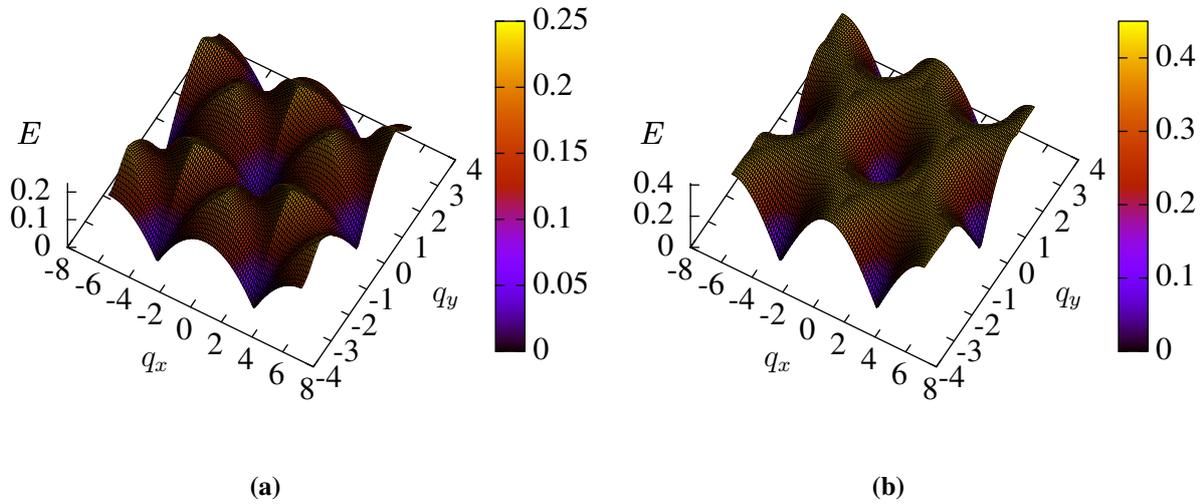


Abbildung 5.19: Beispielplots für die Beschaffenheit der Spinwellendispersionen bei niedrigen Energien in der hk_0 -Ebene.

(a) 3D-Plot des Eigenwerts 34. (b) 3D-Plot des Eigenwerts 39.

J_2/J_1 . So lässt sich das Ergebnis abhängig von dem Verhältnis der Austauschwechselwirkungen zueinander untersuchen. Das bedeutet, dass die Dispersionsrelationen mit einem gemeinsamen Faktor skaliert werden können, der wiederum proportional zu J_1 vermindert um den Spin S ist.

An dieser Stelle wird dann die Bogoliubov-Transformation verwendet (siehe Abschnitt 2.2.3), um die vorliegende Matrix unter Berücksichtigung der Kommutatorregeln Bosonenoperatoren zu diagonalisieren. Dieser Schritt wurde in Mathematica entsprechend [Sac92] durchgeführt. Das Skript dazu findet sich im Anhang I. Dazu wird eine Matrix τ definiert:

$$\tau = \begin{pmatrix} -1 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \cdot \mathbf{E}_{24} \quad (5.6)$$

mit der Einheitsmatrix \mathbf{E}_{24} .

Der Realteil der Eigenwerte lässt sich in Mathematica als 3D-Plot visualisieren. So wird der Energieübertrag z.B. gegenüber k_x und k_y für Betrachtungen in der hk_0 -Ebene ($k_z = 0$) aufgetragen. Wie zu erwarten, ergeben die Eigenwerte sowohl die Magnonendispersionen im positiven Energieübertragsbereich bei Magnonenerzeugung, als auch die an der k_x - k_y -Ebene gespiegelten im negativen bei Magnonenvernichtung. Bei den Neutronenmessungen wurde in Anregung gemessen, deshalb soll im Weiteren auch nur dieser Bereich betrachtet werden. Wenn die Ergebnisse der Eigenwerte geplottet werden, ergeben sich 3D-Plots der Form, wie sie in den Abbildungen 5.19 und 5.20 zu sehen sind. Die hier abgebildeten Eigenwerte sind Teil des akustischen Energiespektrums. Ist in der hk_0 -Ebene die erwünschte hexagonale Symmetrie zu sehen, so zeichnen sich in der hkl -Ebene nur zwei ausgezeichnete Achsen ab. In Abbildung 5.19a liegen die Peaks gerade auf den Eckpunkten K der magnetischen Brillouinzone. Entlang den Seiten gelangt man dann in ein Tal beim Kantenmittelpunkt M. Die absoluten Minima liegen am Gammapunkt bei einer Energie von 0. Im Gegensatz dazu zeigt sich in Abbildung 5.19b

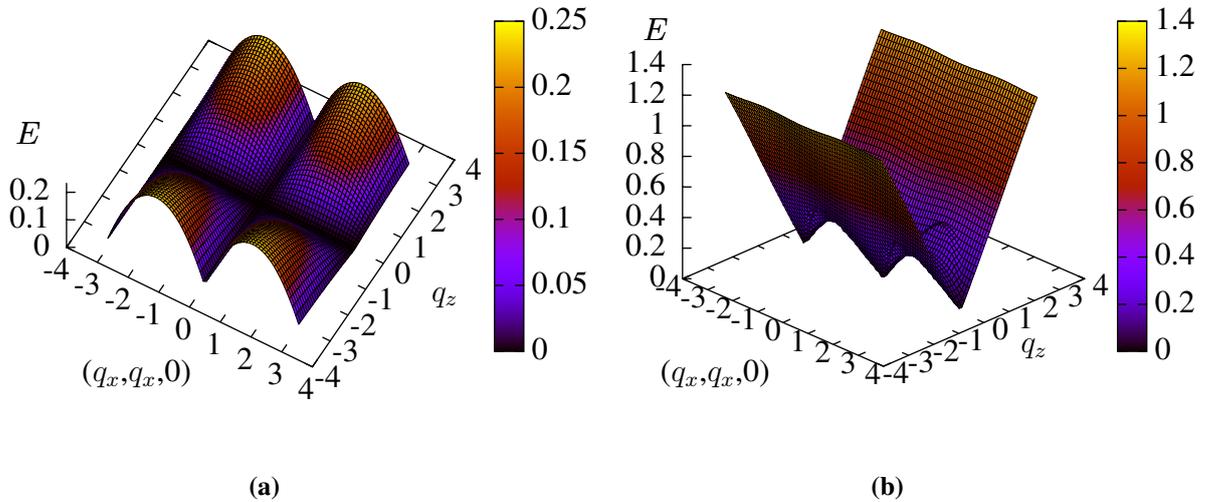


Abbildung 5.20: BeispielpLOTS für die Beschaffenheit der Spinwellendispersionen bei niedrigen Energien in der hhl-Ebene.

(a) 3D-Plot des Eigenwerts 31. (b) 3D-Plot des Eigenwerts 37.

ausschließlich ein steiler Kegel bis zur elastischen Ebene am Γ -Punkt. Interessant ist die leicht ausgeprägte Mulde auf dem Bergrücken zwischen zwei Γ -Punkten. Diese zeigt eine deutliche hexagonale Struktur und gibt praktisch die Grenze der Elementarzelle an. Betrachtet man die hhl-Ebene der Eigenwerts 31 (vgl. Abbildung 5.20a), so liegt die Spinwellendispersion entlang der $(Q_x, Q_x, 0)$ - und Q_z -Richtung, also zu den symmetrisch ausgezeichneten Punkten M und A auf der elastischen Linie. Die Maxima geben hier die Eckpunkte L der Brillouinzone an. In Abbildung 5.20b sind deutlich sehr steile Dispersionszweige in der Q_z -Richtung bis zum Zonenrand zu sehen. Diese entsprechen einem Teil der so markanten Zweige der hhl-Ebene bei der ARCS-Messung. Von Γ in Richtung zum Punkt M zeigen sich aber wieder die niedrigen Anregungsmoden. Dies dient an dieser Stelle dazu, das grundsätzliche Aussehen der Spindispersionen zu verdeutlichen, jedoch ist eine solche Betrachtung für alle Eigenwertlösungen eher unpraktikabel. Da es angestrebt ist, die Ergebnisse mit den Messungen zu vergleichen, werden die Plots auf die bei Panda gemessenen Hauptsymmetrierichtungen beschränkt. Bei der bisherigen Bestimmung der Austauschwechselwirkungsparameter ergab sich als das niedrigst mögliche Verhältnis der Austauschwechselwirkungen: $J_2/J_1 = 1.5$. Dieses soll deshalb auch zuerst untersucht werden. Bei den gezeigten Dispersionsrelationen handelt es sich um die Teile der Relationen entlang den Symmetrierichtungen in der hexagonalen Brillouinzone. Alle wichtigen Informationen bleiben in dieser übersichtlicheren Form erhalten. Zu den Abbildungen ist noch zu sagen, dass, selbst wenn es anders erscheint, die Dispersionsrelationen immer stetig sind, wie in den 3D-Plots zu erkennen ist, und verlaufen gegebenenfalls übereinander wodurch sie nicht immer zu differenzieren sind oder gehen in der hhl-Ebene bei den Punkten A und M in ein flaches Band über.

Für $J_2/J_1 = 1.5$: In der hk0-Ebene zeigen sich sehr deutlich verschiedene voneinander separierte Energiebänder, die aus mehreren Magnonendispersionen zusammengesetzt sind. Bei einem Energieübertrag von 0 befinden sich die sogenannten flachen Bänder (konstant 0 für al-

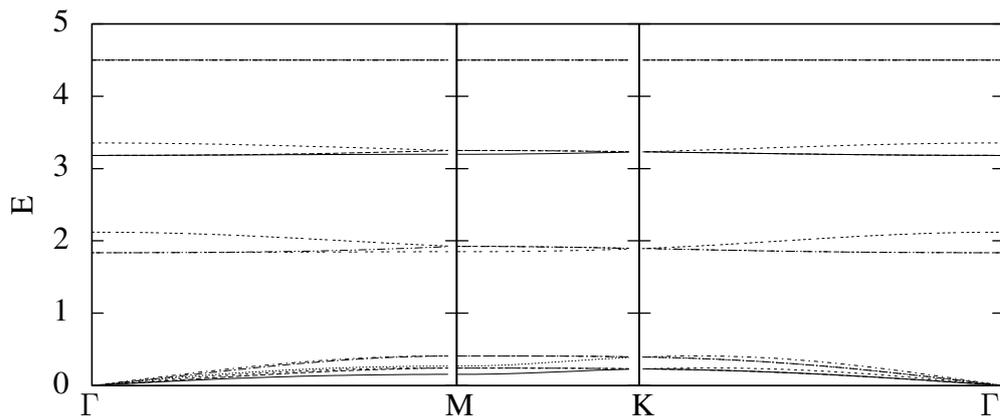


Abbildung 5.21: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hk_0 -Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$

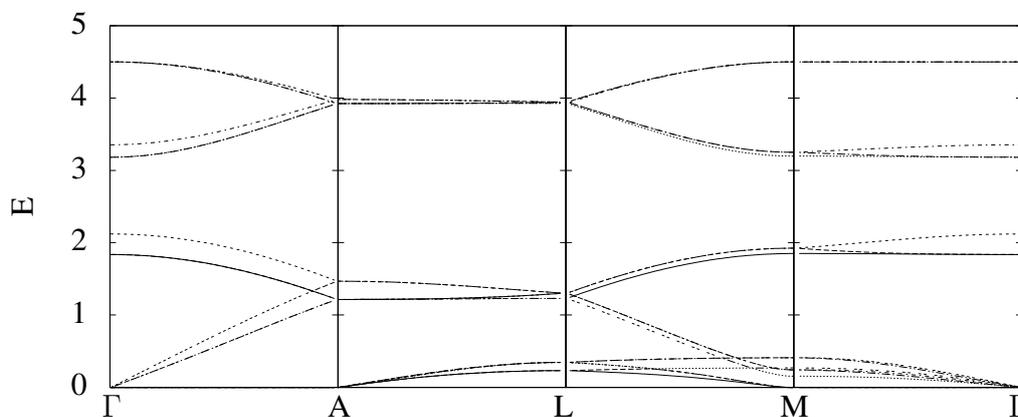


Abbildung 5.22: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl -Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$

le k_x, k_y), diese sind typisch für die Magnonendispersionen des Kagomegitters und sind ein Zeichen für die starke Entartung des Grundzustands. Es handelt sich um eine Nullmode, d.h. die Ausbreitung der Spinwelle kostet keine Energie. Für die vorgegebene Struktur ergeben diese sich aber auch bei einem Energieübertrag von 4.5. Für den Energiebereich, der an PANDA vermessen wurde, zeigen sich Dispersionen ausschließlich ausgehend vom Gammapunkt der magnetischen Brillouinzone. Die bei höheren Energien liegenden Bänder, bzw. die optischen Moden, sind dazu vergleichsweise flach. Bei der Betrachtung der Spinwellen in der hhl -Ebene zeigt sich, dass die vier in der hk_0 -Ebene getrennten Energiebänder hier zu zwei zusammengeführt werden. Dadurch ergeben sich zwei breite Energiebereiche bei niedrigen und hohen Energien, die verbunden sind. Dies bedeutet, dass sich die Spinwelle in c -Richtung besser ausbreiten kann. Die hier nicht abgebildeten Dispersionen in den Ebenen hkc (Mit c ist der Fixpunkt beim Flächenmittelpunkt A gemeint.) und $h0l$ ähneln jeweils denen in der hk_0 - bzw. hhl -Ebene (siehe Abbildungen B.1 und B.2). Unterschiede sind nur zwischen den Dispersionen in hk_0 und hkc -Ebene zu erkennen: Dadurch dass sich an den Punkten A, H und L die vier separierten Bänder zu dreien verbinden, sind hier auch nur diese drei zu sehen. Diese liegen im Vergleich zu denen in der hk_0 -Ebene bei leicht niedrigeren Energien. Letztlich sind die Bänder

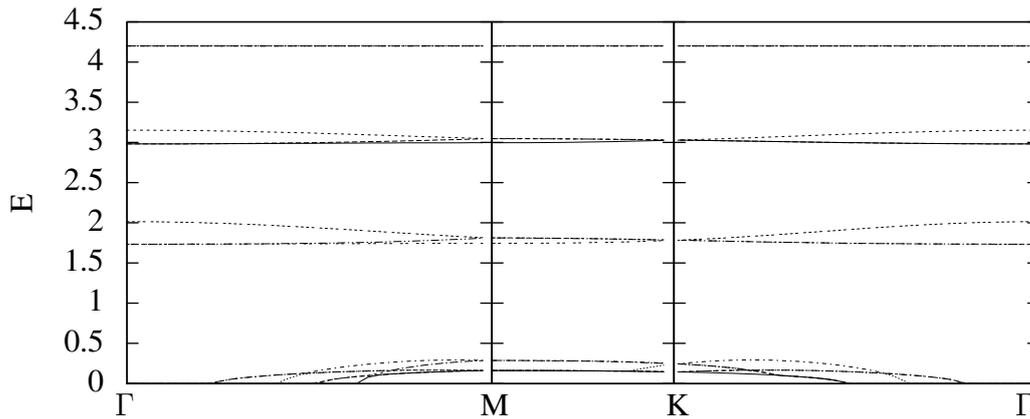


Abbildung 5.23: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der $hk0$ -Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.4$

in beiden Ebenen aber vergleichsweise flach.

Für $J_2/J_1 < 1.5$: Betrachtet man die Spindispersionen bei einem Verhältnis kleiner als 1.5, dann zeigen sich selbst bei kleinen Abweichungen (1.499) schon leichte Verformungen der Dispersionsrelationen. Besonders fällt auf, dass manche der vormals flachen Bänder sich am Gammapunkt aufwölben und leicht von der elastischen Ebene verschoben sind. Außerdem nimmt die Steigung der akustischen Moden ab, werden also in Richtung der elastischen Linie gedrängt. Wählt man kleinere Verhältnisse, zeigt sich dies noch deutlicher. So starten keine Spindispersionen mehr vom Gammapunkt aus, sondern sind in k_x und k_y verschoben. Die Spindispersionen fallen schon bei einem Verhältnis von 1.4 praktisch in sich zusammen. Betrachtet man hier auch den Imaginärteil der Eigenwerte, so steigt dieser mit der Abnahme des Verhältnisses an. Dadurch lässt sich dieses Verhalten als eine Art Dämpfen der Spinwellendispersion beschreiben. Dies ist in erstaunlicher Übereinkunft mit der Betrachtung des Ordnungsparameters gegenüber dem Verhältnis in der MCS (vgl. Abbildung 4.9). Auch dort weist das Spinsystem für ein Verhältnis $J_2/J_1 < 1.5$ keine vollständige Ordnung mehr auf. Die Spinwellenrechnung ist also sehr empfindlich gegenüber leichten Unordnungen der Spins. In der Kagomeebene treten diese Unordnungen schon recht schnell auf, wobei die trigonalen Spins noch länger geordnet bleiben. Das spiegelt auch die Spinwellenrechnung wider. Denn bei Betrachtung der Spindispersion in der hhl-Ebene zeigt sich, dass die Spindispersionen vom Gammapunkt nach A bis zu einem Verhältnis von 0 (bzw. $J_2 = 0$) praktisch stabil bleiben. Dies entspricht gerade der c -Richtung. Das bedeutet, dass die Ordnung in c -Richtung, im Vergleich zu der in x - y -Ebene, stabil bleibt.

Bei $J_2 = 0$ fällt erwartungsgemäß die Spinwellendispersion in c -Richtung in sich zusammen, da sich ohne eine Kopplung in dieser Richtung auch keine Spinwellen ausbreiten können. In der $hk0$ -Ebene zeigen sich dann vollständig zusammenhängende Dispersionsrelationen, welche vom Γ -Punkt aus stark ansteigen.

Für $J_2/J_1 > 1.5$: Bei höheren Verhältnissen stellt man in der $hk0$ -Ebene fest, dass sich die Spindispersionen, zu höheren Energie übertragen, verschieben und die Moden dann von einer in der Energie höheren Ebene aus ansteigen. Dorthin verschiebt sich auch ein Teil der zuvor flachen Bänder, wobei sich darunter aus den übrigen neue niedrigst Energiemoden ausbilden,

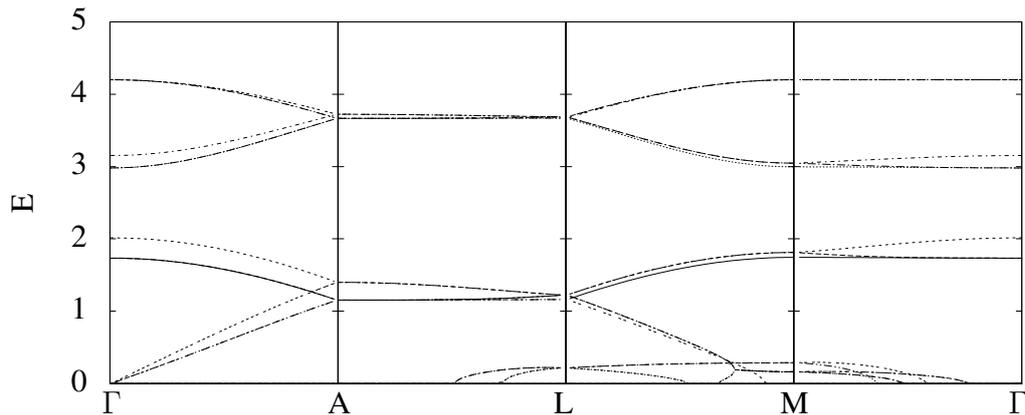


Abbildung 5.24: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.4$

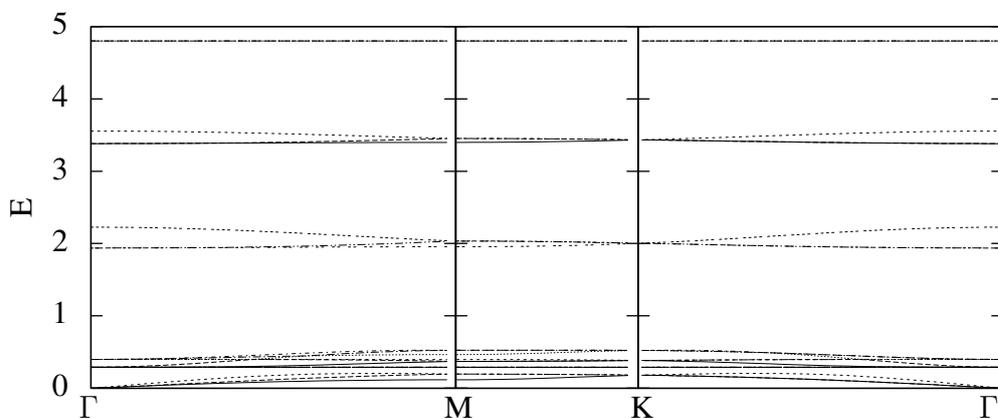


Abbildung 5.25: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hk0-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.6$

die den bisherigen von der Form her entsprechen. Es gibt nun keine flachen Bänder mehr bei $E = 0$. Betrachtet man die Spindispersionen in der hk0-Ebene (vgl. Abbildung 5.25), so sind deutlich die verschiedenen flachen Bänder zu sehen, von denen jeweils Spindispersionen zu dem darüberliegenden Band ausgehen. Wurden bei den kleineren Verhältnissen die Spinwellen auf die flachen Bänder gedämpft und so die Entartung erhöht, so wird hier die Entartung bei der elastischen Ebene aufgehoben und zu höherem Energieübertrag verschoben. Betrachtet man die Spinwellendispersionen für das Verhältnis J_2/J_1 im Limes gegen unendlich, so zeigt sich, dass die Moden in c-Richtung mit dem Verhältnis skalieren. In der hk0-Ebene werden auch die Abstände der Energiebänder mitskaliert (auch der Abstand zwischen den hier aufgespaltenen Niedrigenergiebändern) und wirken im Verhältnis zu den zunehmenden Abständen immer flacher. Betrachtet man jedes Band separat, so ist zu erkennen, dass die Moden aber ihre Struktur beibehalten.

Für das Verhältnis der Austauschwechselwirkungen lässt sich hieraus folgern, dass es für eine Vereinbarkeit mit den Messdaten nicht unterhalb von $J_2/J_1 = 1.5$ liegen kann, da bei Panda zwar gedämpfte aber keine zusammengefallene Anregungszweige gemessen wurden. Aber auch ein Verhältnis weit über 1.6 ist unwahrscheinlich, da sonst oberhalb des Γ -Punkts ein zu großes

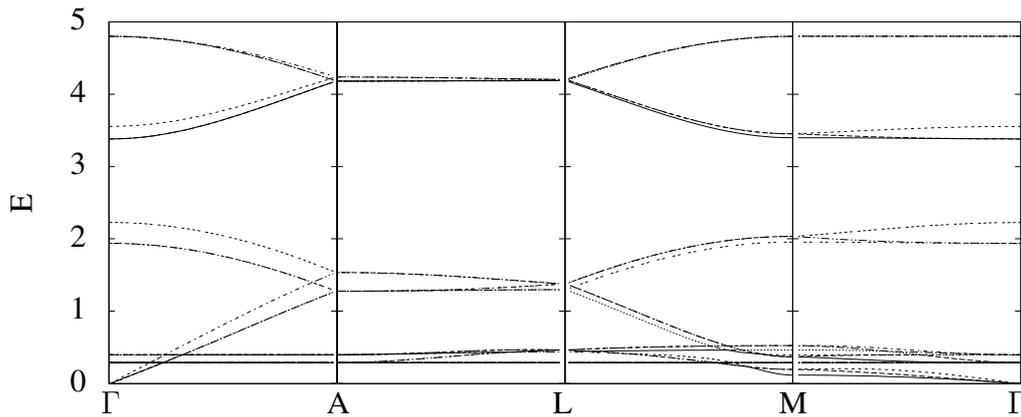


Abbildung 5.26: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.6$

Anregungsloch entsteht.

5.3 Spinwellensimulation

Zusätzlich zu der analytischen Untersuchung der Spinwellen wurde eine numerische Simulation, aufbauend auf der Monte Carlo Simulation, angestrebt, entsprechend der Beschreibung in 2.5. Die Ergebnisse in der Doktorarbeit von Julien Robert [Rob07] sehen durchweg vielversprechend aus. Ein Vorteil einer numerischen Simulation ist der vergleichsweise unaufwändige Einbau von zusätzlichen Termen in das verwendete Modell (z.B. Anisotropien und Dzyaloshinskii-Moriya-Wechselwirkung) und vor allem die direkte Berücksichtigung von Anharmonizitäten. Sehr wichtig bei einer solchen Simulation ist die rechenleistungsorientierte Verwirklichung. Somit sollte das Runge-Kutta-Verfahren in C++ geschrieben und dann in einen Python Code eingebettet werden. Der C++ Code liegt in der Gnu Scientific Library [GDT⁺03] vor und die Einbettung wurde mittels einer Wrappermethode realisiert, diese wird als Bibliothek in das Pythonprogramm eingebunden. Der vollständige Pythoncode findet sich in Anhang I.

Trotz dieser Bemühungen benötigt eine Simulation bei ausreichend vielen Zeitschritten mindestens eine Woche Rechenzeit und die Fouriertransformation dieser mindestens dieselbe Zeitspanne. Somit war es kaum möglich, das Programm ausführlich für verschiedene Parameter zu testen. Eine Möglichkeit die Rechenleistung zu erhöhen, wäre das Programm zu parallelisieren. Dessen Zeitaufwand überstieg jedoch nach Rücksprache mit einem Mitarbeiter des Jülich Supercomputing Center den Zeitrahmen der Diplomarbeit. Sollte sichergestellt worden sein, dass das Programm reibungslos funktioniert, ist es als Lösung dieser Problematik auch angedacht, die Programmstruktur für den Supercomputer des Forschungszentrums Jülich anzupassen.

Die Abbildung 5.27 zeigt das Ergebnis, wie es bisher möglich war zu simulieren. Hier zeigt sich auch, dass eine Verkleinerung des Spinsystems um Rechenzeit zu sparen, nicht angebracht ist, da schon die derzeit mögliche Auflösung in Q zu gering ist. Die horizontalen Balken sind mitunter Artefakte der Fouriertransformation in der Zeit. Eine Erhöhung der simulierten Zeitschritte ist aber nicht nur wegen des zunehmenden Zeitaufwands sondern auch wegen der notwendigen Speicherung der Zeitschritte kritisch. Im Gegensatz zu der Spinwellenrechnung lässt sich die Energie hier absolut bestimmen, indem man die Lamorfrequenz (siehe Gleichung 2.5) des Spins

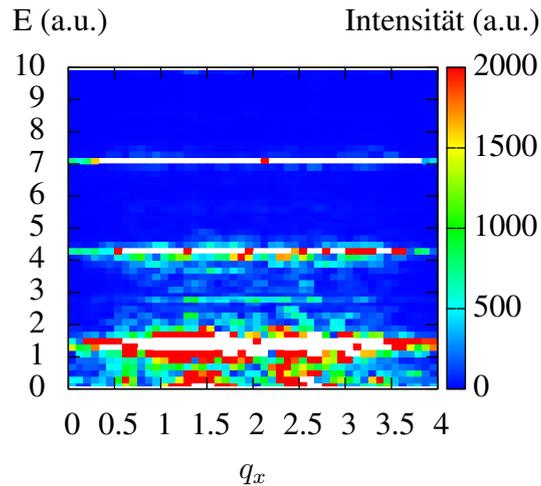


Abbildung 5.27: Vorläufiges Ergebnis der Spinwellensimulation. Anregungsspektrum in Q_x -Richtung bei bestmöglicher Auflösung.

im Molekularfeld der umgebenden Spins berechnet. Über die Drehung des Spins innerhalb der Zeitschritte kann dann die Zeit und so letztlich auch die Energie bestimmt werden. Es bedarf also keiner nachträglichen Skalierung. Betrachtet man die Abbildung genauer, so lassen sich die Braggpeaks bei $Q_x \approx 0.6, 1.5, 2.5$ und 3.4 erkennen. Dort zeigen sich neben den Anregungen, ausgehend von den Braggpeaks (bei sehr kleinen Energien, $E < 1$), mehrere horizontale Anregungsbänder, wobei diese mit der Energie zunehmend flacher werden. Zwischen diesen sind nur wenige Anregungen zu erkennen. Dies ist schon jetzt in akzeptabler Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Spinwellenrechnung. So zeigt sich, dass das Programm zwar sinnvolle Ergebnisse liefert, für eine wirkliche Interpretation müsste aber die mögliche Auflösung wesentlich erhöht werden.

Kapitel 6

Diskussion und Vergleich der Ergebnisse zur Spinwellendynamik

Nachdem nun sowohl die Messungen der Spinwellenanregungen als auch die theoretischen Ergebnisse separat diskutiert worden sind, ist es angebracht, diese auf ihre Konsistenz zu untersuchen. Dazu müssen die berechneten Spinwellendispersionen skaliert werden. Dieser Skalierungsfaktor entspricht dann J_1 vermindert um den Spinfaktor. In den Monte Carlo Simulationen wird von einem Einheitsspin von $S = 1$ sowohl für die Co- als auch für die Fe-Atome ausgegangen, deshalb soll dieser auch hier gewählt werden. Der Skalierungsfaktor für gute Übereinstimmung muss somit im Bereich von $J_1 = 28$ meV liegen, entsprechend dem Vergleich von der Neeltemperatur zu der bestimmten Phasenübergangstemperatur für das vorliegende Material mit 4.3 in Unterkapitel 4.1.2. Zu den Pandamessungen passend, wurde als Skalierungsfaktor $J_1 = 35$ meV gewählt. Da $J_2/J_1 = 1.5$ als niedrigst mögliches Verhältnis festgestellt wurde und auch die „normalen“ Spindispersionen aufweist, soll hiermit begonnen werden. Das Ergebnis der Anpassung ist in den Abbildungen 6.1 und 6.2 zu sehen. Wichtig ist zu erwähnen, dass es sich bei den gezeigten Dispersionsrelationen nur um die Schwerpunkte dieser handelt, d.h. dass Effekte der Anharmonizität wie Lebensdauer nicht berücksichtigt sind. Dies wiederum bedeutet, dass nicht notwendigerweise an allen Punkten der Dispersionsrelation dieser Zweig wirklich populiert sein muss. Das gilt zum Beispiel in der hhl-Ebene zwischen den Punkten A und M. Diese werden entsprechend der Monte Carlo Simulation als auch vorhergehenden Untersuchungen (siehe E) auf der elastischen Ebene nicht selektiert.

Ansonsten zeigen sich diverse Übereinstimmungen zwischen Messung und der Theorie. So stimmen in der hk0-Ebene die niedrigsten Dispersionsrelationen qualitativ mit der Abgrenzung zu der höheren Intensität überein. Auch die zu höheren Energien propagierenden Moden werden nachempfunden. In der hhl-Ebene fällt zum einen die Übereinstimmung mit der stark ansteigenden Mode von Γ nach A auf. Für eine bessere Nachbildung wäre hier ein kleinerer Skalierungsfaktor von unter $J_1 = 30$ meV angebracht. Betrachtet man hier die Richtung Γ nach M, so lässt sich die Übereinstimmung mit den intensitätsstärkeren Bereichen deutlich erkennen. Für die Moden bei höheren Energien wäre hier nun ein leicht höherer Skalierungsfaktor angebracht. Diese Diskrepanz lässt sich an dieser Stelle nicht klären, wir werden diese aber im Weiteren wieder aufgreifen. Aber zuerst ist es noch von Interesse, die Karten für eine logarithmische Intensitätsskala zu betrachten (Abbildungen 6.3 und 6.4). Hier bestätigt sich die schon zuvor beobachtete Reproduktion der besonderen Charakteristika, und es wird noch stärker deutlich, dass die berechneten Dispersionsrelationen eine gute untere Grenze für die Spinwellenanregungen angeben. Zuletzt werden hier noch die, mit der Energie skalierten, Intensitätskarten in den Abbildungen 6.5 und 6.6 dargestellt. Eine Energieskalierung ist deshalb sinnvoll, weil die

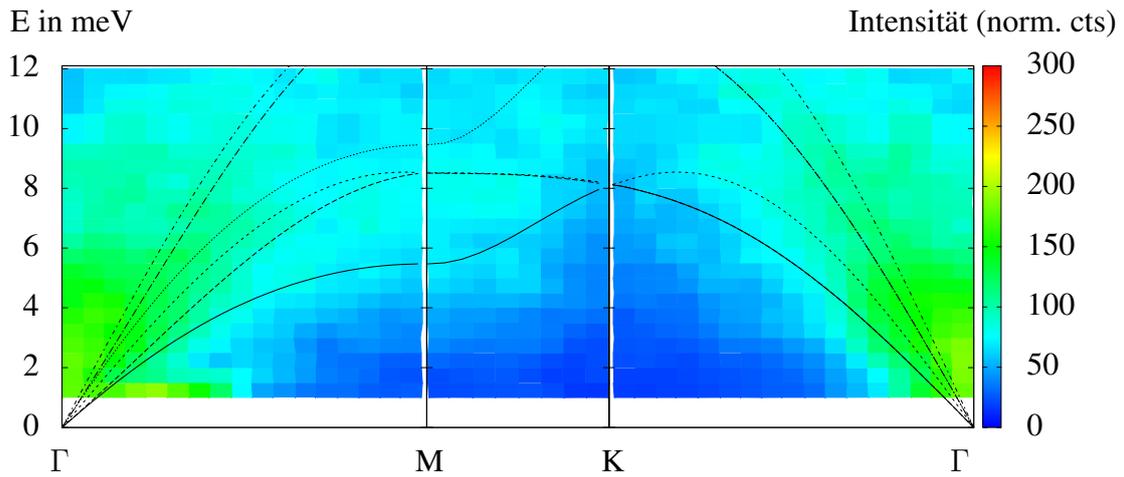


Abbildung 6.1: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der $hk0$ -Ebene bei 5K

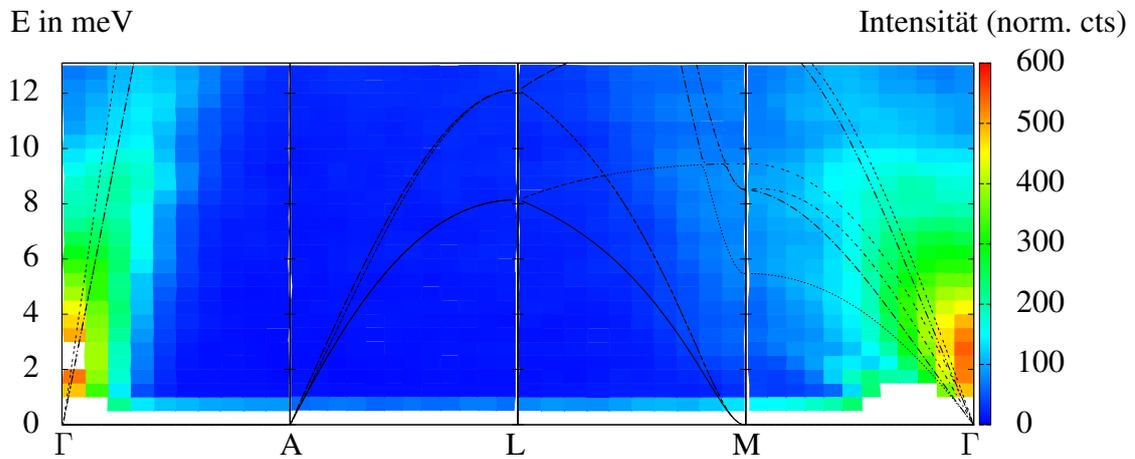


Abbildung 6.2: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl -Ebene 5K

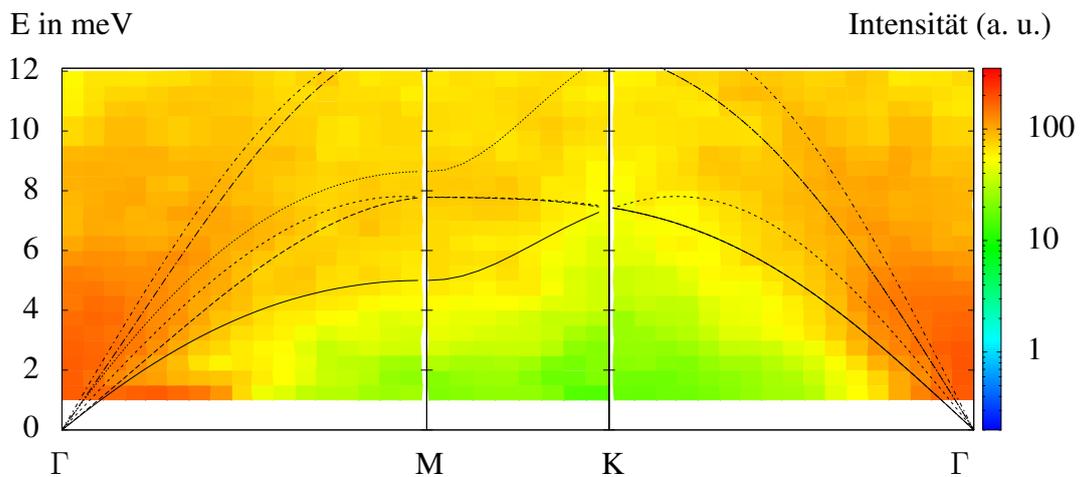


Abbildung 6.3: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der $hk0$ -Ebene bei 5K mit logarithmischer Auftragung der Intensität

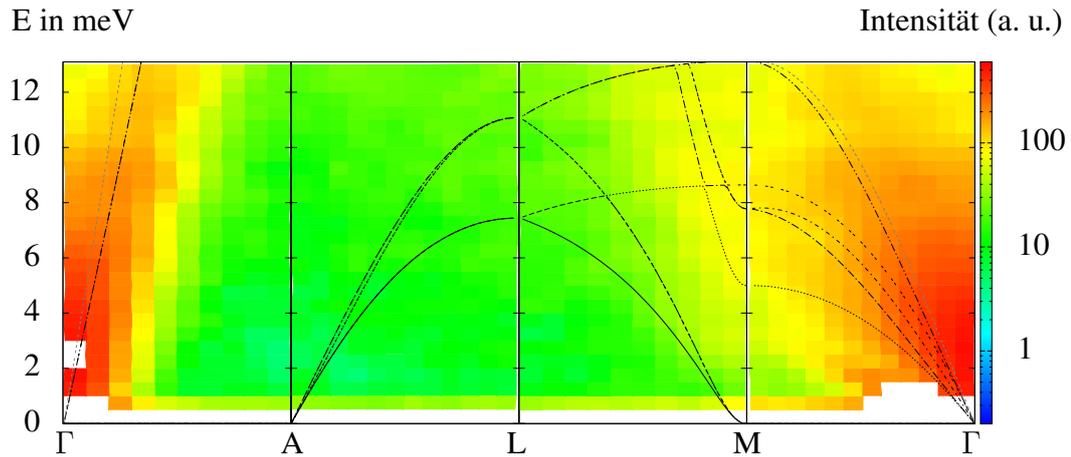


Abbildung 6.4: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K mit logarithmischer Auftragung der Intensität

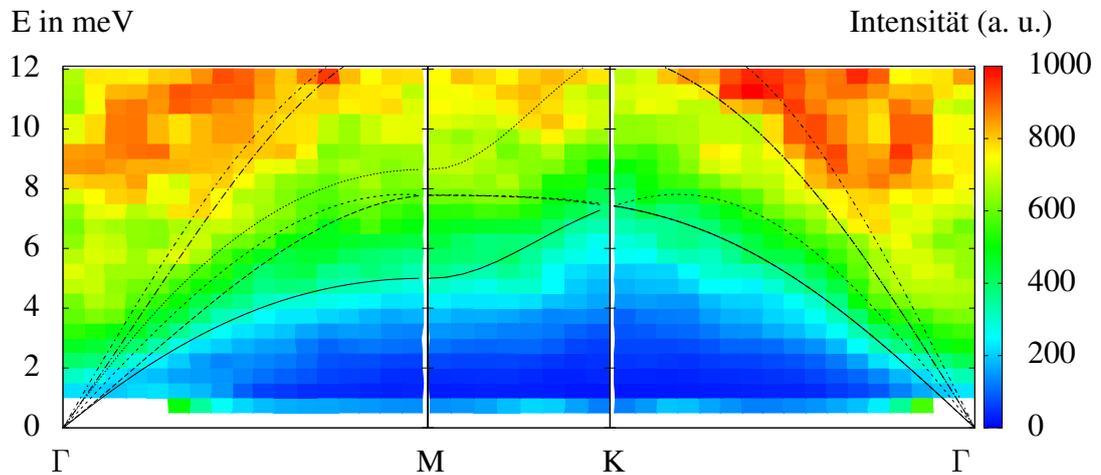


Abbildung 6.5: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hk0-Ebene bei 5K gewichtet linear mit der Energie

Wahrscheinlichkeit, entsprechend der Bosestatistik, Spinwellenanregungen bei höheren Energien zu messen abnimmt. Diese Verringerung kann ungefähr durch eine Skalierung mit E^2 ausgeglichen werden. Jedoch verliert sich bei diesen niedrigen Energien dann sehr stark die eigentliche Struktur. Der allgemeine Eindruck bestätigt sich auch hier und zusätzlich zeigt sich in der hhl-Ebene, dass die zuvor gänzlich unpopulierten Moden zwischen A und M nun eine gewisse Intensität aufweisen. Im Vergleich zu den berechneten Dispersionsrelationen zeigt sich hier aber auch deutlich, dass bis auf die steile Relation von Γ nach A die Relation allgemein etwas zu niedrig liegen. Im Besonderen gilt dies, wenn man bedenkt, dass bei einer zusätzlichen Betrachtung der Lebensdauer der Magnonen die bisherigen Dispersionsrelationen nur die Schwerpunkte für symmetrische Gaussfunktionen darstellen. Somit muss nicht nur zu hohen, sondern auch zu niedrigen Energien ausreichend Intensität vorhanden sein. Das bedeutet, dass die bisher ermittelten Schwerpunkte nicht genau auf der Grenze liegen, sondern leicht zu höheren Energien verschoben sein sollten. Des Weiteren ist anzumerken, dass die hier verstärkten Anisotropien durch die Multiplikation der Intensität mit der niedrigen Energie entstehen, da-

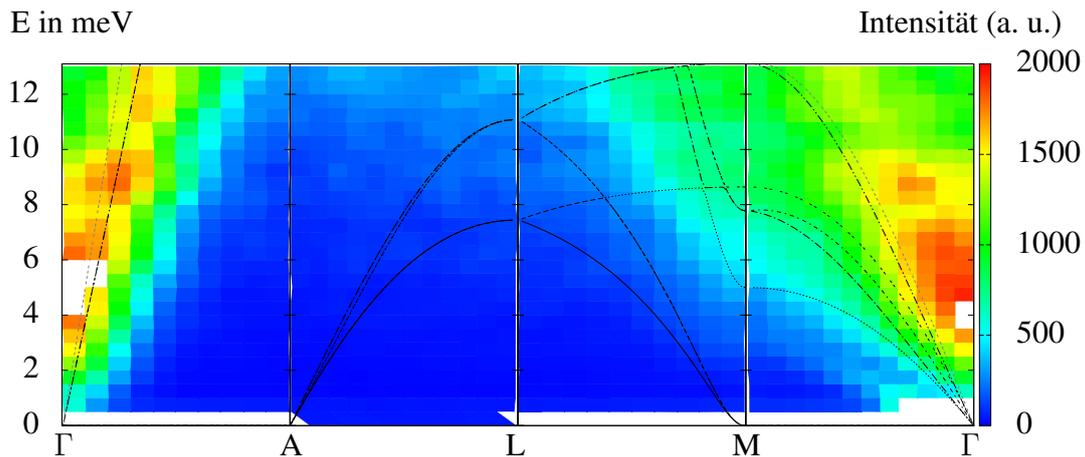


Abbildung 6.6: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K gewichtet linear mit der Energie

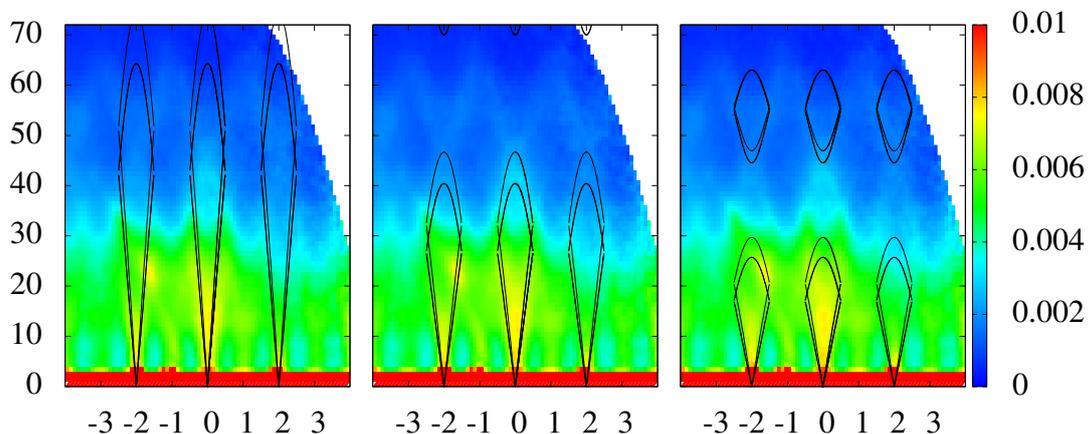


Abbildung 6.7: Anpassung der Moden in $[001]$ -Richtung jeweils an das Anregungsspektrum aus Messung von ARCS am hhl-Kristall bei 5 K und einer Eingangsenergie von 80 meV. Mit den Skalierungsfaktoren $J_1 = 35$ meV (aus Panda), $J_1 = 22$ meV (Anpassung an die niederenergetischen Moden) und $J_1 = 14$ meV (Anpassung an die höherenergetischen Moden) (v.l.n.r.).

durch wird die Intensität bei kleinen Energien unterdrückt. Auch sind einzelne Strukturen oberhalb der Intensitätsgrenze im Anregungsspektrum nicht mehr zu erkennen und die sehr starken Intensitätsfluktuationen, bei den hier höchsten Energien, weisen auf die unzureichende Statistik im höheren Energiebereich hin.

Als nächstes werden die berechneten Spinwellendispersionen mit den am Neutronenexperiment ARCS gemessenen Daten verglichen. Dazu werden vor allem die Daten in der hhl-Ebene betrachtet werden, da mit einer Anpassung der Dispersionen an die in die c-Richtung stark propagierenden Moden eine Verbesserung des Skalierungsfaktors möglich ist. Plottet man die gemessenen Moden aus Abbildung 5.11 zusammen mit den berechneten Spindispersionen so ergibt sich die Abbildung 6.7. Es ist hier nun noch deutlicher zu sehen, dass für eine Anpassung an die Spinwellenanregungen in c-Richtung der Skalierungsfaktor wesentlich gesenkt werden muss. Jedoch fällt auf, dass die Moden in der theoretischen Beschreibung nur zur Hälfte nachgebildet werden, die obere Hälfte scheint zu fehlen. Wie in der Abbildung 5.22 aber zu erkennen

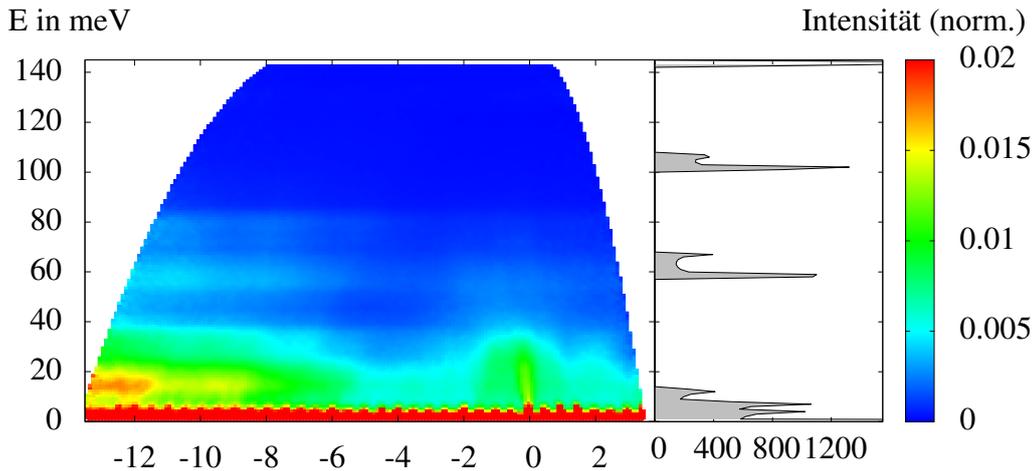


Abbildung 6.8: Vergleich der berechneten Zustandsdichte der mit $J_1 = 32$ meV skalierten Dispersionsrelationen (rechts) mit dem Anregungsspektrum in $[1\ 0\ 0]$ -Richtung aus der Messung am hk_0 -Kristall bei 5 K und 150 meV Eingangsenergie.

ist, liegen diese getrennt bei höheren Energien. Diese Trennung ließe sich mit dem gegenwärtigen Modell nur für ein Verhältnis von J_2 zu J_1 von weniger als 0.5 vereinbaren, da sich nur für solche Verhältnisse die Energiebänder verbinden. Dies ist jedoch nach den vorhergegangenen Untersuchungen auszuschließen. Das weist darauf hin, dass die grundsätzliche Struktur der berechneten Dispersionsrelationen zwar richtig ist (auch die Dispersionen bei hohen Energien passen gut auf die Form der Anregungen, siehe rechte Abbildung von 6.7), jedoch bedarf es zur vollständigen Nachbildung der Messungen sowohl der Berücksichtigung von Anharmonizitäten, als auch einer Veränderung des bisher verwendeten Modells bei der Wechselwirkung aus der Ebene. Trotzdem soll hier der Skalierungsfaktor leicht nach unten hin korrigiert werden (von $J_1 = 35$ meV auf $J_1 = 32$ meV), um eine bessere Anpassung zu bewirken. Die daraus resultierenden Folgen für die Moden bei niedriger Energie ist vergleichsweise schwach und die vorherigen Übereinstimmungen lassen sich letztlich immer noch finden (Die daraus resultierenden Bilder finden sich im Anhang B.3 und B.4.). Nachdem nun die Anpassung verbessert wurde, können nun auch die Bilder der Anregungsstufen mit den Ergebnissen der Spinwellenrechnung verglichen werden, dazu werden die Spinwellendispersionsrelation zuerst entsprechend aufintegriert. Dabei wird in der jeweiligen Ausrichtung gerade 1 Periode gewählt, um alle Relationen gleichmäßig zu gewichten. Für die Integration werden die einzelnen Spindispersionsrelationen sehr feinschrittig in Punkte zerteilt und daraus ein Histogramm in Abhängigkeit von der Energie erzeugt. Die Schrittweite in der Energie wurde der bei der ARCS-Messung verwendeten angepasst ($\Delta E = 1$ meV). Dieses Histogramm entspricht dann gerade so etwas wie der Zustandsdichte der Magnonen für die jeweilige Richtung (siehe Abbildung 6.8). Auf der Abbildung ist jedoch zu sehen, dass die von der Spinwellenrechnung prognostizierten möglichen Bereiche höherer Intensität zwar bei Energien bis 67 meV und kleinen Q gewisse Entsprechungen in der Messung finden, aber nicht in der Lage sind das Anregungsspektrum völlig zu beschreiben. So muss zwar bedacht werden, dass die Spinwellenrechnung keine Aussage über eine wirkliche Population der Dispersionsrelation macht. Das erklärt z.B. den unpopulierte Bereich bei 100 meV. Durch die breiten von der Spinwellendispersion nicht beschriebenen Bereiche wird die Überlegung bestätigt, dass es sich hierbei vermutlich um Phononenbeiträge handelt.

An dieser Stelle wollen wir nun auf die Diskrepanz zwischen dem zuerst gewählten Skalierungsfaktor $J_1 = 35$ meV und dem bei der Dispersionsrelation in c-Richtung besser passenden

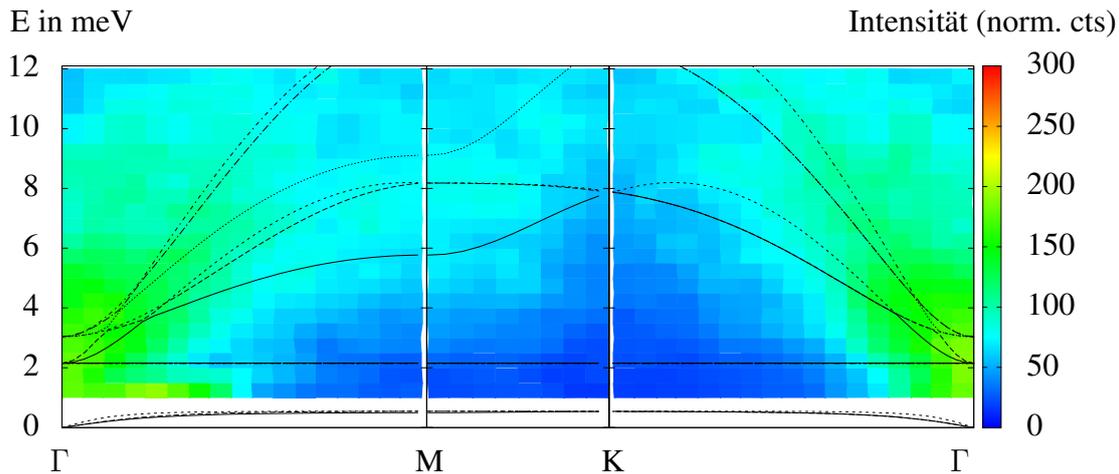


Abbildung 6.9: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der $hk0$ -Ebene bei 5K. Für ein angenommenes Verhältnis von $J_2/J_1 = 1.506$ und skaliert mit Faktor $J_1 = 32$ meV.

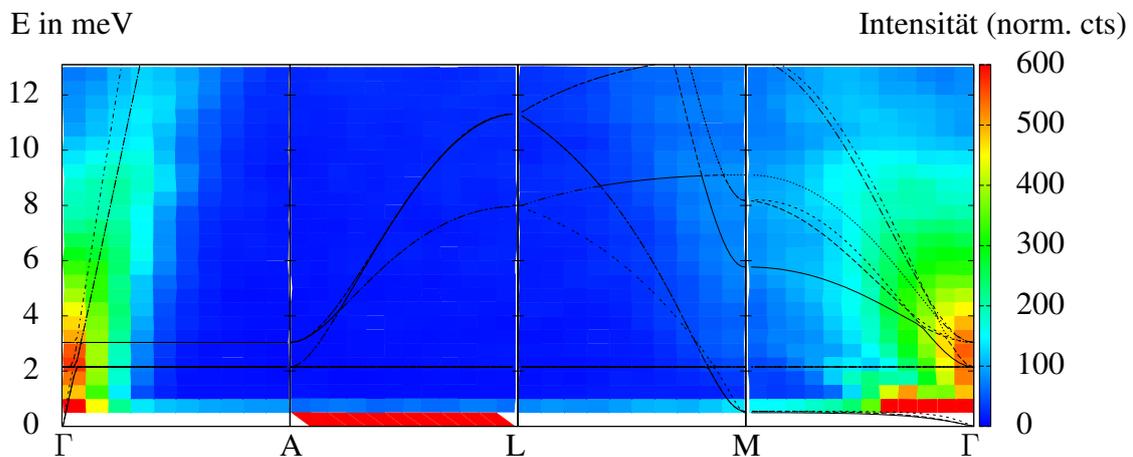


Abbildung 6.10: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl -Ebene 5K. Für ein angenommenes Verhältnis von $J_2/J_1 = 1.506$ und skaliert mit Faktor $J_1 = 32$ meV.

Skalierungsfaktor von unter $J_1 = 30$ meV zurückkommen, die sich bei der Betrachtung der ARCS-Messung noch verstärkt hat. Diese kann etwas gelöst werden, wenn das Verhältnis zwischen J_2 und J_1 , das bisher zu 1.5 gewählt wurde, leicht erhöht wird, um ca. 0.2%. Dies reicht aus, um die in 5.2 beschriebene Erhöhung der flachen Moden hervor zu rufen. Um mit den Daten von PANDA eine gute Übereinstimmung zu erhalten, wird ein Skalierungsfaktor von $J_1 = 32$ meV gewählt. Zu beachten ist, dass die Dispersionsrelationen in c -Richtung immer noch im Γ -Punkt starten und praktisch identisch ist. Damit erhält man die in den Abbildungen 6.9 und 6.10 abgebildeten veränderten Spindispersionsrelationen. Nun ist auch der zuvor zu geringe Abstand der Dispersionsrelationen zu der Intensitätsgrenze zum Bereich niedrigster Intensität überall gleichmäßig.

Durch die Anpassung der theoretisch ermittelten Dispersionen wurden auch gezeigt, dass das Heisenberg nächst-Nachbar Modell die magnetischen Korrelationen in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ recht gut beschreibt und somit ein gutes Verständnis liefert.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde das dreidimensionale Ordnungsverhalten der magnetischen Struktur der Schwedenborgite mittels Monte Carlo Simulationen auf der Grundlage des Modellhamiltonians mit den Austauschwechselwirkungen J_1 und J_2 analysiert. Aufbauend darauf wurde die Spindynamik in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ zum einen mit Neutronenstreuexperimenten zum anderen durch die Berechnung der Spinwellendispersionen untersucht.

Bei der Betrachtung der Phasenübergänge mit Hilfe der Monte Carlo Simulation wurde zunächst das von Khalyavin mit „mean-field“-Theorie bestimmte Phasendiagramm (siehe Abbildung 1.2) überprüft. Dabei zeigte sich eine grundsätzliche Bestätigung der in Abhängigkeit von J_1 und J_2 bestimmten Phasengrenzen (vgl. Abbildung 4.4). Dieses Phasendiagramm ermöglichte eine erste Abschätzung der Wechselwirkungsparameter im Modell für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$, da $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ unterhalb von $T_N = 160$ K eine antiferromagnetisch geordnete Phase aufweist. Darüber hinaus wurde im Bereich der antiferromagnetischen Ordnung der Existenzbereich der Ordnung abhängig von der Temperatur bestimmt (siehe Abbildung 4.10). Im Vergleich zu den Messergebnissen zur Neel-Temperatur ergibt sich hieraus die Möglichkeit der Bestimmung der Austauschwechselwirkungsparameter für ein bekanntes Verhältnis J_2 zu J_1 . Außerdem konnte ein Bereich unvollständiger Ordnung isoliert werden, bei dem die Entropie selbst bei $T \rightarrow 0$ nicht gegen 0 strebt (vgl. Abbildung 4.9). Daraus lässt sich für die Wechselwirkung in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ vermuten, dass das Verhältnis J_2/J_1 oberhalb dieses Bereichs oder zumindest im Übergangsbereich zur vollständigen Ordnung liegt.

Die Spinwellenanregungen in der geordneten Phase wurden dann mit Neutronenstreuexperimenten am Dreiachsenspektrometer PANDA untersucht. Dabei wurde festgestellt, dass die Spinwellen stark gedämpft sind. Mit den bei der MCS gewonnenen Erkenntnissen zur Ordnungsstruktur wurde dann zur theoretischen Beschreibung mit der Spinwellentheorie die Spinwellendispersionen berechnet. Diese zeigen selbst in einer ersten Anpassung eine gute Übereinstimmung mit den Daten von PANDA (vgl. Abbildungen 6.1 und 6.2). Der Vergleich mit den Anregungen bei höheren Energien war aber erst bei den Messdaten vom Flugzeitspektrometer ARCS möglich. An ARCS können die Anregungen für einen großen Bereich des dreidimensionalen Q -Raums aufgenommen werden. Hierbei waren die Anregungen bei höheren Energien messbar, wobei einzelne Anregungszweige bis ungefähr 67 meV nachweisbar waren (vgl. Abbildung 5.11). Eine Anpassung an diese Messdaten zeigt Leider ist der Zugriff auf gerade diese Daten erst seit kurzem gegeben, wodurch hier sicherlich noch Möglichkeiten zur Verbesserung der Daten existieren. Die Vorteile dieser neuen Messmethodik gegenüber dem herkömmlichen Dreiachsenspektrometer ergeben aber auch gerade die Schwierigkeiten bei der Auswertung, so ist es notwendig die bisher entwickelte Software sowohl in Punkto Verarbeitungsgeschwindigkeit als auch Funktionalität weiter zu optimieren. Sehr wichtig wäre auch, dass die bisherigen

Möglichkeiten verstärkt auf die Untersuchung von dreidimensionalen Kristallstrukturen ausgelegt werden. Eine Prozedur zur Kombinationen vieler Brillouizonen wäre z.B. ein wichtiger Punkt. Bei der Anpassung der Ergebnisse der Spinwellenrechnung an die Messdaten von ARCS, zeigte sich, dass das bisherige Modell zwar die prinzipielle Struktur wiedergibt, aber viele Details wie die Anregungslücken in den berechneten Spinwellendispersionen nicht den experimentellen Daten entsprechen.

Aber auch die Ergebnisse der Spinwellenrechnung an sich gaben Aufschluss über ein sehr komplexes Verhalten der Spinwellendispersionen. So wurde bei deren Untersuchung entartete Zweige bei einer Energie von 0 gefunden und zudem, dass selbst kleine Abweichung der Austauschwechselwirkungen vom Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ zu starken Veränderungen in der Struktur der Spindispersionen führen. So bewirkt eine Veränderung zu kleineren Verhältnissen ($J_2/J_1 < 1.5$), dass die akustischen Zweige der Spinwellendispersionen zusammenfallen. Das heißt, dass eine stabile Ausbreitung der Spinwelle nur noch in der c-Richtung statt findet (vgl. Abbildung 5.24), wohingegen in der $hk0$ -Ebene verstärkt imaginäre Lösungen für die Spinwellenzweige auftreten und man so von gedämpften Spinwellenzweigen sprechen kann (vgl. Abbildung 5.23). Das weist auf eine mangelnde Stabilität des Grundzustands bei kleineren Verhältnissen hin. Dieses deckt sich zudem mit den Erkenntnissen aus der MCS (vgl. Abbildung 4.9). Eine Erhöhung des Verhältnisses ($J_2/J_1 > 1.5$) führt dann zu einer Aufhebung der entarteten Nullenergiemoden und zu einer Verschiebung der Spinwellendispersionen im Gesamten zu höheren Energien (vgl. Abbildung 5.25). Interessanterweise bilden die für leicht erhöhte Verhältnisse berechnete Spinwellendispersionen die an PANDA gemessene Spinwellenanregungen besonders gut nach (vgl. Abbildungen 6.9 und 6.10). Dieses Verhalten bedarf sicherlich noch weiterer Betrachtungen.

Die anhand der Betrachtung der berechneten Spinwellendispersionen gewonnenen Anpassungen ergaben ein Verhältnis von $J_2/J_1 = 1.506$ mit einer Austauschwechselwirkung in der Ebene von $J_1 = 32$ meV. Daraus lässt sich abschließend feststellen, dass die magnetischen Korrelationen in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ mit dem gewählten Heisenberg nächst-Nachbar Modell gerade in der $hk0$ -Ebene gut beschrieben werden können und die Ergebnisse aus den verschiedenen Methoden (Curie-Weiss: $J_{\text{eff}} \approx -35$ meV, MCS: $J_1 \approx -28$ meV und Spinwellenrechnung: $J_1 = -32$ meV) zur Bestimmung der Austauschwechselwirkung gut zueinander passen.

In dieser Arbeit wurde deutlich, dass die Erweiterung der Spinwellenrechnung um anharmonische Ordnungen ein wichtiger nächster Schritt beim Verständnis der stark gedämpften magnetischen Kopplung in $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ ist. Bei der Bestimmung der Austauschwechselwirkungen wurde diesen sicherlich die richtige Größenordnung zugeordnet. Bei dem Versuch einer genauen Nachbildung der gemessenen Spinwellenanregungen zeigen sich aber auch die Grenzen des Modells, so sind hierfür vermutlich weitere Wechselwirkungen zu berücksichtigen. Dies kann durch die Weiterentwicklung der Programmstruktur zur Simulation von Spinwellen unterstützt werden. Letztlich ist aber vor allem die Entwicklung neuer Funktionalitäten innerhalb des Programms „horace“ unabdingbar, damit für Vergleiche zwischen Theorie und Messung Messdaten in ausreichender Qualität vorhanden sind.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich ganz herzlich bei allen Mitarbeitern des JCNS-2 und PGI-4 bedanken. Zum einen für die bereitwillige Hilfe zu jeder Zeit, aber gerade auch für die freundliche Aufnahme. Diese Diplomarbeit würde es nicht geben, hätte ich nicht von vielen Seiten Unterstützung bekommen. Im besonderen möchte ich danken:

Dr. Werner Schweika für die großartige Betreuung, für immerwährende Bereitstellung seines Erfahrungsschatzes, aber vor allem auch für das richtige Maß an Führung und Platz zur Entwicklung von Eigeninitiative.

Prof. Dr. Thomas Brückel für die Ermöglichung der aktiven Teilhabe am aktuellen Forschungsgeschehen.

Prof. Dr. Uwe Klemradt für die Übernahme der Zweitkorrektur.

Dr. Lars Fritz für die tolle Unterstützung beim Verständnis der Spinwellentheorie und bei der Entwicklung der Spinwellenrechnung.

Dr. Martin Valldor für die perfekte Probenherstellung.

Den Instrumentverantwortlichen Doug Abernathy und Enrico Faulhaber für eine Unterstützung, die über das zu Erwartene hinaus ging. Ausdrücklich möchte ich der TU Dresden und dem Helmholtz Zentrum Berlin für Materialien und Energie GmbH für den Aufbau und den Betrieb des PANDA-Spektrometers danken.

Artur Glavic für die Hilfe bei verschiedensten Problemen programmiertechnischer Art, sei es Python, Latex oder Gnuplot.

Erik Rosén für die Mithilfe beim Zurechtfinden sowohl im Thema als auch im Forschungszentrum.

Michael Hell für die Diskussionen über theoretische Kniffligkeiten.

Dr. Alexander Weber für die Bereitstellung von dringend notwendigen Rechnerkapazitäten.

IT-Abteilungen, vor Ort, an der SNS und an ISIS für Installations- und Konfigurationsanleitungen, ohne die manches Analyseprogramm heute noch nicht funktionieren würde.

Rebecca Sohn und ihrer Familie für die seelische Unterstützung in stressigen Phasen und mühselige Korrekturarbeiten.

Meiner Familie für ihren Beistand und Unterstützung nicht nur im letzten Jahr.

Meinen Büromitbewohnern für die notwendige Kurzweil an grauen Tagen.

Anhang A

Literaturverzeichnis

- [ASL⁺11] ABERNATHY, D. L. ; STONE, M. B. ; LOGUILLO, M. J. ; LUCAS, M. S. ; DELAIRE, O. ; TANG, X. ; LIN, J. Y. Y. ; FULTZ, B.: Design and operation of the wide angular-range chopper spectrometer ARCS at the SNS. In: *For submission to the special NIM issue on the Spallation Neutron Source* (2011), S. 29
- [BH10] BINDER, Kurt ; HEERMANN, Dieter W.: *Graduate Texts in Physics*. Bd. 0: *Monte Carlo Simulation in Statistical Physics: An Introduction*. Springer Berlin Heidelberg, 2010 http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-03163-2_1. – ISBN 978-3-642-03163-2. – 10.1007/978-3-642-03163-2
- [BHR⁺10] BRÜCKEL, Th. ; HEGER, G. ; RICHTER, D. ; ROTH, G. ; ZORN, R.: Neutron Scattering - Laboratory Course - Lectures. Zentralbibliothek Verlag, Forschungszentrum Jülich GmbH, 2010
- [BN05] BARTLETT, B. M. ; NOCERA, D. G.: Long-range magnetic ordering in iron jarosites prepared by redox-based hydrothermal methods. In: *Journal of the American Chemical Society* 127 (2005), Juni, Nr. 25, S. 8985–8993
- [CMS08] CASTELNOVO, C. ; MOESSNER, R. ; SONDHI, S. L.: Magnetic monopoles in spin ice. In: *Nature* 451 (2008), Januar, Nr. 7174, S. 42–45. <http://dx.doi.org/10.1038/nature06433>. – DOI 10.1038/nature06433
- [CRZM06] CHAPON, L. C. ; RADAELLI, P. G. ; ZHENG, H. ; MITCHELL, J. F.: Competing magnetic interactions in the extended Kagome system YBaCo₄O₇. In: *Physical Review B* 74 (2006), November, Nr. 17, S. 172401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.74.172401>. – DOI 10.1103/PhysRevB.74.172401
- [CZ09] CHERNYSHEV, A. L. ; ZHITOMIRSKY, M. E.: Spin waves in a triangular lattice antiferromagnet: Decays, spectrum renormalization, and singularities. In: *Physical Review B* 79 (2009), Nr. 14. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.79.144416>. – DOI 10.1103/PhysRevB.79.144416
- [DMM⁺11] DELAIRE, O. ; MA, J. ; MARTY, K. ; MAY, A. F. ; MCGUIRE, M. A. ; DU, M-H. ; SINGH, D. J. ; PODLESNYAK, A. ; EHLERS, G. ; LUMSDEN, M. D. ; SALES, B. C.: Giant anharmonic phonon scattering in PbTe. In: *Nature Materials* 10 (2011), Aug, Nr. 8, S. 614–619. <http://dx.doi.org/10.1038/NMAT3035>. – DOI 10.1038/NMAT3035. – ISSN 1476–1122

- [Els89] ELSER, V: Nuclear Antiferromagnetism in a registered HE-3 solid. In: *Physical Review Letters* 62 (1989), Mai, Nr. 20, S. 2405–2408. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.62.2405>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.62.2405. – ISSN 0031–9007
- [FDW⁺09] FENNELL, T. ; DEEN, P. P. ; WILDES, A. R. ; SCHMALZL, K. ; PRABHAKARAN, D. ; BOOTHROYD, A. T. ; ALDUS, R. J. ; MCMORROW, D. F. ; BRAMWELL, S. T.: Magnetic Coulomb Phase in the Spin Ice Ho₂Ti₂O₇. In: *Science* 326 (2009), Oktober, Nr. 5951, S. 415–417. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1177582>. – DOI 10.1126/science.1177582
- [GDT⁺03] GALASSI, Mark ; DAVIES, Jim ; THEILER, James ; GOUGH, Brian ; JUNGMAN, Gerard ; BOOTH, Michael ; ROSSI, Fabrice: *Gnu Scientific Library: Reference Manual*. Network Theory Ltd., 2003 <http://www.amazon.com/exec/obidos/redirect?tag=citeulike07-20&path=ASIN/0954161734>. – ISBN 0954161734
- [Hor] http://horace.isis.rl.ac.uk/Main_Page
- [ISA] <http://download.nexusformat.org/doc/html/Utilities-DataAnalysis.html>
- [KMMC10] KHALYAVIN, D. D. ; MANUEL, P. ; MITCHELL, J. F. ; CHAPON, L. C.: Spin correlations in the geometrically frustrated RBaCo₄O₇ antiferromagnets: Mean-field approach and Monte Carlo simulations. In: *Physical Review B* 82 (2010), September, Nr. 9, S. 094401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.82.094401>. – DOI 10.1103/PhysRevB.82.094401
- [LP99] LOEWENHAUPT, M ; PYKA, NM: The ultrahigh flux polarized cold neutron spectrometer PANDA of the FRM-II reactor. In: *Journal of Applied Physics* 85 (1999), APR 15, Nr. 8, Part 2a, S. 5145–5147. <http://dx.doi.org/10.1063/1.369105>. – DOI 10.1063/1.369105. – ISSN 0021–8979. – 43rd Annual Conference on Magnetism and Magnetic Materials, MIAMI, FLORIDA, NOV 09-12, 1998
- [MCR⁺09] MANUEL, P. ; CHAPON, L. C. ; RADAELLI, P. G. ; ZHENG, H. ; MITCHELL, J. F.: Magnetic Correlations in the Extended Kagome YBaCo₄O₇ Probed by Single-Crystal Neutron Scattering. In: *Physical Review Letters* 103 (2009), Juli, Nr. 3, S. 037202. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.103.037202>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.103.037202
- [MRR⁺53] METROPOLIS, N. ; ROSENBLUTH, A. W. ; ROSENBLUTH, M. N. ; TELLER, A. H. ; TELLER, E.: Equation of State Calculations By Fast Computing Machines. In: *Journal of Chemical Physics* 21 (1953), Nr. 6, S. 1087–1092
- [PTVF92] PRESS, W.H. ; TEUKOLSKY, S.A. ; VETTERLING, W.T. ; FLANNERY, B.P.: *Numerical recipes in C: The art of scientific computing*. Second Edition. Cambridge University Press, 1992
- [Ram94] RAMIREZ, A. P.: Strongly Geometrically Frustrated Magnets. In: *Annual Review of Materials Science* 24 (1994), S. 453–480

- [Rob07] ROBERT, Julien: *Systèmes magnétiques frustration géométrique : approches expérimentale et théorique*, l'Université Joseph Fourier – Grenoble 1, Diss., october 2007
- [Ros11] ROSÉN, Erik: *Magnetische Eigenschaften und Spinkorrelationen in Co- und Fe-basierten Swedenborgiten*, Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen, Diplomarbeit, Februar 2011
- [Sac92] SACHDEV, S.: Kagome-lattice and Triangular-lattice Heisenberg Antiferromagnets - Ordering From Quantum Fluctuations and Quantum-disordered Ground-states With Unconfined Bosonic Spinons. In: *Physical Review B* 45 (1992), Juni, Nr. 21, S. 12377–12396
- [Sch10] SCHWEIKA, W.: XYZ-polarisation analysis of diffuse magnetic neutron scattering from single crystals. In: *Polarized Neutrons and Synchrotron X-rays For Magnetism Conference 2009* 211 (2010), S. 012026. <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/211/1/012026>. – DOI 10.1088/1742-6596/211/1/012026
- [SEM⁺11] STEWART, J. R. ; EHLERS, G. ; MUTKA, H. ; FOUQUET, P. ; PAYEN, C. ; LORTZ, R.: Spin dynamics, short-range order, and spin freezing in $\text{Y}_{0.5}\text{Ca}_{0.5}\text{BaCo}_4\text{O}_7$. In: *Physical Review B* 83 (2011), Januar, Nr. 2, S. 024405. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.83.024405>. – DOI 10.1103/PhysRevB.83.024405
- [SLE⁺06] SCHNEIDEWIND, A. ; LINK, P. ; ETZDORF, D. ; SCHEDLER, R. ; ROTTER, M. ; LOEWENHAUPT, M.: PANDA—first results from the cold three-axes spectrometer at FRM-II. In: *Physica B: Condensed Matter* 385-386 (2006), Nr. Part 2, 1089 - 1091. <http://dx.doi.org/DOI:10.1016/j.physb.2006.05.374>. – DOI DOI: 10.1016/j.physb.2006.05.374. – ISSN 0921–4526. – Proceedings of the Eighth International Conference on Neutron Scattering
- [SP09] STANCIL, Daniel D. ; PRABHAKAR, Anil: *Quantum Theory of Spin Waves*. Springer US, 2009. – 33–66 S. http://dx.doi.org/10.1007/978-0-387-77865-5_2. – ISBN 978–0–387–77865–5
- [Squ78] SQUIRES, G. L.: *Introduction to the theory of thermal neutron scattering*. Cambridge University Press, 1978
- [SVL07] SCHWEIKA, W. ; VALLDOR, M. ; LEMMENS, P.: Approaching the ground state of the kagome antiferromagnet. In: *Physical Review Letters* 98 (2007), Februar, Nr. 6, S. 067201. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.98.067201>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.98.067201
- [SYM⁺06] SODA, M. ; YASUI, Y. ; MOYOSHI, T. ; SATO, M. ; IGAWA, N. ; KAKURAI, K.: Magnetic structure of YBaCo_4O_7 with kagome and triangular lattices. In: *Journal of the Physical Society of Japan* 75 (2006), Mai, Nr. 5, S. 054707. <http://dx.doi.org/10.1143/JPSJ.75.054707>. – DOI 10.1143/JPSJ.75.054707
- [TKM⁺06] TABATA, Y. ; KADOWAKI, H. ; MATSUHIRA, K. ; HIROI, Z. ; ASO, N. ; RES-SOUCHE, E. ; FAK, B.: Kagome ice state in the dipolar spin ice $\text{Dy}_2\text{Ti}_2\text{O}_7$. In: *Physical Review Letters* 97 (2006), Dezember, Nr. 25, S. 257205. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.257205>

doi.org/10.1103/PhysRevLett.97.257205. – DOI 10.1103/PhysRevLett.97.257205

- [Tou77] TOULOUSE, G: Theory of frustration Effect in Spin-Glasses. In: *Communications on Physics* 2 (1977), Nr. 4, S. 115–119
- [VA02] VALLDOR, M. ; ANDERSSON, M.: The structure of the new compound YBa-Co4O7 with a magnetic feature. In: *Solid State Sciences* 4 (2002), Juli, Nr. 7, S. 923–931
- [VBCC80] VILLAIN, J. ; BIDAUX, R. ; CARTON, J. P. ; CONTE, R.: Order As An Effect of Disorder. In: *Journal De Physique* 41 (1980), Nr. 11, S. 1263–1272
- [VSS09] VALLDOR, M. ; SANDERS, Y. ; SCHWEIKA, W.: High spin frustration in Co based Swedenborgites. In: *Highly Frustrated Magnetism 2008 (hfm 2008)* 145 (2009), S. 012076. <http://dx.doi.org/10.1088/1742-6596/145/1/012076>. – DOI 10.1088/1742-6596/145/1/012076
- [Wag86] WAGNER, Max: Unitary Transformations in Solid State Physics. In: AGRANOVICH, V.M. (Hrsg.) ; MARADUDIN, A.A. (Hrsg.): *Modern Problems in Condensed Matter Sciences* Bd. 15. North-Holland Physics Publishing, 1986
- [Wan50] WANNIER, G. H.: Antiferromagnetism - The Triangular Ising Net. In: *Physical Review* 79 (1950), Nr. 2, S. 357–364. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRev.79.357>. – DOI 10.1103/PhysRev.79.357. – ISSN 0031-899X
- [Zhi08] ZHITOMIRSKY, M. E.: Octupolar ordering of classical kagome antiferromagnets in two and three dimensions. In: *Physical Review B* 78 (2008), September, Nr. 9, S. 094423. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.78.094423>. – DOI 10.1103/PhysRevB.78.094423

Anhang B

Zusätzliche Abbildungen

In diesem Kapitel sind zusätzliche Bilder aufgeführt, die den Textfluss unnötig stören würden. Die entsprechenden Beschreibungen finden sich in den vorhergegangenen Kapiteln.

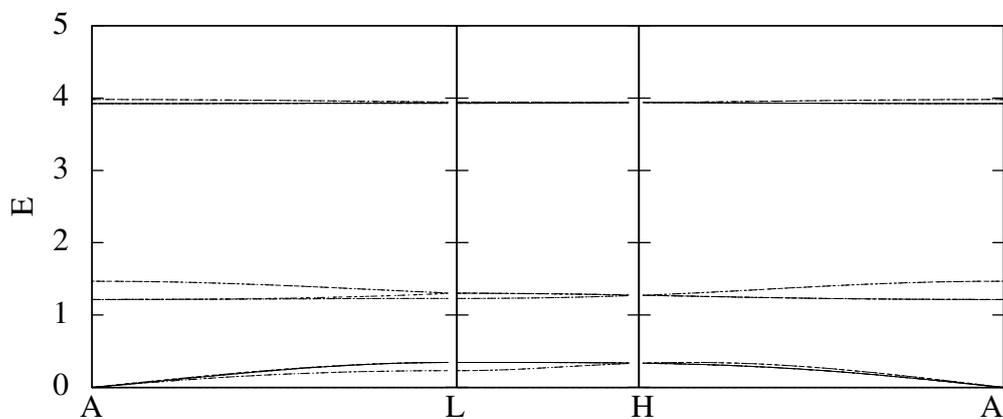


Abbildung B.1: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hkc-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$

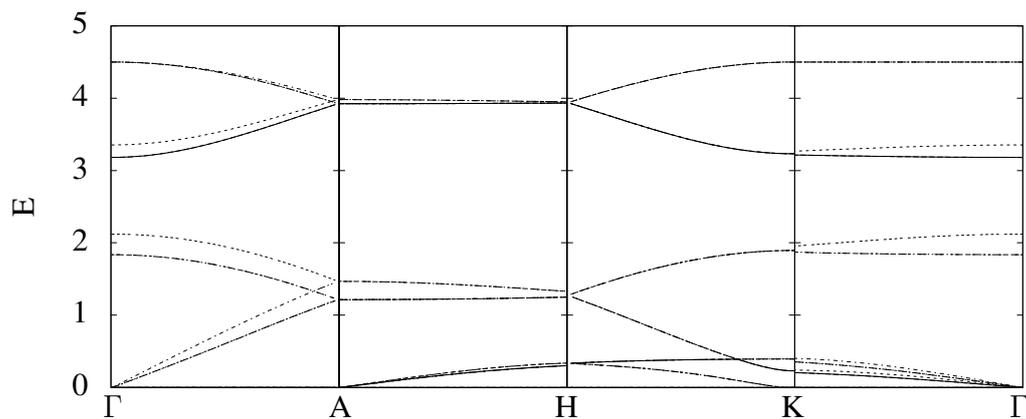


Abbildung B.2: Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der h0l-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$

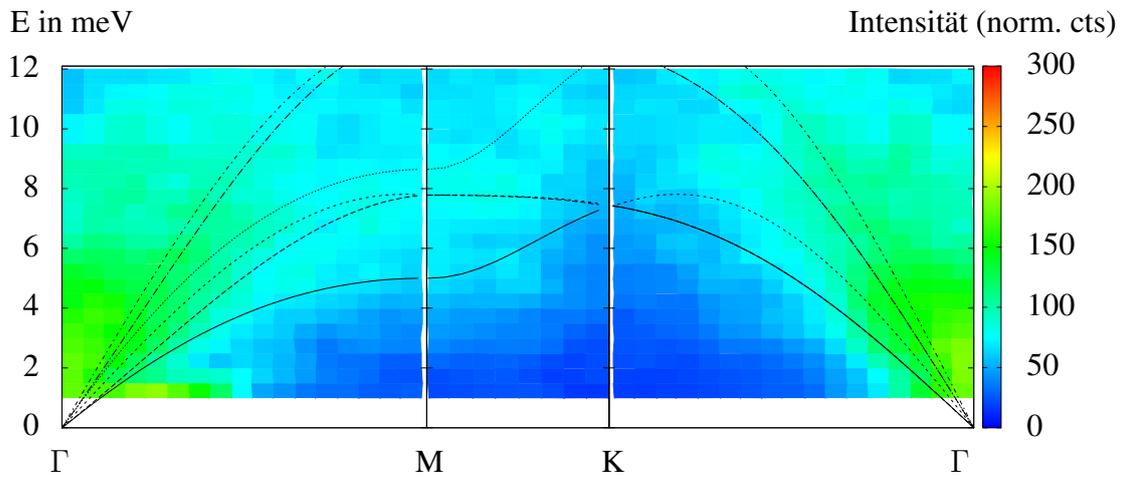


Abbildung B.3: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 32$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der $hk0$ -Ebene bei 5K

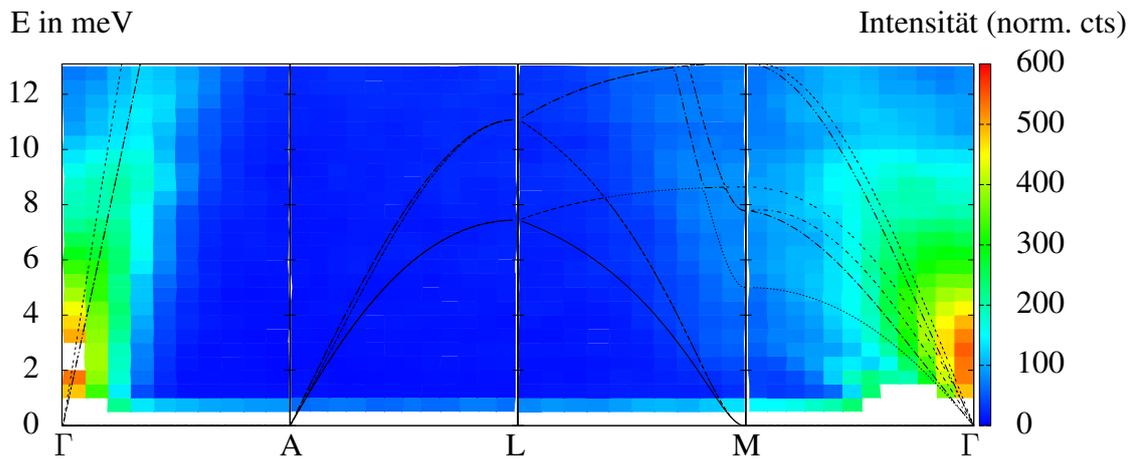


Abbildung B.4: Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 32$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl -Ebene bei 5K

Anhang C

Abbildungsverzeichnis

1.1	Strukturbild der magnetischen Ionen im Schwedenborgit. Unterscheidung nach der Wechselwirkung nach der in der Ebene J_1 zwischen zwei roten Ionen und aus der Ebene J_2 zwischen einem roten und einem blauen Ion. Die blauen Ionen bilden die trigonale Ebene und die roten die Kagomeebene. Nach [KMMC10].	7
1.2	Phasendiagramm unter Abhängigkeit von den Austauschwechselwirkungsparametern J_1 und J_2 . Kennzeichnung der Art der jeweiligen Ordnung. DS bezeichnet einen ungeordneten Bereich. Nach [KMMC10].	8
1.3	Entsprechend den Verhältnissen simulierte Streubilder und das resultierende Ordnungsverhalten. Aus [KMMC10].	9
2.1	Geometrische Frustration bei einem antiferromagnetischen Dreiecksgitter und Übergang zu einem energieminimierenden Zustand.	14
2.2	Grundzustände beim antiferromagnetisch gekoppelten 2D Kagomegitter und die möglichen Spinbewegungen ohne Energiekosten (gestrichelten Ellipsen) (a) $q = 0$ -Grundzustand (b) $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand	15
2.3	Auswirkung der geometrischen Frustration im Doppeltetraeder bei $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$, nach [KMMC10]	16
2.4	Skizze zur Streuung im Rahmen der Fraunhofer Näherung (Aus [Ros11]).	24
2.5	Der $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand, der für $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ ermittelt wurde [Ros11]	28
2.6	Vergleich der Ordnungsparameter für simuliertes Abkühlen und Aufheizen bei verschiedenen Verhältnissen J_2/J_1 .	30
3.1	Die beiden verwendeten Kristalle, oben hhl-Kristall und darunter der hk0-Kristall. Hier mit den Halterungen für das Dreiachsenspektrometer PANDA.	35
3.2	Schematischer Aufbau eines Dreiachsenspektrometers. Gekennzeichnet sind die drei Rotationsachsen. Aus [Ros11]	36
3.3	Einbau der Probe am Experiment Panda. (a) Umhüllung der Probe und deren Halterung mit Aluminium, (b) Montage am Probenstab und Sicherstellung der Zentrierung der Probe, (c) Ansicht des Experiments aus der Experimentierkabine,	37
3.4	Beispielmessung in der hhl-Ebene. (a) Darstellung jedes einzelnen Messpunkts. Die Richtung der Messungen läuft entlang den Linien von Γ nach M. (b) Intensitätskarte der Messung des hhl Kristalls bei 5K. Markiert ist der Einfluss des Auflösungsellipsoid.	38
3.5	Aufbau des Flugzeitspektrometers ARCS. Aus [ASL ⁺ 11] (a) Schematischer Aufbau. Gekennzeichnet sind die einzelnen Komponenten (b) Aufnahme der Detektorbänke.	39

3.6	Einbau des Kristalls in das Experiment ARCS. (a) Befestigung des Kristalls innerhalb eines Behälters aus Aluminium, (b) Montage des Behälters am Unter- teil des Kryostaten, (c) Versenkung des Kryostaten in der Probenvakuumkammer.	40
3.7	Schema zum Zusammenhang von Eingangs- (E_i), Ausgangsenergie E_f und \mathbf{k} . Die angedeutete Drehung des Paraboloiden entspricht dem Messvorgang am Flugzeitspektrometer ARCS.	41
3.8	Q -Raumabdeckung für die Messung am $hk0$ -Kristall bei geringer Integration in der Energie $[0,10]$ meV. (a) $hk0$ -Ebene aus der Messung des $hk0$ -Kristalls. In grün sind die Schnittkreise dargestellt, auf denen für eine Winkeleinstellung in der Ebene gemessen wird. (b) $h0l$ -Ebene aus der Messung des $hk0$ -Kristalls. . .	42
3.9	Darstellung der mit Isaw ausgewerteten Lauedaten. Rot sind die renormierten Messpunkte. Weiß markiert sind die gefundenen Peaks und gelb die mit der gefundenen Elementarzelle indizierten Peaks.	43
4.1	Vergleich der Korrelationen bei unterschiedlicher Anzahl von Monte Carlo Schrit- ten pro Platz (a) Entwicklung des Ordnungsparameters bei einem Monte Carlo Schritt pro Platz (b) Entwicklung des Ordnungsparameters bei 150 Monte Carlo Schritten pro Platz	46
4.2	Beispiel für das Verhalten der Parameter an der Phasengrenze. Hier für $T/ J_1 =$ 0.01 und $J_1 = -1.0$. (a) Variation des Ordnungsparameters in J_2 und System- größe (b) Variation der Suszeptibilität in J_2 und Systemgröße	47
4.3	Beispiel zur Bestimmung der Phasenübergang in J_2 mittels der Kumulante. Hier für $T/ J_1 = 0.01$ und $J_1 = -1.0$	47
4.4	Phasendiagramm für J_2 gegen J_1 bei $T/J_1 = 0.01$. Den einzelnen Phasen sind ihre typischen Streubilder (Punkte bei exakt $ \mathbf{Q} = 0$ nicht berechnet) zugeord- net. Besonders markiert ist die vermutete Einordnung von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Die roten Linien markieren die mittels der Suszeptibilität bestimmten Phasengren- zen. Die rot gestrichelten Linien stammen aus der Bestimmung von Phasengren- zen mittels der Kummulante und des Ordnungsparameters. In grün gestrichelt sind zum Vergleich die „mean-field“ Ergebnisse von Khalyavin eingetragen. Der Fehler auf die eingetragenen Messpunkte wird vor allem bestimmt durch die Abstände der Simulationspunkte und liegt somit im Bereich $\sigma_{J_2} = 0.1$	49
4.5	Energiepotential bei der Auslenkung $\Delta\theta$ eines Spins aus dem $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand in der coplanaren Ebene (vgl. Abbildung 5.17) für verschiedene Verhältnisse von J_2 zu J_1 . Berechnet mit dem abgewandelten nächst-Nachbar Modell. Rot: Kagomespin. Grün: trigonaler Spin.	50
4.6	Vergleich der simulierten Streuung für die Verhältnisse $J_2/J_1 = 1.0, 1.25$ und 1.5 mit der gemessenen magnetischen Streuung in z -Richtung aus [Ros11] (v.l.n.r).	51
4.7	Beispiel für das Verhalten der Parameter beim Phasenübergang, von geordnet nach ungeordnet. Hier für $J_1 = -1.0$ und $J_2 = -1.5$. (a) Variation des Ord- nungsparameters in Temperatur und Systemgröße (b) Variation der Suszeptibi- lität in Temperatur und Systemgröße	52
4.8	Beispiel zur Bestimmung der Phasenübergangstemperatur mittels der Kumu- lante. Vergrößerung zeigt den Schnittpunkt. Hier für $J_1 = -1.0$ und $J_2 = -1.5$.	53

4.9	Maximal erreichter Ordnungsparameter für verschiedene Verhältnisse J_2/J_1 . Die rote Linie markiert die erreichte Obergrenze. Die errechneten Fehlerbalken sind durch die hohe Statistik unterschätzt. Punkte gleicher Art entsprechen Simulationen bei gleicher Temperatur. T in Einheiten von J_1	53
4.10	Phasendiagramm für T/J_1 gegen J_2/J_1 für $J_1, J_2 < 0$. Besonders markiert sind die Bereiche, in dem der Grundzustand ungeordnet ist und in dem das System nur unvollständig ordnet.	54
5.1	Ausgewählte Peaks für die Spinwellenanregung. Messrichtungen sind rot markiert. Die hier definierten Richtungsvektoren entsprechen den Richtungen der Basisvektoren der strukturellen Zelle. Für den Zusammenhang zwischen struktureller und magnetischer Zelle sowie eines dreidimensionalen Bildes der Brillouinzone siehe Abbildung E.3. (a) Messung um den Peak $5/3 \ 2/3 \ 0$. (b) Messung um den Peak $1/3 \ 1/3 \ 2$	58
5.2	Gemessene Magnonenanregungen für den hk0-orientierten Kristall bei 5 K . . .	59
5.3	Gemessene Magnonenanregungen für den hk0-orientierten Kristall bei 60 K. Bei der rot schraffierten Fläche wurde ein Punkt nicht gemessen.	59
5.4	Gemessene Magnonenanregungen für den hhl-orientierten Kristall bei 5 K . . .	59
5.5	Gemessene Magnonenanregungen für den hhl-orientierten Kristall bei 60 K . . .	60
5.6	Anisotropie der Spinwellenanregung am Γ -Punkt (a) Richtung: Γ nach A, Schrittweite $\Delta\mathbf{Q} = (0 \ 0 \ 0.05)$ (b) Richtung: Γ nach M, Schrittweite $\Delta\mathbf{Q} = (0.014 \ 0.014 \ 0)$	60
5.7	Übersicht über die gemessenen Daten am hk0-Kristall bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie. Dazu folgende Schnitte durch die Daten der Messung: (a) Gemessener Bereich der hk0-Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen grün dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Gemessener Bereich senkrecht zur hk0-Ebene. Integration des Energiebereiches wieder nahe der elastischen Ebene.	61
5.8	Übersicht über die gemessenen Daten am hhl-Kristall bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie. Durch die nicht perfekte Ausrichtung des Kristalls passen die Indizes nicht genau zur Orientierung. Dazu folgende Schnitte durch die Daten der Messung: (a) Gemessener Bereich der hhl-Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen grün dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Gemessener Bereich senkrecht zur hhl-Ebene. Integration des Energiebereiches wieder nahe der elastischen Ebene.	62
5.9	Anregungsspektrum in $[1 \ 0 \ 0]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Betrachtung möglicher Anregungszweige und Intensität aus Phononenstreuung bei $h < -6$. Aus der Messung des hk0-Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.	63
5.10	Skalierung der Intensität mit $1/Q^2$ zur Überprüfung der Phononenanregung. Vollständige Integration in den zur $[1 \ 0 \ 0]$ -Richtung senkrechten Richtungen nach Skalierung. Aus der Messung des hk0-Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.	64

5.11	Anregungsspektrum in $[00l]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Beobachtung steiler Spindispersionsanregungen um $l = 0$ und Phononenanregung für $l < -10$. Aus der Messung des hhl-Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.	64
5.12	Anregungsspektrum in $[100]$ -Richtung bei vollständiger Integration in den dazu senkrechten Richtungen. Zur Betrachtung der Anregungen bei Energien bis 140 meV. Aus der Messung des hk0-Kristalls bei 5 K und mit einer Eingangsenergie von 150meV.	65
5.13	Ausschnitt der viermal gefalteten hk0-Ebene für Bereiche nahe dem Ursprung zur Bestimmung der zunehmenden Unschärfe der Braggpeaks. Aus der Messung des hk0-Kristalls bei 5 K und 80 meV Eingangsenergie.	66
5.14	Betrachtung der Messung des hk0-Kristalls bei 170 K und 150 meV Eingangsenergie. (a) Gemessener Bereich der hk0-Ebene. Entsprechend dem Intensitätscode sind die nuklearen Peaks rot und die umliegenden magnetischen hellblau dargestellt. Dazu Integration des Energiebereiches nahe der elastischen Ebene. (b) Anregungsspektrum in $[100]$ -Richtung, bei vollständiger Integration in den übrigen Richtungen zur Überprüfung der Existenz von magnetischen und phononischen Anregungen.	67
5.15	Skalierung der Intensität mit $1/Q^2$ zur Überprüfung der Phononenanregung. Vollständige Integration in den zur $[100]$ -Richtung senkrechten Richtungen nach Skalierung. Aus der Messung des hk0-Kristalls bei 170 K und 150 meV Eingangsenergie.	68
5.16	Elementarzelle des $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand mit nummerierten Spins. Die roten und blauen Spins liegen auf separaten Kagomeebenen und die grünen auf den trigonalen. Dabei ist die Stapelung innerhalb der Elementarzelle in c-Richtung: blau, grün, rot, grün.	69
5.17	Die Winkel zwischen ausgewählten benachbarten Spins im $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand	71
5.18	Definition der Vektoren zu den umliegenden Elementarzellen	73
5.19	Beispielplots für die Beschaffenheit der Spinwellendispersionen bei niedrigen Energien in der hk0-Ebene. (a) 3D-Plot des Eigenwerts 34. (b) 3D-Plot des Eigenwerts 39.	74
5.20	Beispielplots für die Beschaffenheit der Spinwellendispersionen bei niedrigen Energien in der hhl-Ebene. (a) 3D-Plot des Eigenwerts 31. (b) 3D-Plot des Eigenwerts 37.	75
5.21	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hk0-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.5$	76
5.22	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.5$	76
5.23	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hk0-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.4$	77
5.24	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.4$	78
5.25	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hk0-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.6$	78
5.26	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hhl-Ebene für ein Verhältnis $J2/J1 = 1.6$	79

5.27	Vorläufiges Ergebnis der Spinwellensimulation. Anregungsspektrum in Q_x -Richtung bei bestmöglicher Auflösung.	80
6.1	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hk0-Ebene bei 5K	82
6.2	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K	82
6.3	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hk0-Ebene bei 5K mit logarithmischer Auftragung der Intensität	82
6.4	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K mit logarithmischer Auftragung der Intensität	83
6.5	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hk0-Ebene bei 5K gewichtet linear mit der Energie	83
6.6	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 35$ meV zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K gewichtet linear mit der Energie	84
6.7	Anpassung der Moden in $[001]$ -Richtung jeweils an das Anregungsspektrum aus Messung von ARCS am hhl-Kristall bei 5 K und einer Eingangsenergie von 80 meV. Mit den Skalierungsfaktoren $J_1 = 35$ meV (aus Panda), $J_1 = 22$ meV (Anpassung an die niederenergetischen Moden) und $J_1 = 14$ meV (Anpassung an die höherenergetischen Moden) (v.l.n.r.).	84
6.8	Vergleich der berechneten Zustandsdichte der mit $J_1 = 32$ meV skalierten Dispersionsrelationen (rechts) mit dem Anregungsspektrum in $[100]$ -Richtung aus der Messung am hk0-Kristall bei 5 K und 150 meV Eingangsenergie.	85
6.9	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hk0-Ebene bei 5K. Für ein angenommenes Verhältnis von $J_2/J_1 = 1.506$ und skaliert mit Faktor $J_1 = 32$ meV.	86
6.10	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl-Ebene 5K. Für ein angenommenes Verhältnis von $J_2/J_1 = 1.506$ und skaliert mit Faktor $J_1 = 32$ meV.	86
B.1	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der hkc-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$	95
B.2	Berechnete Dispersionsrelationen entlang den Symmetrierichtungen der h0l-Ebene für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$	95

B.3	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 32 \text{ meV}$ zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der $hk0$ -Ebene bei 5K	96
B.4	Die berechneten Schwerpunkte der Magnonendispersionen für ein Verhältnis $J_2/J_1 = 1.5$ und skaliert mit $J_1 = 32 \text{ meV}$ zusammen mit der gemessenen Magnonenanregung für die Symmetrierichtungen der Brillouinzone in der hhl -Ebene bei 5K	96
D.1	Verhalten der Suszeptibilität beim Antiferromagneten (a) (b)	104
E.1	Aus der Heidimessung ermittelte Elementarzelle von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Die Tortendiagramme geben die Besetzungswahrscheinlichkeiten an. (a) Dreidimensionale Ansicht der strukturellen Elementarzelle (b) Von oben Ansicht der strukturellen Elementarzelle	108
E.2	Gegenüberstellung der strukturellen und magnetischen Brillouinzone. (a) Streubild der nuklearen Streuung in der $hk0$ -Ebene (b) Magnetische Streuung in y -Richtung in der $hk0$ -Ebene.	109
E.3	Definition der strukturellen und magnetischen Brillouinzone: (a) Strukturelle Zelle im reziproken Raum (schwarz) mit magnetischen Basisvektoren a_1 und a_2 und magnetische Zelle (grün) mit Basisvektoren b_1 und b_2 (aus [Ros11]), (b) Generelle Brillouinzone mit den Punkten hoher Symmetrie.	109
G.1	Temperaturabhängigkeit der magn. Streuintensität des Peaks bei $1/3 \ 1/3 \ 0$ am $hk0$ -Kristall. Die Graphen sind zeitlich sortiert.	114
G.2	Temperaturabhängigkeit der magn. Streuintensität des Peaks bei $1/3 \ 1/3 \ 0$ am hhl -Kristall. Die Graphen sind zeitlich sortiert.	114
G.3	Temperaturabhängigkeit der Intensität zweier Peaks. Gemessen am $hk0$ -Kristall.	115

Anhang D

Formen des Magnetismus

Die Formen des Magnetismus lassen sich also wie folgt klassifizieren:

Diamagnetismus Materialien, die keine permanent magnetischen Ionen besitzen, reagieren auf ein äußeres Magnetfeld mit einem dem Magnetfeld entgegengesetzt induzierten magnetischen Moment, entsprechend dem Lenz'schen Gesetz. Somit wäre in einem isotropischen Diamagneten eine negative magnetische Suszeptibilität zu erwarten. Diese lässt sich zu

$$\chi_{dia} = -\frac{\mu_0 N q^2}{6m_q} \sum_{i=1}^n \langle r_i^2 \rangle \quad (\text{D.1})$$

bestimmen (Langevin Diamagnetismus). Deutlich wird hier, dass diese temperaturunabhängig ist.

Letztlich besitzt jedes Material einen diamagnetischen Beitrag, aber in Materialien mit permanent magnetischen Ionen ist dieser nur sehr schwach gegenüber der jeweils vorherrschenden Form.

Paramagnetismus Materialien, die zwar permanent magnetische Ionen besitzen, deren Spins ohne äußeren Einfluss aber keine langreichweitige Ordnung ausbilden, sondern zufällig orientiert sind, nennt man paramagnetisch. Hier wird die Wechselwirkung zwischen den Spins durch die thermisch bedingten Schwingungen unterdrückt. Bei Einbringung in ein magnetisches Feld richten sich die Spins entlang des Feldes aus. Dementsprechend ist die magnetische Suszeptibilität für isotropische Paramagneten positiv. Die daraus resultierende Energieerniedrigung wird beschrieben durch die Zeeman Energie $E_{Zeeman} = -\mu \cdot B$. Hierüber lässt sich dann die Suszeptibilität berechnen:

$$\chi_{para} = \frac{\mu_0 N g^2 J(J+1) \mu_B^2}{3k_B T} = \frac{C}{T} \quad (\text{D.2})$$

Dieser Zusammenhang ist als Curie-Gesetz bekannt.

Ferromagnetismus Bei ferromagnetischen Materialien richten sich die magnetischen Spins der permanent magnetischen Ionen unterhalb einer kritischen Temperatur, der Curie-Temperatur T_C , parallel zueinander aus, was in einem entsprechend großen magnetischen Moment resultiert. Das Ausrichten der Spins aneinander liegt in der starken Austauschwechselwirkung begründet. Im Allgemeinen gilt, dass sich das Material in magnetische Domänen aufteilt innerhalb denen die Spins zueinander parallel liegen, solange kein Magnetfeld angelegt wird. An

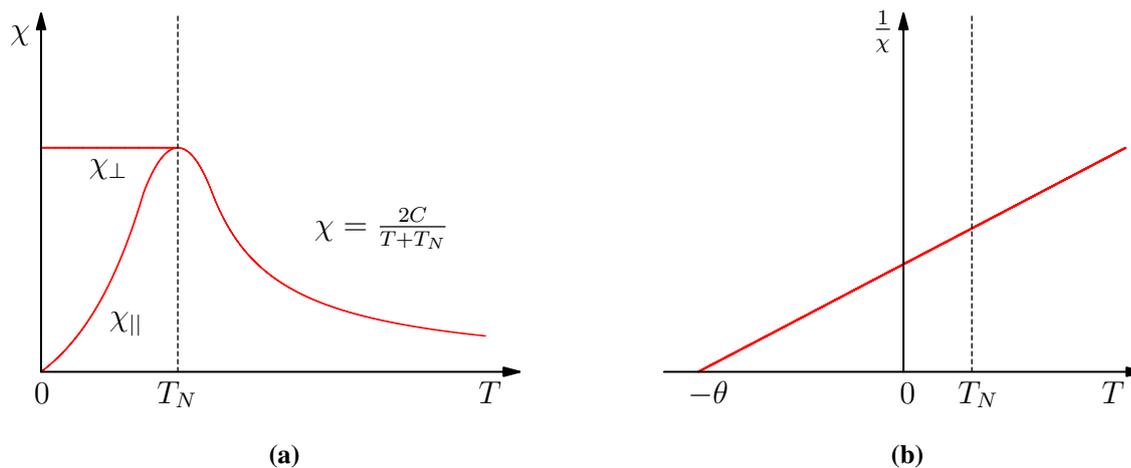


Abbildung D.1: Verhalten der Suszeptibilität beim Antiferromagneten
(a) (b)

den Domänengrenzen jedoch wechselt die Ausrichtung sehr schnell. Durch diese Domänenstruktur wird das erzeugte Gesamtmoment erniedrigt. Wenn nun aber ein äußeres Magnetfeld angelegt wird, dann richten sich die Spins langsam nach dem Magnetfeld aus und die Domänen verschwinden. Also besitzt auch ein Ferromagnet eine positive skalare Suszeptibilität. Um diese herzuleiten betrachtet man ein Molekularfeld H_m , welches zusätzlich zum angelegten Magnetfeld H existiert. Dieses ist proportional zur mittleren Magnetisierung: $H_m = \lambda$. Nach der Molekularfeldtheorie bilden beide Felder zusammen das gesamte Magnetfeld $H_{ges} = H + H_m$. Zusammen mit dem Curie-Gesetz ergibt sich dann das Curie-Weiss-Gesetz:

$$\chi = \frac{C}{T - T_C} \tag{D.3}$$

Dieses ist gültig für kleines H und $T \gg T_C$.

Ferri- und Antiferromagnetismus Bei dieser Form richten sich die Spins der permanent magnetischen Ionen im Material unterhalb einer kritischen Temperatur, der Néeltemperatur T_N , antiparallel zu den benachbarten Spins aus, sodass die langreichweitige Ordnung durch zwei ferromagnetische Untergitter beschrieben werden kann. Wenn die Magnetisierung der beiden Untergitter gleich groß ist, dann spricht man von einem Antiferromagneten, ansonsten von einem Ferrimagneten. Bei Antiferromagneten ist die Suszeptibilität für ein kleines Magnetfeld parallel zu der Spinrichtung sehr klein, erst bei hohen Magnetfeldern beginnen sich die Spins, die zuvor antiparallel zum Magnetfeld standen, entlang dem Magnetfeld auszurichten. Für ein Magnetfeld senkrecht zu den Spins, beginnt die Neuausrichtung aller Spins direkt. Auch hier verhält sich das Material in Bezug auf seine Suszeptibilität oberhalb der kritischen Temperatur wie ein Paramagnet.

Die Berechnung der Suszeptibilität ergibt sich aus der Überlegung, dass man Ferri- und Antiferromagnetismus durch zwei ferromagnetische Untergitter beschreiben kann. Somit werden hier

auch zwei Molekularfelder M_a und M_b eingeführt. Dies führt dann auf:

$$\chi_{ferri} = \frac{M_a + M_b}{H} = \frac{(C_a + C_b)T - 2\lambda_a b C_a C_b}{T^2 - T_C^2}$$

Diese vereinfacht sich für den Antiferromagneten mit $C_a = C_b = C$ zu:

$$\chi_{af} = \frac{2C}{T + T_N} \propto \frac{1}{T - \theta} \quad (\text{D.4})$$

Wobei θ die Weiss-Temperatur ist.

Anhang E

Grundzüge der Kristallographie und diesbezügliche Ergebnisse

In der Festkörperphysik bedient man sich bei der Beschreibung von Materialien mit dreidimensionalen periodischen Atomstrukturen der Kristallographie. In dieser wird die Periodizität des Kristalls durch das Kristallgitter beschrieben. Die kleinste Einheit aus der man den Kristall aufbauen kann, ist die Elementarzelle. Diese wird aufgespannt von den drei linear unabhängigen Basisvektoren \mathbf{a}_1 , \mathbf{a}_2 und \mathbf{a}_3 . Diese Elementarzellen werden unterschieden in verschiedene Kristallsysteme entsprechend ihrer Symmetrie zB. kubisch, hexagonal oder orthorombisch (siehe Abbildung). Diese 7 primitive Einheitszellen des Kristallsystems bilden zusammen mit weiteren 7 zentrierten Kristallsystemen (besitzen mehr als 1 Atom pro Einheitszelle) die 14 Bravaisgittertypen. Durch verschiedene Symmetrieeoperationen lassen sich davon ausgehend 230 sogenannte Raumgruppen unterscheiden. Diese bestimmen die Ausrichtung der Basisvektoren zueinander. In dem Gitter des jeweiligen Kristalls lassen sich die einzelnen Atome \mathbf{a} (allgemeiner spricht man von Gitterpunkten, da an der Stelle des Atoms auch komplexe Systeme sein können zB. Moleküle) nun unter Verwendung der Basisvektoren adressieren:

$$\mathbf{a} = u\mathbf{a}_1 + v\mathbf{a}_2 + w\mathbf{a}_3,$$

wobei u, v und w natürliche Zahlen sind. Der Gitterpunkt wird dann in diesem Kristallsystem mit " uvw " bezeichnet und die entsprechende Richtung mit " $[uvw]$ ". Eine Gitterebene wird definiert durch drei Gitterpunkte, da diese jedoch keine ausgezeichnete Punkte sind (Translationssymmetrie), werden immer unendlich viele parallele Gitterebenen ausgewählt. Definiert wird diese Gruppe von Gitterebenen durch die Punkte an denen die, vom Ursprung aus gesehen, erste Ebene die Achsen des Koordinatensystems schneidet. Bildet man das gemeinsam kleinste ganzzahlige Vielfache der reziproken Schnittpunkte erhält man die Miller'schen Indizes (hkl) . Eine besondere Form der Elementarzelle ist die Wigner-Seitz-Zelle. Diese besitzt die folgende Konstruktionsvorschrift: 1. ausgehend von dem Atom/Gitterpunkt der Elementarzelle werden Verbindungslinien zu den benachbarten gezogen, 2. werden die Mittelsenkrechten bzw. mittelsenkrechten Ebenen (im dreidimensionalen) gezogen, 3. die Schnittkanten der Ebenen bilden nun die Kanten der Elementarzelle. Geht man nun über in den reziproken Raum entspricht dort der Wigner-Seitz-Zelle die Brillouinzone. Diese also die Ausdehnung der Elementarzelle im reziproken Raum. Untersucht man nun einen Kristall mittels Streuung, dann sind die Symmetrierichtungen der Brillouinzone von besonderer Bedeutung, da diese in Beziehung stehen zu den Symmetrien im Realraum.

Der in dieser Diplomarbeit untersuchte Kristall $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$ wurde die Struktur des Kristalls zuerst mittels Röntgenstreuung untersucht, jedoch kann man bei dieser kaum zwischen

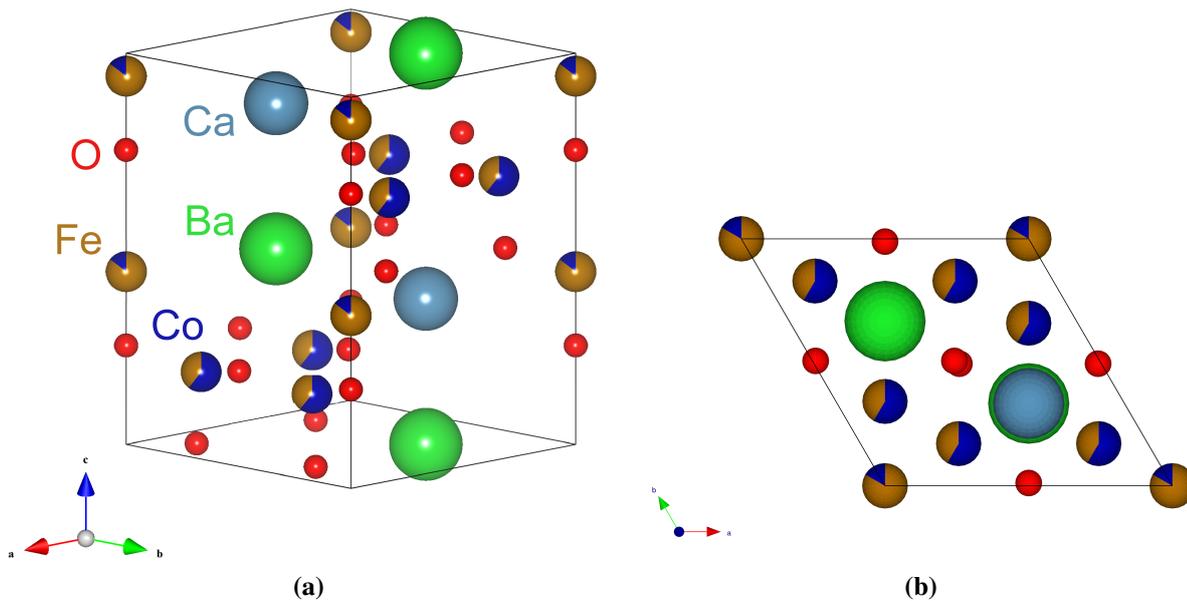
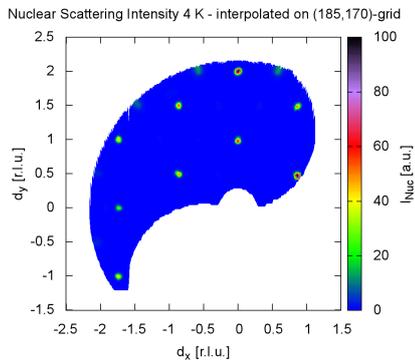


Abbildung E.1: Aus der Heidimessung ermittelte Elementarzelle von $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Die Tortendiagramme geben die Besetzungswahrscheinlichkeiten an.
(a) Dreidimensionale Ansicht der strukturellen Elementarzelle **(b)** Von oben Ansicht der strukturellen Elementarzelle

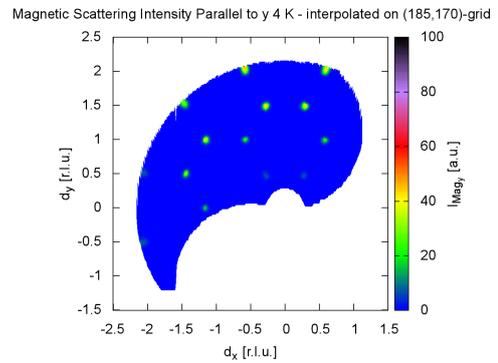
den Elementen Eisen und Cobalt unterscheiden. So wurde dies im Rahmen der Diplomarbeit von Erik Rosén mittels Neutronenstreuung genauer bestimmt (siehe Tabelle E.1) und es ergab sich die strukturelle Zelle in Abbildung E.1, die dazugehörige Brillouinzone besitzt eine hexagonale Symmetrie (vgl. Abbildung E.2a), mit den darauffolgenden Punkten hoher Symmetrie (vgl. Abbildung E.3b). Bei der Untersuchung der $hk0$ -Ebene mit Neutronenstreuung wurde zudem festgestellt, dass die magnetische Zelle ein Drittel so groß ist wie die strukturelle Brillouinzone (vgl. E.2b mit E.2a). Das resultiert aus der Periodizität der Ausrichtung der Spins. Beim $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand zeigt sich, dass die magnetische Elementarzelle 3 mal so groß ist wie die strukturelle (siehe $q = 0$ vs $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$). Somit bestätigt das Ergebnis aus der Neutronenstreuung auch die Annahme des $\sqrt{3} \times \sqrt{3}$ -Grundzustand. Eine schematische Zeichnung zur Anordnung der strukturellen und magnetischen Brillouinonen zeigt Abbildung E.3a. Die Bezeichnungen bezüglich der Punkte hoher Symmetrie sind unabhängig von der Art der Brillouinzone und gelten somit sowohl für die strukturelle als auch magnetische Brillouinzone.

Raumgruppe	$P6_3mc$ (186)
a	6,338 Å
b	6,338 Å
c	10,211 Å
Volumen der Einheitszelle	355,225 Å ³
Formeleinheiten pro EZ	2
molare Masse	518,966 $\frac{g}{mol}$

Tabelle E.1: Zellparameter des $\text{CaBaCo}_2\text{Fe}_2\text{O}_7$. Aus [Ros11]

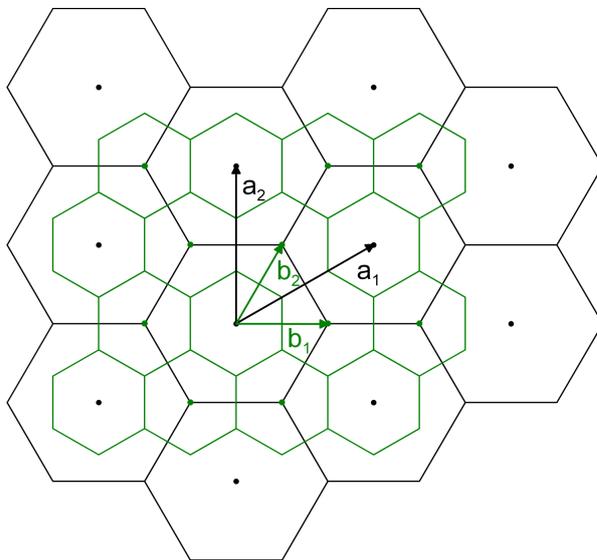


(a)

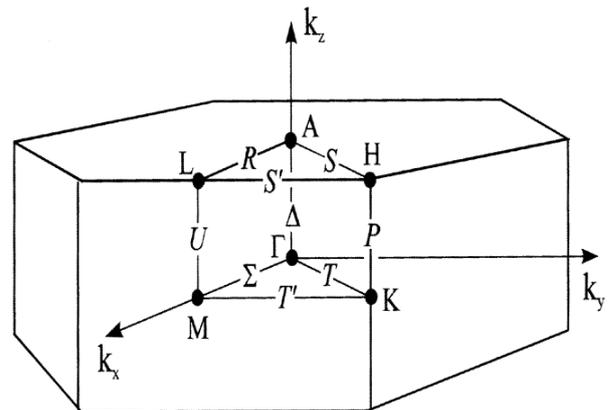


(b)

Abbildung E.2: Gegenüberstellung der strukturellen und magnetischen Brillouinzone.
(a) Streubild der nuklearen Streuung in der $hk0$ -Ebene **(b)** Magnetische Streuung in y -Richtung in der $hk0$ -Ebene.



(a)



(b)

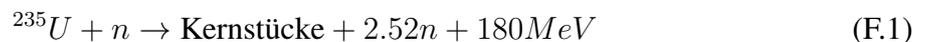
Abbildung E.3: Definition der strukturellen und magnetischen Brillouinzone:
(a) Strukturelle Zelle im reziproken Raum (schwarz) mit magnetischen Basisvektoren a_1 und a_2 und magnetische Zelle (grün) mit Basisvektoren b_1 und b_2 (aus [Ros11]), **(b)** Generelle Brillouinzone mit den Punkten hoher Symmetrie.

Anhang F

Erzeugung von Neutronen

Die weltweite Erzeugung von Neutronen für wissenschaftliche Zwecke lässt sich in zwei verschiedenen Verfahren unterscheiden: Zum einen die Kernreaktion und zum anderen die Spallationsreaktion. Da im Verlauf dieser Arbeit sowohl an einem Kernreaktor als auch an einer Spallationsquelle als Neutronenquelle experimentiert wurde, sollen deren besondere Eigenheiten im Folgenden kurz einander gegenüber gestellt werden. Ein wichtiges Kriterium, um die Effizienz des Verfahrens zu beurteilen, ist der austretende Fluss an Neutronen pro Fläche und pro Zeit.

Kernreaktion Bei der Kernreaktion wie sie in Kernreaktoren auftritt, wird die Kernspaltung des Uran Isotops ^{235}U verwendet. Hierbei fängt das Uran ein langsames Neutron ein und dadurch gelangt das Isotop in einen höher energetisch instabilen Zustand. Dieser bricht aber innerhalb kürzester Zeit zusammen und das Isotop zerfällt in zwei Teile. Dabei werden 2 bis 3 hoch energetische Neutronen ($\sim 1.29\text{MeV}$) frei:



Diese erzeugten hochenergetischen Neutronen können selbst auch wieder Kernspaltungen bewirken, so dass es zu einer Kettenreaktion kommt. Zumindest solange eine kritische Masse des Materials überschritten ist. Damit die Kettenreaktion kontrollierbar bleibt, wird der Reaktor aber mit unterkritischer Masse betrieben und über sogenannte verzögerte Neutronen aus den Kernstücken der Prozess am Laufen gehalten. Die erzeugten Neutronen sind zu hoch energetisch und werden deshalb durch den Einsatz von Moderatoren abgebremst. Durch dieses Verfahren wird bei der stärkstes Kernreaktorquelle am ILL ein Fluss von $2 \cdot 10^{15} \frac{n}{\text{cm}^2\text{s}}$ erreicht.

Spallationreaktion Hier wird neutronenreiches Material mit hochenergetischen Partikeln (z.B. Protonen) beschossen und dieses so in einen höher angeregten Zustand gebracht. Im Gegensatz zur Kernreaktion wird die Energie gleichmäßig im Nukleus verteilt, so dass beim Übergang zurück in einen niedrigeren Zustand einzelne Nukleonen emittiert werden. Diese können dann einen weiteren Prozess starten oder das Zielmaterial verlassen. Die emittierten Teilchen tragen Energien von bis zu 1 GeV. Die Prozess läuft in unter 10^{-15}s ab, wodurch die zeitliche Verteilung der austretenden Neutronen ausschließlich von der der eintreffenden Teilchen abhängt. Hiernach unterscheidet man zwischen 'long pulse spallation sources' mit Pulsen von um die 5ms und 'short pulse spallation sources' $10\mu\text{s}$. Die Erzeugung der gewünschten Verteilung der eintreffenden Teilchen gelingt in einem Kreisbeschleuniger. Auch hier werden Moderatoren eingesetzt.

Derzeitig erreichte Größenordnung für den Fluss ist $10^{17} \frac{n}{\text{cm}^2\text{s}}$. Auf den ersten Blick scheint

Art der Neutronen	Temperatur des Moderators	Energie	Wellenlänge
Kalt	$\sim 50K$	$E = (0.05 - 5)meV$	$\lambda = (4 - 40) \text{ \AA}$
Thermisch	$\sim 300K$	$E = (5 - 100)meV$	$\lambda = (0.9 - 4) \text{ \AA}$
Heiß	$\sim 1000K$	$E = 100meV - 1eV$	$\lambda = (0.3 - 0.9) \text{ \AA}$

Tabelle F.1: Arten von Neutronen und die dazugehörige Energie und Wellenlänge

die Spallationsreaktion der Kernreaktion weit überlegen zu sein, jedoch muss bedacht werden, dass eine Spallationsquelle immer nur gepulste Neutronen liefert. Deshalb ist eine geschickte Anpassung der Experimente an die jeweilige Quelle sehr wichtig.

Kalte, thermische und heiße Neutronen Zusätzlich zu der Anpassung an die Quelle, muss das Experiment auch an die Art der verwendeten Neutronen angepasst sein. Von verschiedenen Arten spricht man, da das Energiespektrum der Neutronen von der Temperatur des Moderators T_M abhängig ist:

$$\Phi(E) = \frac{2\sqrt{E}}{\sqrt{\pi k_B^3 T_M^3}} e^{-\frac{E}{k_B T_M}} \quad (\text{F.2})$$

Die für die Neutronenstreuung relevanten Neutronen werden klassifiziert in kalte, thermische und heiße Neutronen. Deren dazugehörigen Eigenschaften sind in Tabelle F.1 aufgelistet.

Für gewöhnlich wird beim Kernreaktor Wasser als Moderator verwendet, dessen Temperatur zweckmäßigerweise der Raumtemperatur entspricht. Günstigerweise ergibt sich für diese Neutronen eine Wellenlänge von ungefähr $\lambda \approx 1 \text{ \AA}$. Dies entspricht gerade der Größenordnung für Abstände von Atomen auf dem Kristallgitter und mit einer Energie von 25meV liegt dies im Bereich der Anregungsenergien der Phononen und Magnonen. Dadurch sind sie ideal zur Untersuchung solcher Teilchen. Um aber auch kalte und heiße Neutronen erzeugen zu können, werden lokal kleine Mengen eines bestimmten Moderatormaterials eingebracht und diese entsprechend erhitzt oder abgekühlt.

Anhang G

Temperaturabhängigkeit der magnetischen Streuung

Während der Untersuchung der Spinwellen am Dreichachsenspektrometer Panda wurden zusätzlich die Intensitäten verschiedener magnetischer Peaks vermessen. Dabei stellte man fest, dass deren Temperaturabhängigkeit bisweilen sehr unerwartet erschien. Normalerweise erwartet man mit sinkender Temperatur einen Anstieg der Intensität, da sich die magnetischen Momente immer besser anordnen. Diese Überlegungen widersprachen den Beobachtungen in manchen Fällen. So wies die Intensität einer Reihe von magnetischen Braggpeaks bei 60K eine höhere Intensität auf als bei der vorherigen Messung bei 5K. Auf Grund dieser Beobachtung wurden sowohl an Panda als auch am Flugzeitspektrometer ARCS versucht, durch konsekutive Messungen eine Systematik dahinter zu erkennen. Bei vorhergegangenen Messungen wurde ein solches Verhalten nicht beobachtet.

Ausschlaggebend für die genauere Betrachtung der Temperaturabhängigkeit der magnetischen Streuung waren die in Abbildung G.1 gezeigten Messungen. Deutlich ist der Intensitätszuwachs von der 1. zur 2. Messung am Peak bei $1/3 \ 1/3 \ 0$ zu erkennen. Die erste Messung fand statt, nachdem die Blenden für den Neutronenstrahl auf den Kristall einjustiert wurden. Zuvor wurde dieser schnell bis auf 6 K abgekühlt. Nach einigen Messungen wurde der Kristall auf 60 K aufgeheizt und der Peak erneut vermessen. Vor den weiteren Messungen wurde der Filter gewechselt, um die Intensität zu erhöhen (die aufeinander folgenden Messungen bei 60 K wurden zur Normierung verwendet). Durch den durchgeführten Filterwechsel verringert sich sowohl die Auflösung als auch die Lage der Peaks wird verschoben. Somit handelt es sich trotz des Winkelunterschieds in Abbildung G.1 um den gleichen Peak. Es wurde dann bei 60 K gemessen und noch einmal nach dem Abkühlen auf 5K. Das für diesen Peak gezeigte Verhalten ist auch bei den anderen gemessenen magnetischen Peaks zu beobachten. Nachdem die Messungen am hk0-Kristall abgeschlossen wurden, wurde der hhl-Kristall eingesetzt. Auch hier wurde zuerst schnell auf 5 K abgekühlt, die magnetischen Peaks vermessen. Wobei dies einmal vor der Messung der Spinwellenanregungen und einmal danach geschah, um ein mögliches zeitliches Relaxieren auszuschließen. Danach wurde auf 60 K aufgeheizt. Hiervon ausgehend wurde langsam abgekühlt und jeweils nach 10 K wurde eine Reihe von magnetischen Peaks zweimal vermessen, um die mögliche Relaxierung zu betrachten. Es zeigt sich, dass sich die gemessenen Intensitäten im Rahmen des Fehlers nicht unterscheiden lassen. Die Tendenz eines temperaturabhängigen Intensitätsanstieg lässt sich aber erahnen und weist somit kein ungewöhnliches Verhalten auf. Auch die zeitliche Relaxation der Intensitäten ist vergleichsweise schwach (vgl. Abbildung G.2 und Tabelle G.1). Die magnetische Ordnung im Kristall tritt dementsprechend schnell ein.

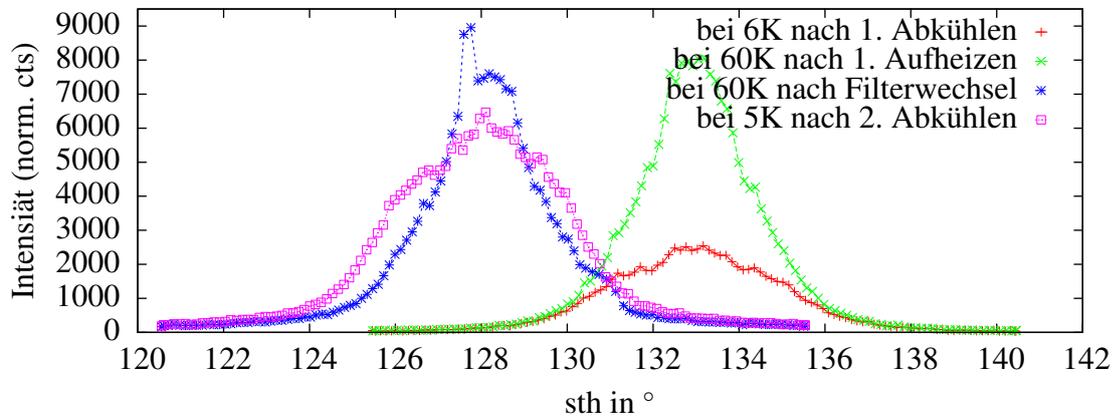


Abbildung G.1: Temperaturabhängigkeit der magn. Streuintensität des Peaks bei $1/3 \ 1/3 \ 0$ am $hk0$ -Kristall. Die Graphen sind zeitlich sortiert.

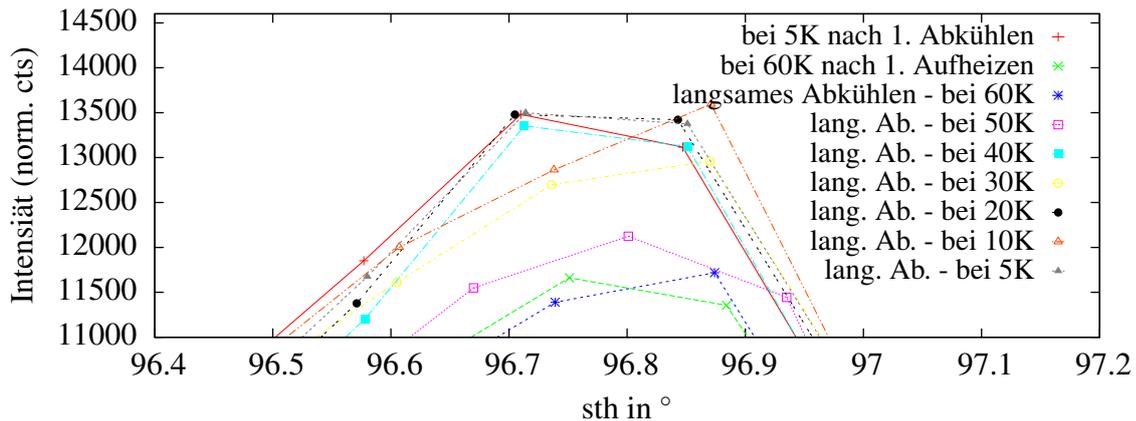


Abbildung G.2: Temperaturabhängigkeit der magn. Streuintensität des Peaks bei $1/3 \ 1/3 \ 0$ am hhl -Kristall. Die Graphen sind zeitlich sortiert.

Kristall	Temp. in K	integ. Intensität in cts.	Kristall	Temp. in K	integ. Intensität in cts.
hk0	6.0	88763	Fortführung von hhl	40.0	120818
	60.02	198767		30.0	124748
	60.0	203067		30.0	125511
	5.0	232046		20.0	129795
hhl	5.0	131931		20.0	130488
	5.0	131925		10.0	131936
	60	109054		10.0	131877
	60	106803		5.0	131931
	49.98	113533		5.0	131802
	50.0	114910		5.0	131252
	39.98	121324			

Tabelle G.1: Temperaturabhängigkeit der integrierten Intensitäten beim hk0- und hhl-Kristall. Die Einträge sind zeitlich sortiert.

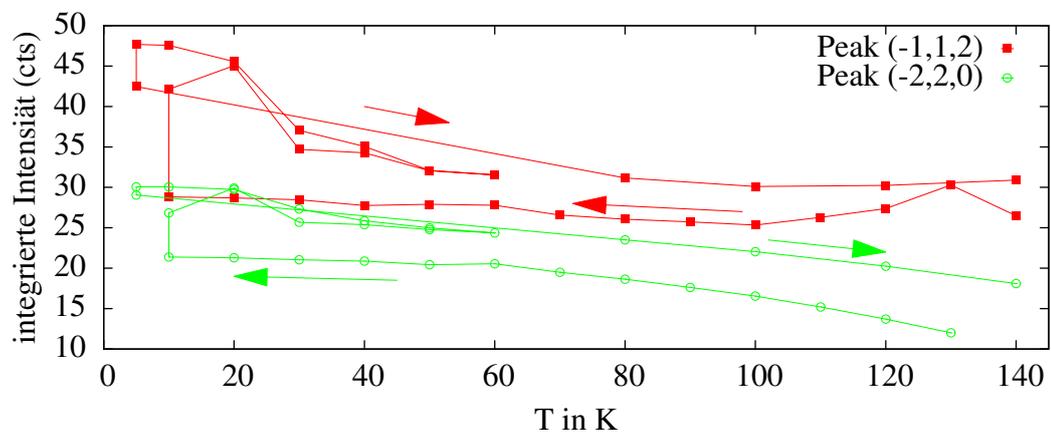


Abbildung G.3: Temperaturabhängigkeit der Intensität zweier Peaks. Gemessen am hk0-Kristall.

Die Vermutung liegt nahe, da es sich bei dem vorliegenden Kristall um ein stark frustriertes System handelt, dass der Kristall beim ersten Abkühlen in einen nicht energieminimierenden Zustand geordnet hat. Entweder ist dieser recht unwahrscheinlich oder es nicht abhängig von der Abkühlrate, da sich dies auch bei wiederholten makroskopischen Experimenten nicht reproduzieren ließ. Aus diesen recht inkonsistenten Ergebnissen lässt sich zumindestens folgern, dass das System in seiner Ordnung zeitlich stabil ist, sich aber mitunter Schwierigkeiten beim Abkühlen ergeben können. Dieses Verhalten wurde während den Spinwellenmessungen an ARCS weiter verfolgt.

Über das Laueverfahren können bei jeder Messung am ARCS eine Vielzahl von Peaks gemessen werden. Diese werden dann mit dem Programm ISAW erkannt, indiziert und die integrierte Intensität berechnet. Hierbei geschieht es häufig, dass manche Peaks nicht bei allen Messungen vorhanden sind. Einen Auszug aus den vollständigeren Peaks ist in Abbildung G.3 zu sehen. Der Verlauf der Graphen ist entsprechend der Pfeile zeitlich sortiert und zwischen den Laufaufnahmen fanden keine weiteren Heiz- oder Kühlvorgänge statt. Hier zeigt sich wiederum ein sehr ungewöhnliches Verhalten. Beim Abkühlen nimmt die Intensität, wie erwartet, prinzipiell zu und die magnetischen Momente scheinen bei 5 K zu relaxieren (bei der Messung bei 5 K wurden diese nicht indiziert). Nach einem leichten Aufheizen bis 60 K bei dem leicht hö-

here Intensitäten erreicht als noch zuvor während des Abkühlprozesses. Dies lässt sich noch recht leicht nachvollziehen. Ähnlich zu den Überlegungen bei der Messung an Panda, lässt sich vermuten, dass beim ersten Abkühlen selbst nach der Relaxation noch nicht der energieminimierende Zustand erreicht werden konnte. Nach einem erneuten Abkühlen auf 5 K konnte das System dann, ersichtlich an der höheren Intensität, ein geordneterer Zustand erreichen. Jedoch verringert sich nun die Intensität während des Relaxierens. Diese Messungen sind leider nur qualitativ sichergestellt. Die Verwendung des Programms Isaw eignet sich sehr gut für eine schnelle Bestimmung der Orientierung und Kristallstruktur, birgt jedoch bei der quantitativen Auswertung gewisse Probleme. So kann eine Normierung nur über eine möglichst gleiche Einstellung der Parameter wie z.B. die Anzahl der auszuwertende Neutronenevents, die Anzahl der zu erkennenden Peaks, die Abweichung von der bestimmten Kristallstruktur, der Integrationsradius und einigen anderen vorgenommen werden. Die Messdaten können jedoch auch nicht eigenhändig ausgewertet werden, da sie in sogenannten "Eventfiles" im Binärformat abgespeichert sind. Desweiteren wurde beim Wechsel der Probe die Verbindung zu den Temperatursensoren beschädigt, so dass danach die Temperatur nur noch mit einer 2-Punkt Methode anstatt mit der sichereren 4-Punkt Methode gemessen werden konnte. Aus Sicherheitsgründen wurde das Abkühlen so langsam wie es zeitlich möglich war durchgeführt, um unvollständige Ordnung, wie sie bei Panda zu beobachten war, zu vermeiden.

Anhang H

Nebenrechnungen zur Spinwellenrechnung

Berechnung des Hamiltonoperators nach dem Einführen der Auf- und Absteigeoperatoren: Hier reicht einfaches Einsetzen und ausrechnen:

$$H = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left[\frac{1}{2i} (S_i^+ - S_i^-) \frac{1}{2i} (S_j^+ - S_j^-) \right] \quad (\text{H.1})$$

$$\begin{aligned} & + \cos(\theta_i - \theta_j) \left(\frac{1}{2} (S_i^+ + S_i^-) \frac{1}{2} (S_j^+ + S_j^-) + S_i^z S_j^z \right) \\ & + \sin(\theta_i - \theta_j) \left(\frac{1}{2} (S_i^+ + S_i^-) S_j^z - S_i^z \frac{1}{2} (S_j^+ + S_j^-) \right) \\ = & \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left[-\frac{1}{4} (S_i^+ S_j^+ - S_i^- S_j^+ - S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^-) \right. \\ & + \cos(\theta_i - \theta_j) \left(\frac{1}{4} (S_i^+ S_j^+ + S_i^- S_j^+ + S_i^+ S_j^- + S_i^- S_j^-) + S_i^z S_j^z \right) \\ & + \sin(\theta_i - \theta_j) \frac{1}{2} (S_i^+ S_j^z + S_i^- S_j^z - S_i^z S_j^+ - S_i^z S_j^-) \left. \right] \\ = & \frac{1}{4} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left[(\cos(\theta_i - \theta_j) - 1) (S_i^+ S_j^+ + S_i^- S_j^-) \right. \\ & + (\cos(\theta_i - \theta_j) + 1) (S_i^- S_j^+ + S_i^+ S_j^-) \\ & + 4 \cos(\theta_i - \theta_j) S_i^z S_j^z \\ & \left. + 2 \sin(\theta_i - \theta_j) (S_i^+ S_j^z + S_i^- S_j^z - S_i^z S_j^+ - S_i^z S_j^-) \right] \quad (\text{H.2}) \end{aligned}$$

Bestimmung der Produkte der Auf- und Absteigeoperatoren: Bestimmung der Produkte die im Hamiltonian auftauchen wobei die 5. und 6. Ordnung in Operatoren vernachlässigt

wird.

$$\begin{aligned}
 S_i^+ S_j^+ &= 2S a_i^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) a_j^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) & (H.3) \\
 &= 2S \left(a_i^\dagger - a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) \left(a_j^\dagger - a_j^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) \\
 &= 2S a_i^\dagger a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j + \frac{1}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j^\dagger \frac{\hat{n}_j}{2S} \\
 &= 2S a_i^\dagger a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j + \frac{1}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j^\dagger \frac{\hat{n}_j}{2S} \\
 &\approx 2S a_i^\dagger a_j^\dagger - \frac{1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_i + a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j) \\
 S_i^+ S_j^- &= 2S a_i^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) a_j \\
 &= 2S \left(a_i^\dagger - a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) \left(a_j - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S} a_j\right) \\
 &= 2S a_i^\dagger a_j - \frac{1}{2} a_i^\dagger \hat{n}_i a_j - \frac{1}{2} a_i^\dagger \hat{n}_j a_j + a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S} a_j \\
 &\approx 2S a_i^\dagger a_j - \frac{1}{2} a_i^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_j \\
 S_i^- S_j^+ &= 2S \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) a_i a_j^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) \\
 &= 2S \left(a_i - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} a_i\right) \left(a_j^\dagger - a_j^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) \\
 &= 2S a_i a_j^\dagger - \frac{1}{2} \hat{n}_i a_i a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_i a_j^\dagger \hat{n}_j + \frac{1}{4} \hat{n}_i a_i a_j^\dagger \frac{\hat{n}_j}{2S} \\
 &\approx 2S a_i a_j^\dagger - \frac{1}{2} a_j^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_i \\
 S_i^- S_j^- &= 2S \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) a_i \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) a_j \\
 &= 2S \left(a_i - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} a_i\right) \left(a_j - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S} a_j\right) \\
 &= 2S a_i a_j - \frac{1}{2} \hat{n}_i a_i a_j - \frac{1}{2} a_i \hat{n}_j a_j + \frac{1}{4} \hat{n}_i a_i \frac{\hat{n}_j}{2S} a_j \\
 &\approx 2S a_i a_j - \frac{1}{2} (\hat{n}_i a_i a_j + \hat{n}_j a_j a_i) \\
 S_i^+ S_j^z &= \sqrt{2S} a_i^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) (S - \hat{n}_j) \\
 &= \sqrt{2S} \left(a_i^\dagger - a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) (S - \hat{n}_j) \\
 &= \sqrt{2S} S^{\frac{3}{2}} a_i^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i - \sqrt{2S} a_i^\dagger \hat{n}_j + a_i^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{\sqrt{2S}} \hat{n}_j \\
 &\approx \sqrt{2S} S^{\frac{3}{2}} a_i^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i - \sqrt{2S} a_i^\dagger \hat{n}_j
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
S_i^- S_j^z &= \sqrt{2S} \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S}\right) a_i (S - \hat{n}_j) \\
&= \sqrt{2S} \left(a_i - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{2S} a_i\right) (S - \hat{n}_j) \\
&= \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_i - \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_i a_i - \sqrt{2S} a_i \hat{n}_j + \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_i}{\sqrt{2S}} a_i \hat{n}_j \\
&\approx \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_i - \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_i a_i - \sqrt{2S} a_i \hat{n}_j \\
S_i^z S_j^+ &= \sqrt{2S} (S - \hat{n}_i) a_j^\dagger \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) \\
&= \sqrt{2S} (S - \hat{n}_i) \left(a_j^\dagger - a_j^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) \\
&= \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_j^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4} a_j^\dagger \hat{n}_j - \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j^\dagger + \hat{n}_i a_j^\dagger \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{\sqrt{2S}} \\
&\approx \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_j^\dagger - \frac{\sqrt{2S}}{4} a_j^\dagger \hat{n}_j - \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j^\dagger \\
S_i^z S_j^- &= \sqrt{2S} (S - \hat{n}_i) \left(1 - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S}\right) a_j \\
&= \sqrt{2S} (S - \hat{n}_i) \left(a_j - \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{2S} a_j\right) \\
&= \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_j - \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_j a_j - \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j + \hat{n}_i \frac{1}{2} \frac{\hat{n}_j}{\sqrt{2S}} a_j \\
&\approx \sqrt{2S}^{\frac{3}{2}} a_j - \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_j a_j - \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j \\
S_i^z S_j^z &= (S - a_i^\dagger a_i) (S - a_j^\dagger a_j) \\
&= S^2 - S \hat{n}_i - S \hat{n}_j + \hat{n}_i \hat{n}_j
\end{aligned}$$

Bestimmung der Ordnungen des Hamiltonoperators: Da die Erzeuger- und Vernichtoperatoren nur bis zur 1. Ordnung entwickelt wurden, kann die 5. Ordnung des Hamiltonian nur unvollständig bestimmt werden und wird hier vernachlässigt. Für jeden letzten Schritt siehe die zusätzlichen Nebenrechnungen H.9, H.10 und H.11.

$$H_0 = \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} S^2 \cos(\theta_i - \theta_j) \quad (\text{H.4})$$

$$\begin{aligned}
H_1 &= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_i^\dagger + a_i - a_j^\dagger - a_j) \\
&= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger + a_i) \sum_\delta J_{i, i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta}) \quad (\text{H.5})
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_2 &= S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) - 1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) + \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) + 1}{2} (a_i a_j^\dagger + a_i^\dagger a_j) \\
 &\quad - S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j) (\hat{n}_i + \hat{n}_j) \\
 &= S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) - 1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) + \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) + 1}{2} (a_i a_j^\dagger + a_i^\dagger a_j) \quad (\text{H.6}) \\
 &\quad - S \sum_i \hat{n}_i \sum_\delta J_{i,i+\delta} \cos(\theta_i - \theta_{i+\delta})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_3 &= \frac{1}{4} \sum_{\langle ij \rangle} 2J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) \left(-\frac{\sqrt{2S}}{4} a_i^\dagger \hat{n}_i - \sqrt{2S} a_i^\dagger \hat{n}_j - \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_i a_i \right. \\
 &\quad \left. - \sqrt{2S} a_i \hat{n}_j + \frac{\sqrt{2S}}{4} a_j^\dagger \hat{n}_j + \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j^\dagger + \frac{\sqrt{2S}}{4} \hat{n}_j a_j + \sqrt{2S} \hat{n}_i a_j \right) \\
 &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (-a_i^\dagger \hat{n}_j - a_i \hat{n}_j + \hat{n}_i a_j^\dagger + \hat{n}_i a_j) \\
 &\quad + \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (-a_i^\dagger \hat{n}_i - \hat{n}_i a_i + a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j) \\
 &= \sqrt{\frac{S}{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (\hat{n}_i (a_j^\dagger + a_j) - (a_i^\dagger + a_i) \hat{n}_j) \quad (\text{H.7}) \\
 &\quad - \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i) \sum_\delta J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta})
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 H_4 &= \frac{1}{4} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} (\cos(\theta_i - \theta_j) - 1) \left(-\frac{1}{2} (a_j^\dagger a_i^\dagger \hat{n}_i + a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j) - \frac{1}{2} (\hat{n}_i a_i a_j + \hat{n}_j a_j a_i) \right. \\
 &\quad \left. + (\cos(\theta_i - \theta_j) + 1) \left(-\frac{1}{2} a_j^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_i - \frac{1}{2} a_i^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_j \right) + 4 \cos(\theta_i - \theta_j) \hat{n}_i \hat{n}_j \right) \\
 &= \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \left[\cos(\theta_i - \theta_j) \hat{n}_i \hat{n}_j - \frac{(\cos(\theta_i - \theta_j) - 1)}{8} (a_j^\dagger a_i^\dagger \hat{n}_i + a_i^\dagger a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_i a_i a_j + \hat{n}_j a_j a_i) \right] \\
 &\quad - \frac{(\cos(\theta_i - \theta_j) + 1)}{8} (a_j^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_i + a_i^\dagger (\hat{n}_i + \hat{n}_j) a_j) \quad (\text{H.8})
 \end{aligned}$$

mit δ als Vektor zu den nächste Nachbarn Plätzen.

Anmerkung zu H_1 :

$$\begin{aligned}
 &\frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_i^\dagger + a_i - a_j^\dagger - a_j) \quad (\text{H.9}) \\
 &= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \left(\sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_i^\dagger + a_i) - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_j^\dagger - a_j) \right) \\
 &= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \left(\frac{1}{2} \sum_i (a_i^\dagger + a_i) \sum_\delta J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta}) - \frac{1}{2} \sum_j (a_j^\dagger - a_j) \sum_\delta J_{j+\delta,j} \sin(\theta_{j+\delta} - \theta_j) \right) \\
 &= \frac{S^{\frac{3}{2}}}{\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger + a_i) \sum_\delta J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta})
 \end{aligned}$$

Anmerkung zu H_2 :

$$\begin{aligned}
& S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j) (\hat{n}_i + \hat{n}_j) \tag{H.10} \\
&= S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j) \hat{n}_i + S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j) \hat{n}_j \\
&= \frac{S}{2} \sum_i \hat{n}_i \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \cos(\theta_i - \theta_{i+\delta}) + \frac{S}{2} \sum_j \hat{n}_j \sum_{\delta} J_{j+\delta,j} \cos(\theta_{j+\delta} - \theta_j) \\
&= \frac{S}{2} \sum_i \hat{n}_i \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \cos(\theta_i - \theta_{i+\delta}) + \frac{S}{2} \sum_j J_{ij} \hat{n}_j \sum_{\delta} J_{j,j+\delta} \cos(\theta_j - \theta_{j+\delta}) \\
&= S \sum_i \hat{n}_i \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \cos(\theta_i - \theta_{i+\delta})
\end{aligned}$$

Anmerkung zu H_3 :

$$\begin{aligned}
& \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (-a_i^\dagger \hat{n}_i - \hat{n}_i a_i + a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j) \tag{H.11} \\
&= \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j - (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i)) \\
&= -\frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i) + \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sin(\theta_i - \theta_j) (a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j) \\
&= -\frac{1}{2} \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i) \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta}) \\
&\quad + \frac{1}{2} \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_j (a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j) \sum_{\delta} J_{j+\delta,j} \sin(\theta_{j+\delta} - \theta_j) \\
&= -\frac{1}{2} \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_i J_{ij} (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i) \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta}) \\
&\quad - \frac{1}{2} \frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_j (a_j^\dagger \hat{n}_j + \hat{n}_j a_j) \sum_{\delta} J_{j,j+\delta} \sin(\theta_j - \theta_{j+\delta}) \\
&= -\frac{\sqrt{S}}{4\sqrt{2}} \sum_i (a_i^\dagger \hat{n}_i + \hat{n}_i a_i) \sum_{\delta} J_{i,i+\delta} \sin(\theta_i - \theta_{i+\delta})
\end{aligned}$$

Fouriertransformation von H_2 in den \mathbf{k} -Raum: H_2 hat vier Summanden die einzeln fouriertransformiert werden:

1. Summand:

$$\begin{aligned}
 & S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) - 1}{2} (a_i^\dagger a_j^\dagger + a_i a_j) \tag{H.12} \\
 = & S \sum_{\mathbf{R}} \left(-\frac{3}{4} J_1 (A_{\mathbf{R}}^\dagger C_{\mathbf{R}}^\dagger + A_{\mathbf{R}} C_{\mathbf{R}} + A_{\mathbf{R}}^\dagger E_{\mathbf{R}}^\dagger + A_{\mathbf{R}} E_{\mathbf{R}} \right. \\
 & + B_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + B_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + B_{\mathbf{R}}^\dagger G_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + B_{\mathbf{R}} G_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} \\
 & + C_{\mathbf{R}}^\dagger E_{\mathbf{R}}^\dagger + C_{\mathbf{R}} E_{\mathbf{R}} + D_{\mathbf{R}}^\dagger F_{\mathbf{R}+(0,-1,0)}^\dagger + D_{\mathbf{R}} F_{\mathbf{R}+(0,-1,0)} + D_{\mathbf{R}}^\dagger H_{\mathbf{R}}^\dagger + D_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}} \\
 & + F_{\mathbf{R}}^\dagger H_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + F_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}+(0,1,0)} + G_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}}^\dagger + G_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}} \\
 & + M_{\mathbf{R}}^\dagger R_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + M_{\mathbf{R}} R_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + M_{\mathbf{R}}^\dagger T_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + M_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} \\
 & + N_{\mathbf{R}}^\dagger S_{\mathbf{R}}^\dagger + N_{\mathbf{R}} S_{\mathbf{R}} + N_{\mathbf{R}}^\dagger P_{\mathbf{R}+(0,-1,0)}^\dagger + N_{\mathbf{R}} P_{\mathbf{R}+(0,-1,0)} \\
 & + O_{\mathbf{R}}^\dagger Q_{\mathbf{R}}^\dagger + O_{\mathbf{R}} Q_{\mathbf{R}} + O_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}}^\dagger + O_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}} \\
 & + P_{\mathbf{R}}^\dagger S_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + P_{\mathbf{R}} S_{\mathbf{R}+(0,1,0)} + Q_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}}^\dagger + Q_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}} \\
 & + R_{\mathbf{R}}^\dagger T_{\mathbf{R}}^\dagger + R_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}}) \\
 & - J_2 (A_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}+(-1,2,0)}^\dagger + A_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}+(-1,2,0)} + A_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}+(-1,2,-1)}^\dagger + A_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}+(-1,2,-1)} \\
 & + B_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + B_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + B_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + B_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + C_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + C_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + C_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + C_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + D_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + D_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + D_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + D_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + E_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + E_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + E_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + E_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + F_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + F_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + F_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + F_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + G_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + G_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + G_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + G_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + H_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}}^\dagger + H_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}} + H_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + H_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + I_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}}^\dagger + I_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}} + I_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}+(0,0,-1)}^\dagger + I_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}+(0,0,-1)} \\
 & + M_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + M_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + M_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}}^\dagger + M_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}} \\
 & + N_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + N_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + N_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}}^\dagger + N_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}} \\
 & + O_{\mathbf{R}}^\dagger J_{\mathbf{R}}^\dagger + O_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}} + O_{\mathbf{R}}^\dagger V_{\mathbf{R}}^\dagger + O_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}} \\
 & + P_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + P_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + P_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}}^\dagger + P_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}} \\
 & + Q_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + Q_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + Q_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}}^\dagger + Q_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}} \\
 & + R_{\mathbf{R}}^\dagger K_{\mathbf{R}}^\dagger + R_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}} + R_{\mathbf{R}}^\dagger W_{\mathbf{R}}^\dagger + R_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}} \\
 & + S_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + S_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + S_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + S_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} \\
 & + T_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + T_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}+(0,1,0)} + T_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + T_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}+(0,1,0)} \\
 & \left. + U_{\mathbf{R}}^\dagger L_{\mathbf{R}}^\dagger + U_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}} + U_{\mathbf{R}}^\dagger X_{\mathbf{R}}^\dagger + U_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}}) \right)
 \end{aligned}$$

nach der Fouriertransformation erhält man

$$\begin{aligned}
= & S\alpha \cdot \sum_{\mu} \left(-\frac{3}{4} J_1(A_{\mu}^{\dagger} C_{-\mu}^{\dagger} + A_{\mu} C_{-\mu} + A_{\mu}^{\dagger} E_{-\mu}^{\dagger} + A_{\mu} E_{-\mu}) \right. \\
& + B_{\mu}^{\dagger} I_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + B_{\mu} I_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + B_{\mu}^{\dagger} G_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + B_{\mu} G_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} \\
& + C_{\mu}^{\dagger} E_{-\mu}^{\dagger} + C_{\mu} E_{-\mu} \\
& + D_{\mu}^{\dagger} F_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,-1,0)} + D_{\mu} F_{-\mu} e^{-i\mu(0,-1,0)} + D_{\mu}^{\dagger} H_{-\mu}^{\dagger} + D_{\mu} H_{-\mu} \\
& + F_{\mu}^{\dagger} H_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,1,0)} + F_{\mu} H_{-\mu} e^{-i\mu(0,1,0)} + G_{\mu}^{\dagger} I_{-\mu}^{\dagger} + G_{\mu} I_{-\mu} \\
& + M_{\mu}^{\dagger} R_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + M_{\mu} R_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + M_{\mu}^{\dagger} T_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + M_{\mu} T_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} \\
& + N_{\mu}^{\dagger} S_{-\mu}^{\dagger} + N_{\mu} S_{-\mu} + N_{\mu}^{\dagger} P_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,-1,0)} + N_{\mu} P_{-\mu} e^{-i\mu(0,-1,0)} \\
& + O_{\mu}^{\dagger} Q_{-\mu}^{\dagger} + O_{\mu} Q_{-\mu} + O_{\mu}^{\dagger} U_{-\mu}^{\dagger} + O_{\mu} U_{-\mu} \\
& + P_{\mu}^{\dagger} S_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,1,0)} + P_{\mu} S_{-\mu} e^{-i\mu(0,1,0)} + Q_{\mu}^{\dagger} U_{-\mu}^{\dagger} + Q_{\mu} U_{-\mu} \\
& + R_{\mu}^{\dagger} T_{-\mu}^{\dagger} + R_{\mu} T_{-\mu}) \\
& - J_2(A_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,2,0)} + A_{\mu} L_{-\mu} e^{-i\mu(-1,2,0)} + A_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,2,-1)} + A_{\mu} X_{-\mu} e^{-i\mu(-1,2,-1)} \\
& + B_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + B_{\mu} J_{-\mu} + B_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + B_{\mu} V_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + C_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + C_{\mu} J_{-\mu} + C_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + C_{\mu} V_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + D_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + D_{\mu} J_{-\mu} + D_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + D_{\mu} V_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + E_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + E_{\mu} K_{-\mu} + E_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + E_{\mu} W_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + F_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + F_{\mu} K_{-\mu} + F_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + F_{\mu} W_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + G_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + G_{\mu} K_{-\mu} + G_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + G_{\mu} W_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + H_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} + H_{\mu} L_{-\mu} + H_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + H_{\mu} X_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + I_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} + I_{\mu} L_{-\mu} + I_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,0,-1)} + I_{\mu} X_{-\mu} e^{-i\mu(0,0,-1)} \\
& + M_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + M_{\mu} J_{-\mu} + M_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} + M_{\mu} V_{-\mu} \\
& + N_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + N_{\mu} J_{-\mu} + N_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} + N_{\mu} V_{-\mu} \\
& + O_{\mu}^{\dagger} J_{-\mu}^{\dagger} + O_{\mu} J_{-\mu} + O_{\mu}^{\dagger} V_{-\mu}^{\dagger} + O_{\mu} V_{-\mu} \\
& + P_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + P_{\mu} K_{-\mu} + P_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} + P_{\mu} W_{-\mu} \\
& + Q_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + Q_{\mu} K_{-\mu} + Q_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} + Q_{\mu} W_{-\mu} \\
& + R_{\mu}^{\dagger} K_{-\mu}^{\dagger} + R_{\mu} K_{-\mu} + R_{\mu}^{\dagger} W_{-\mu}^{\dagger} + R_{\mu} W_{-\mu} \\
& + S_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + S_{\mu} L_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + S_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(-1,1,0)} + S_{\mu} X_{-\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} \\
& + T_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,1,0)} + T_{\mu} L_{-\mu} e^{-i\mu(0,1,0)} + T_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} e^{+i\mu(0,1,0)} + T_{\mu} X_{-\mu} e^{-i\mu(0,1,0)} \\
& + U_{\mu}^{\dagger} L_{-\mu}^{\dagger} + U_{\mu} L_{-\mu} + U_{\mu}^{\dagger} X_{-\mu}^{\dagger} + U_{\mu} X_{-\mu})
\end{aligned}$$

2. Summand:

$$\begin{aligned}
 & S \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \frac{\cos(\theta_i - \theta_j) + 1}{2} (a_i a_j^\dagger + a_i^\dagger a_j) \tag{H.13} \\
 = & J_1 S \sum_{\mathbf{R}} \left(\frac{1}{4} A_{\mathbf{R}} C_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} A_{\mathbf{R}}^\dagger C_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} A_{\mathbf{R}} E_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} A_{\mathbf{R}}^\dagger E_{\mathbf{R}} + A_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}+(1,-2,0)}^\dagger + A_{\mathbf{R}}^\dagger H_{\mathbf{R}+(1,-2,0)} \right. \\
 & + A_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}+(1,-2,0)}^\dagger + A_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}+(1,-2,0)} + B_{\mathbf{R}} C_{\mathbf{R}}^\dagger + B_{\mathbf{R}}^\dagger C_{\mathbf{R}} + B_{\mathbf{R}} D_{\mathbf{R}}^\dagger + B_{\mathbf{R}}^\dagger D_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} B_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger \\
 & + \frac{1}{4} B_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + \frac{1}{4} B_{\mathbf{R}} G_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} B_{\mathbf{R}}^\dagger G_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + C_{\mathbf{R}} D_{\mathbf{R}}^\dagger + C_{\mathbf{R}}^\dagger D_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} C_{\mathbf{R}} E_{\mathbf{R}}^\dagger \\
 & + \frac{1}{4} C_{\mathbf{R}}^\dagger E_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} D_{\mathbf{R}} F_{\mathbf{R}+(0,-1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} D_{\mathbf{R}}^\dagger F_{\mathbf{R}+(0,-1,0)} + \frac{1}{4} D_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} D_{\mathbf{R}}^\dagger H_{\mathbf{R}} + E_{\mathbf{R}} F_{\mathbf{R}}^\dagger + E_{\mathbf{R}}^\dagger F_{\mathbf{R}} \\
 & + E_{\mathbf{R}} G_{\mathbf{R}}^\dagger + E_{\mathbf{R}}^\dagger G_{\mathbf{R}} + F_{\mathbf{R}} G_{\mathbf{R}}^\dagger + F_{\mathbf{R}}^\dagger G_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} F_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} F_{\mathbf{R}}^\dagger H_{\mathbf{R}+(0,1,0)} + G_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}}^\dagger + G_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}} \\
 & + H_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}}^\dagger + H_{\mathbf{R}}^\dagger I_{\mathbf{R}} \\
 & + M_{\mathbf{R}} N_{\mathbf{R}}^\dagger + M_{\mathbf{R}}^\dagger N_{\mathbf{R}} + M_{\mathbf{R}} O_{\mathbf{R}}^\dagger + M_{\mathbf{R}}^\dagger O_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} M_{\mathbf{R}} R_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} M_{\mathbf{R}}^\dagger R_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + \frac{1}{4} M_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger \\
 & + \frac{1}{4} M_{\mathbf{R}}^\dagger T_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} + N_{\mathbf{R}} O_{\mathbf{R}}^\dagger + N_{\mathbf{R}}^\dagger O_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} N_{\mathbf{R}} S_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} N_{\mathbf{R}}^\dagger S_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} N_{\mathbf{R}} P_{\mathbf{R}+(0,-1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} N_{\mathbf{R}}^\dagger P_{\mathbf{R}+(0,-1,0)} \\
 & + \frac{1}{4} O_{\mathbf{R}} Q_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} O_{\mathbf{R}}^\dagger Q_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} O_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} O_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}} + P_{\mathbf{R}} Q_{\mathbf{R}}^\dagger + P_{\mathbf{R}}^\dagger Q_{\mathbf{R}} + P_{\mathbf{R}} R_{\mathbf{R}}^\dagger \\
 & + P_{\mathbf{R}}^\dagger R_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} P_{\mathbf{R}} S_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + \frac{1}{4} P_{\mathbf{R}}^\dagger S_{\mathbf{R}+(0,1,0)} + Q_{\mathbf{R}} R_{\mathbf{R}}^\dagger + Q_{\mathbf{R}}^\dagger R_{\mathbf{R}} + \frac{1}{4} Q_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} Q_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}} \\
 & + \frac{1}{4} R_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}}^\dagger + \frac{1}{4} R_{\mathbf{R}}^\dagger T_{\mathbf{R}} + S_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}+(-1,0,0)}^\dagger + S_{\mathbf{R}}^\dagger T_{\mathbf{R}+(-1,0,0)} + S_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}+(-1,1,0)}^\dagger + S_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}+(-1,1,0)} \\
 & + T_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}+(0,1,0)}^\dagger + T_{\mathbf{R}}^\dagger U_{\mathbf{R}+(0,1,0)} \Big) \\
 = & J_1 S \sum_{\mu} \left(\frac{1}{4} A_{\mu} C_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} A_{\mu}^\dagger C_{\mu} + \frac{1}{4} A_{\mu} E_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} A_{\mu}^\dagger E_{\mu} + A_{\mu} H_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(1,-2,0)} + A_{\mu}^\dagger H_{\mu} e^{-i\mu(1,-2,0)} \right. \\
 & + A_{\mu} I_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(1,-2,0)} + A_{\mu}^\dagger I_{\mu} e^{-i\mu(1,-2,0)} + B_{\mu} C_{\mu}^\dagger + B_{\mu}^\dagger C_{\mu} + B_{\mu} D_{\mu}^\dagger + B_{\mu}^\dagger D_{\mu} + \frac{1}{4} B_{\mu} I_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(-1,1,0)} \\
 & + \frac{1}{4} B_{\mu}^\dagger I_{\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + \frac{1}{4} B_{\mu} G_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(-1,1,0)} + \frac{1}{4} B_{\mu}^\dagger G_{\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + C_{\mu} D_{\mu}^\dagger + C_{\mu}^\dagger D_{\mu} + \frac{1}{4} C_{\mu} E_{\mu}^\dagger \\
 & + \frac{1}{4} C_{\mu}^\dagger E_{\mu} + \frac{1}{4} D_{\mu} F_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(0,-1,0)} + \frac{1}{4} D_{\mu}^\dagger F_{\mu} e^{-i\mu(0,-1,0)} + \frac{1}{4} D_{\mu} H_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} D_{\mu}^\dagger H_{\mu} + E_{\mu} F_{\mu}^\dagger + E_{\mu}^\dagger F_{\mu} \\
 & + E_{\mu} G_{\mu}^\dagger + E_{\mu}^\dagger G_{\mu} + F_{\mu} G_{\mu}^\dagger + F_{\mu}^\dagger G_{\mu} + \frac{1}{4} F_{\mu} H_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(0,1,0)} + \frac{1}{4} F_{\mu}^\dagger H_{\mu} e^{-i\mu(0,1,0)} + G_{\mu} I_{\mu}^\dagger + G_{\mu}^\dagger I_{\mu} \\
 & + H_{\mu} I_{\mu}^\dagger + H_{\mu}^\dagger I_{\mu} + M_{\mu} N_{\mu}^\dagger + M_{\mu}^\dagger N_{\mu} + M_{\mu} O_{\mu}^\dagger + M_{\mu}^\dagger O_{\mu} \\
 & + \frac{1}{4} M_{\mu} R_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(-1,1,0)} + \frac{1}{4} M_{\mu}^\dagger R_{\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} + \frac{1}{4} M_{\mu} T_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(-1,1,0)} + \frac{1}{4} M_{\mu}^\dagger T_{\mu} e^{-i\mu(-1,1,0)} \\
 & + N_{\mu} O_{\mu}^\dagger + N_{\mu}^\dagger O_{\mu} + \frac{1}{4} N_{\mu} S_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} N_{\mu}^\dagger S_{\mu} + \frac{1}{4} N_{\mu} P_{\mu}^\dagger e^{+i\mu(0,-1,0)} + \frac{1}{4} N_{\mu}^\dagger P_{\mu} e^{-i\mu(0,-1,0)} \\
 & + \frac{1}{4} O_{\mu} Q_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} O_{\mu}^\dagger Q_{\mu} + \frac{1}{4} O_{\mu} U_{\mu}^\dagger + \frac{1}{4} O_{\mu}^\dagger U_{\mu} + P_{\mu} Q_{\mu}^\dagger + P_{\mu}^\dagger Q_{\mu} + P_{\mu} R_{\mu}^\dagger
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& +P_\mu^\dagger R_\mu + \frac{1}{4}P_\mu S_\mu^\dagger e^{+i\mu(0,1,0)} + \frac{1}{4}P_\mu^\dagger S_\mu e^{-i\mu(0,1,0)} + Q_\mu R_\mu^\dagger + Q_\mu^\dagger R_\mu + \frac{1}{4}Q_\mu U_\mu^\dagger + \frac{1}{4}Q_\mu^\dagger U_\mu \\
& + \frac{1}{4}R_\mu T_\mu^\dagger + \frac{1}{4}R_\mu^\dagger T_\mu + S_\mu T_\mu^\dagger e^{+i\mu(-1,0,0)} + S_\mu^\dagger T_\mu e^{-i\mu(-1,0,0)} + S_\mu U_\mu^\dagger e^{+i\mu(-1,1,0)} \\
& + S_\mu^\dagger U_\mu e^{-i\mu(-1,1,0)} + T_\mu U_\mu^\dagger e^{+i\mu(0,1,0)} + T_\mu^\dagger U_\mu e^{-i\mu(0,1,0)}
\end{aligned}$$

3. Summand:

$$\begin{aligned}
& S \sum_{i \in \text{Kagome}} \hat{n}_i (2J_2 - J_1) \tag{H.14} \\
& = S(2J_2 - J_1) \sum_{\mathbf{R}} (A_{\mathbf{R}} A_{\mathbf{R}}^\dagger + B_{\mathbf{R}} B_{\mathbf{R}}^\dagger + C_{\mathbf{R}} C_{\mathbf{R}}^\dagger + D_{\mathbf{R}} D_{\mathbf{R}}^\dagger + E_{\mathbf{R}} E_{\mathbf{R}}^\dagger + F_{\mathbf{R}} F_{\mathbf{R}}^\dagger + G_{\mathbf{R}} G_{\mathbf{R}}^\dagger \\
& \quad + H_{\mathbf{R}} H_{\mathbf{R}}^\dagger + I_{\mathbf{R}} I_{\mathbf{R}}^\dagger + M_{\mathbf{R}} M_{\mathbf{R}}^\dagger + N_{\mathbf{R}} N_{\mathbf{R}}^\dagger + O_{\mathbf{R}} O_{\mathbf{R}}^\dagger + P_{\mathbf{R}} P_{\mathbf{R}}^\dagger + Q_{\mathbf{R}} Q_{\mathbf{R}}^\dagger \\
& \quad + R_{\mathbf{R}} R_{\mathbf{R}}^\dagger + S_{\mathbf{R}} S_{\mathbf{R}}^\dagger + T_{\mathbf{R}} T_{\mathbf{R}}^\dagger + U_{\mathbf{R}} U_{\mathbf{R}}^\dagger) \\
& = S(2J_2 - J_1) \alpha \cdot \sum_{\mu} (A_{\mu} A_{\mu}^\dagger + B_{\mu} B_{\mu}^\dagger + C_{\mu} C_{\mu}^\dagger + D_{\mu} D_{\mu}^\dagger + E_{\mu} E_{\mu}^\dagger + F_{\mu} F_{\mu}^\dagger + G_{\mu} G_{\mu}^\dagger \\
& \quad + H_{\mu} H_{\mu}^\dagger + I_{\mu} I_{\mu}^\dagger + M_{\mu} M_{\mu}^\dagger + N_{\mu} N_{\mu}^\dagger + O_{\mu} O_{\mu}^\dagger + P_{\mu} P_{\mu}^\dagger + Q_{\mu} Q_{\mu}^\dagger \\
& \quad + R_{\mu} R_{\mu}^\dagger + S_{\mu} S_{\mu}^\dagger + T_{\mu} T_{\mu}^\dagger + U_{\mu} U_{\mu}^\dagger)
\end{aligned}$$

4. Summand:

$$\begin{aligned}
& S \sum_{i \notin \text{Kagome}} \hat{n}_i 6J_2 \tag{H.15} \\
& = 6SJ_2 \sum_{\mathbf{R}} (J_{\mathbf{R}} J_{\mathbf{R}}^\dagger + K_{\mathbf{R}} K_{\mathbf{R}}^\dagger + L_{\mathbf{R}} L_{\mathbf{R}}^\dagger + V_{\mathbf{R}} V_{\mathbf{R}}^\dagger + W_{\mathbf{R}} W_{\mathbf{R}}^\dagger + X_{\mathbf{R}} X_{\mathbf{R}}^\dagger) \\
& = 6SJ_2 \alpha \cdot \sum_{\mu} (J_{\mu} J_{\mu}^\dagger + K_{\mu} K_{\mu}^\dagger + L_{\mu} L_{\mu}^\dagger + V_{\mu} V_{\mu}^\dagger + W_{\mu} W_{\mu}^\dagger + X_{\mu} X_{\mu}^\dagger)
\end{aligned}$$

Einträge der Matrix:

Die nach der Fouriertransformation gewonnene Matrix hat die Größe 48×48 und lässt sich in 4 Blockmatrizen aufteilen:

$$\mathbf{M} = \frac{1}{2} S \begin{pmatrix} A^\dagger \cdot A & A^\dagger \cdot A^\dagger \\ A \cdot A^\dagger & A \cdot A \end{pmatrix}$$

Im Weiteren werden nur die Einträge aufgeführt die ungleich 0 sind, somit ist die Matrix vollständig angegeben:

Matrixelemente der 1.+4. Blockmatrix (hier die 1., 4. ist analog):

$$\begin{aligned}
 \langle A_\mu^\dagger | M | A_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle A_\mu^\dagger | M | C_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle A_\mu^\dagger | M | E_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, \\
 \langle A_\mu^\dagger | M | H_\mu \rangle &= J_1 e^{+i\mu r_4}, & \langle A_\mu^\dagger | M | I_\mu \rangle &= J_1 e^{+i\mu r_4}, & & \\
 \langle B_\mu^\dagger | M | B_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle B_\mu^\dagger | M | C_\mu \rangle &= J_1, & \langle B_\mu^\dagger | M | D_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle B_\mu^\dagger | M | G_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_5}, & \langle B_\mu^\dagger | M | I_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_5}, & & \\
 \langle C_\mu^\dagger | M | A_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle C_\mu^\dagger | M | B_\mu \rangle &= J_1, & \langle C_\mu^\dagger | M | C_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle C_\mu^\dagger | M | D_\mu \rangle &= J_1, & \langle C_\mu^\dagger | M | E_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle D_\mu^\dagger | M | B_\mu \rangle &= J_1, & \langle D_\mu^\dagger | M | C_\mu \rangle &= J_1, & \langle D_\mu^\dagger | M | D_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle D_\mu^\dagger | M | F_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_5}, & \langle D_\mu^\dagger | M | H_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle E_\mu^\dagger | M | A_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle E_\mu^\dagger | M | C_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle E_\mu^\dagger | M | E_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle E_\mu^\dagger | M | F_\mu \rangle &= J_1, & \langle E_\mu^\dagger | M | G_\mu \rangle &= J_1, & & \\
 \langle F_\mu^\dagger | M | D_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_2}, & \langle F_\mu^\dagger | M | E_\mu \rangle &= J_1, & \langle F_\mu^\dagger | M | F_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle F_\mu^\dagger | M | G_\mu \rangle &= J_1, & \langle F_\mu^\dagger | M | H_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_2}, & & \\
 \langle G_\mu^\dagger | M | B_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_5}, & \langle G_\mu^\dagger | M | E_\mu \rangle &= J_1, & \langle G_\mu^\dagger | M | F_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle G_\mu^\dagger | M | G_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle G_\mu^\dagger | M | I_\mu \rangle &= J_1, & & \\
 \langle H_\mu^\dagger | M | A_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_4}, & \langle H_\mu^\dagger | M | D_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle H_\mu^\dagger | M | F_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_2}, \\
 \langle H_\mu^\dagger | M | H_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle H_\mu^\dagger | M | I_\mu \rangle &= J_1, & & \\
 \langle I_\mu^\dagger | M | A_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_4}, & \langle I_\mu^\dagger | M | B_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_5}, & \langle I_\mu^\dagger | M | G_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle I_\mu^\dagger | M | H_\mu \rangle &= J_1, & \langle I_\mu^\dagger | M | I_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & & \\
 \langle J_\mu^\dagger | M | J_\mu \rangle &= 6J_2, & & & & \\
 \langle K_\mu^\dagger | M | K_\mu \rangle &= 6J_2, & & & & \\
 \langle L_\mu^\dagger | M | L_\mu \rangle &= 6J_2, & & & & \\
 \langle M_\mu^\dagger | M | M_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle M_\mu^\dagger | M | N_\mu \rangle &= J_1, & \langle M_\mu^\dagger | M | O_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle M_\mu^\dagger | M | R_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_5}, & \langle M_\mu^\dagger | M | T_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_5}, & & \\
 \langle N_\mu^\dagger | M | M_\mu \rangle &= J_1, & \langle N_\mu^\dagger | M | N_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle N_\mu^\dagger | M | O_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle N_\mu^\dagger | M | P_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_2}, & \langle N_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle O_\mu^\dagger | M | M_\mu \rangle &= J_1, & \langle O_\mu^\dagger | M | N_\mu \rangle &= J_1, & \langle O_\mu^\dagger | M | O_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle O_\mu^\dagger | M | Q_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle O_\mu^\dagger | M | U_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle P_\mu^\dagger | M | N_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{-i\mu r_2}, & \langle P_\mu^\dagger | M | P_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle P_\mu^\dagger | M | Q_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle P_\mu^\dagger | M | R_\mu \rangle &= J_1, & \langle P_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle Q_\mu^\dagger | M | O_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle Q_\mu^\dagger | M | P_\mu \rangle &= J_1, & \langle Q_\mu^\dagger | M | Q_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle Q_\mu^\dagger | M | R_\mu \rangle &= J_1, & \langle Q_\mu^\dagger | M | U_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle R_\mu^\dagger | M | M_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_5}, & \langle R_\mu^\dagger | M | P_\mu \rangle &= J_1, & \langle R_\mu^\dagger | M | Q_\mu \rangle &= J_1, \\
 \langle R_\mu^\dagger | M | R_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle R_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & & \\
 \langle S_\mu^\dagger | M | N_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle S_\mu^\dagger | M | P_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_2}, & \langle S_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, \\
 \langle S_\mu^\dagger | M | T_\mu \rangle &= J_1 e^{i\mu r_1}, & \langle S_\mu^\dagger | M | U_\mu \rangle &= J_1 e^{-i\mu r_5}, & & \\
 \langle T_\mu^\dagger | M | M_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4} e^{i\mu r_5}, & \langle T_\mu^\dagger | M | R_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle T_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= J_1 e^{-i\mu r_1}, \\
 \langle T_\mu^\dagger | M | T_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & \langle T_\mu^\dagger | M | U_\mu \rangle &= J_1 e^{-i\mu r_2}, & & \\
 \langle U_\mu^\dagger | M | O_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle U_\mu^\dagger | M | Q_\mu \rangle &= \frac{J_1}{4}, & \langle U_\mu^\dagger | M | S_\mu \rangle &= J_1 e^{i\mu r_5}, \\
 \langle U_\mu^\dagger | M | T_\mu \rangle &= J_1 e^{i\mu r_2}, & \langle U_\mu^\dagger | M | U_\mu \rangle &= 2J_2 - J_1, & & \\
 \langle V_\mu^\dagger | M | V_\mu \rangle &= 6J_2, & & & & \\
 \langle W_\mu^\dagger | M | W_\mu \rangle &= 6J_2, & & & & \\
 \langle X_\mu^\dagger | M | X_\mu \rangle &= 6J_2, & & & &
 \end{aligned}$$

Anhang I

Mathematicaskript zur Berechnung der Eigenwerte

Das hier dargelegte Mathematicaskript automatisiert die Berechnung der Eigenwerte für die Diskussion der Spinwellendispersionen, sobald die 48×48 -Matrix bestimmt wurde. Diese wird hier aus den einzelnen Blöcken zusammengesetzt. Der letzte Befehl zeigt den Befehl zur dreidimensionalen Darstellung spezifischer Eigenwerte (hier Eigenwert 33 bis 39 in der hk_0 -Ebene) in Mathematica.

```
1 ClearAll[A, B, F, L, f, J1, J2, helpf]
2
3 J1 = 1.0;
4 J2 = 1.5;
5
6 A[k1_, k2_, k3_, kz_] :=
7 1/2 KroneckerProduct[{{1, 0, 0, 0}, {0, 1, 0, 0}, {0, 0, 1, 0}, {0,
8 0, 0, 1}}, {{2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0,
9 2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 2 J2 - J1, 0, 0,
10 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
11 {0, 0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0,
12 2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0,
13 0, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0, 0, 0, 0}, {0, 0,
14 0, 0, 0, 0, 0, 0, 2 J2 - J1, 0, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 6 J2, 0, 0}, {0, 0,
15 0, 6 J2, 0, 0}, {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 6 J2, 0}, {0, 0,
16 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 6 J2}}]
17
18 B[k1_, k2_, k3_, kz_] := 1/2 KroneckerProduct[{{1, 0}, {0, 1}},
19 {{0, 0, J1/4, 0, J1/4, 0, 0, J1 Exp[I k3], J1 Exp[I k3], 0, 0, 0,
20 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
21 {0, 0, J1, J1, 0, 0, J1/4 Exp[-I k2], 0, J1/4 Exp[-I k2], 0, 0, 0, 0,
22 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
23 {J1/4, J1, 0, J1, J1/4, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
24 0, 0, 0, 0, 0},
25 {0, J1, J1, 0, 0, J1/4 Exp[-I k1], 0, J1/4, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
26 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
27 {J1/4, 0, J1/4, 0, 0, J1, J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
28 0, 0, 0, 0},
29 {0, 0, 0, J1/4 Exp[I k1], J1, 0, J1, J1/4 Exp[I k1], 0, 0, 0, 0, 0,
30 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
31 {0, J1/4 Exp[I k2], 0, 0, J1, J1, 0, 0, J1/4, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
32 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
33 {J1 Exp[-I k3], 0, 0, J1/4, 0, J1/4 Exp[-I k1], 0, 0, J1, 0, 0, 0,
34 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
35 {J1 Exp[-I k3], J1/4 Exp[I k2], 0, 0, 0, 0, J1/4, J1, 0, 0, 0, 0,
36 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
37 {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
38 0, 0},
39 {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
40 0, 0},
41 {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
42 0, 0},
43 {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1, J1, 0, 0,
```

```

44     J1/4 Exp[-I k2], 0, J1/4 Exp[-I k2], 0, 0, 0, 0},
45     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1, 0, J1, J1/4 Exp[-I k1],
46     0, 0, J1/4, 0, 0, 0, 0, 0},
47     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1, J1, 0, 0, J1/4, 0, 0, 0,
48     J1/4, 0, 0, 0},
49     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4 Exp[I k1], 0, 0, J1,
50     J1, J1/4 Exp[I k1], 0, 0, 0, 0, 0},
51     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4, J1, 0, J1, 0, 0,
52     J1/4, 0, 0, 0},
53     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4 Exp[I k2], 0, 0, J1, J1,
54     0, 0, J1/4, 0, 0, 0, 0},
55     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4, 0, J1/4 Exp[-I k1],
56     0, 0, 0, J1 Exp[-I k1 - I k2], J1 Exp[-I k2], 0, 0, 0},
57     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4 Exp[I k2], 0, 0, 0, 0,
58     J1/4, J1 Exp[I k1 + I k2], 0, J1 Exp[I k1], 0, 0, 0},
59     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, J1/4, 0, J1/4, 0,
60     J1 Exp[I k2], J1 Exp[-I k1], 0, 0, 0, 0},
61     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
62     0, 0},
63     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
64     0, 0},
65     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
66     0, 0}}]
67
68 helpf[k1_, k2_, k3_,
69     kz_] := {{0, 0, -3/4 J1, 0, -3/4 J1, 0, 0, 0, 0, 0,
70     0, -J2 Exp[-I k3], 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
71     0, -J2 Exp[-I k3 + I kz ]},
72     {0, 0, 0, 0, 0, 0, -3/4 J1 Exp[I k2], 0, -3/4 J1 Exp[I k2], -J2, 0,
73     0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0, 0},
74     {-3/4 J1, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
75     0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0, 0},
76     {0, 0, 0, 0, 0, 0, -3/4 J1 Exp[I k1], 0, -3/4 J1, 0, -J2, 0, 0, 0, 0,
77     0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0, 0},
78     {-3/4 J1, 0, -3/4 J1, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
79     0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0},
80     {0, 0, 0, -3/4 J1 Exp[-I k1], 0, 0, 0, -3/4 J1 Exp[-I k1], 0,
81     0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0},
82     {0, -3/4 J1 Exp[-I k2], 0, 0, 0, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, -J2, 0, 0, 0,
83     0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz], 0},
84     {0, 0, 0, -3/4 J1, 0, -3/4 J1 Exp[I k1], 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0,
85     0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz]},
86     {0, -3/4 J1 Exp[-I k2], 0, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0,
87     0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I kz]},
88     {0, -J2, -J2, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, -J2, -J2, 0, 0, 0,
89     0, 0, 0, 0, 0},
90     {0, 0, 0, 0, -J2, -J2, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, -J2, -J2,
91     0, 0, 0, 0, 0},
92     {-J2 Exp[I k3], 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
93     0, -J2 Exp[-I k2], -J2 Exp[I k1], -J2, 0, 0, 0},
94     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
95     0, -3/4 J1 Exp[I k2], 0, -3/4 J1 Exp[I k2], 0, -J2, 0, 0},
96     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, -3/4 J1 Exp[I k1],
97     0, 0, -3/4 J1, 0, 0, -J2, 0, 0},
98     {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0,
99     0, -3/4 J1, -J2, 0, 0},
100    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, -3/4 J1 Exp[-I k1], 0, 0,
101    0, 0, -3/4 J1 Exp[-I k1], 0, 0, 0, -J2, 0},
102    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0, 0, 0,
103    0, -3/4 J1, 0, -J2, 0},
104    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, -3/4 J1 Exp[-I k2], 0, 0, 0,
105    0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0, -J2, 0},
106    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I k2], 0, -3/4 J1,
107    0, -3/4 J1 Exp[I k1], 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2 Exp[I k2]},
108    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
109    0, -J2 Exp[-I k1], -3/4 J1 Exp[-I k2], 0, 0, 0, 0, -3/4 J1, 0, 0,
110    0, 0, 0, -J2 Exp[-I k1]},
111    {0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, 0, 0, -3/4 J1, 0, -3/4 J1,
112    0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2},
113    {0, -J2 Exp[-I kz], -J2 Exp[-I kz], -J2 Exp[-I kz], 0, 0, 0, 0, 0, 0,
114    0, 0, 0, -J2, -J2, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
115    {0, 0, 0, 0, -J2 Exp[-I kz], -J2 Exp[-I kz], -J2 Exp[-I kz], 0, 0,

```

```

116 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0, -J2, -J2, -J2, 0, 0, 0, 0, 0, 0},
117 {-J2 Exp[I k3 - I kz], 0, 0, 0, 0, 0,
118 0, -J2 Exp[-I kz], -J2 Exp[-I kz], 0, 0, 0, 0, 0, 0, 0,
119 0, -J2 Exp[-I k2], -J2 Exp[I k1], -J2, 0, 0, 0}};
120
121 F[k1_, k2_, k3_, kz_] :=
122 1/2 (KroneckerProduct[{{0, 1}, {0, 0}}, helpf[k1, k2, k3, kz]] +
123 KroneckerProduct[{{0, 0}, {1, 0}},
124 Transpose[helpf[-k1, -k2, -k3, -kz]]])
125
126 L[k1_, k2_, k3_, kz_] :=
127 A[k1, k2, k3, kz] + B[k1, k2, k3, kz] + F[-k1, -k2, -k3, kz]
128
129  $\tau$  = KroneckerProduct[{{1, 0}, {0, -1}}, IdentityMatrix[24]];
130
131 f[kx_, ky_, kz_] :=
132 Chop[Sort[
133 Eigenvalues[ $\tau$ .L[kx + ky, kx - ky, kx + ky - kx + ky, kz]]],
134 10^-5] // N
135
136 Plot3D[{Re[f[kx, ky, 0][[33]]], Re[f[kx, ky, 0][[34]]],
137 Re[f[kx, ky, 0][[35]]], Re[f[kx, ky, 0][[36]]],
138 Re[f[kx, ky, 0][[37]]], Re[f[kx, ky, 0][[38]]],
139 Re[f[kx, ky, 0][[39]]]}, {kx, -2  $\pi$ ,
140 2  $\pi$ }, {ky, - $\pi$ ,  $\pi$ }]

```


Anhang J

Pythoncode für die Spinwellensimulation

Code zur Berechnung der aufeinanderfolgende Zeitschritte unter Verwendung des 8. Ordnung Runge-Kutta Prince Dormand Verfahren entsprechend 2.5.1 . Dieses wurde aus der Gnu Scientific Libraray entnommen und um den Vorteil der Rechengeschwindigkeit bei Programmen in C bei zu behalten, in eine eigenständige Bibliothek compiliert. Der restliche Code wurde in Python realisiert.

```
1  # -*- coding: utf8 -*-
2  import math
3  import numpy as np
4  import os
5  import copy
6  import sys
7  sys.path.append('/usr/users/iff_sm/reim/sharedTest/Simulation/MC_s_merge_spindispers/build
   /lib.linux-x86_64-2.6/')
8  import rungeKutta8pd
9  import resource
10
11  SpinKonfig=[]
12  J1=-1.0
13  J2=-1.5
14  border=[]
15  global globalzaehler
16
17  #Klasse f\"ur die Spins
18  class SpinClass(object):
19      def __init__(self, Specs, Nummer, Neighbors=None): #Nummer gibt die Stelle im Array an
20          self.xKoord=Specs[0]
21          self.yKoord=Specs[1]
22          self.zKoord=Specs[2]
23          self.xVec=Specs[3]
24          self.yVec=Specs[4]
25          self.zVec=Specs[5]
26          self.color=Specs[6]
27          self.neighbors = Neighbors
28          if self.neighbors is None:
29              self.neighbors=[]
30          self.nummer=Nummer
31
32      def __eq__(self,other):
33          return self.xKoord==other.xKoord and self.yKoord==other.yKoord and self.zKoord==other.
   zKoord and self.xVec==other.xVec and self.yVec==other.yVec and self.zVec==other.
   zVec and self.color==other.color
34
35      def __str__(self):
36          return "Koord(%f, %f, %f), Direc(%f, %f, %f), Color: %s, Nummer: %i" % (self.xKoord,
   self.yKoord, self.zKoord, self.xVec, self.yVec, self.zVec, self.
   color, self.
   nummer)
37
38  #   v   Koordinaten des Spins   v   #
```

```

39 def get_Koord(self):
40     return [self.xKoord, self.yKoord, self.zKoord]
41
42 def set_Koord(self, Koord):
43     self.xKoord=Koord[0]
44     self.yKoord=Koord[1]
45     self.zKoord=Koord[2]
46     return
47
48 def del_Koord(self):
49     del self.xKoord
50     del self.yKoord
51     del self.zKoord
52
53 Koord = property(get_Koord, set_Koord, del_Koord, "Koordinaten des Spins")
54 # ^ Koordinaten des Spins ^ #
55
56 # v Richtung des Spins v #
57 def get_Direc(self):
58     return [self.xVec, self.yVec, self.zVec]
59
60 def set_Direc(self, Direc):
61     self.xVec=Direc[0]
62     self.yVec=Direc[1]
63     self.zVec=Direc[2]
64     return
65
66 def del_Direc(self):
67     del self.xVec
68     del self.yVec
69     del self.zVec
70
71 Direc = property(get_Direc, set_Direc, del_Direc, "Richtung des Spins, nicht normiert")
72 # ^ Richtung des Spins ^ #
73
74 # v naechsten Nachbarn des Spins v #
75 def get_Neighbors(self):
76     return self.neighbors
77
78 def set_Neighbors(self,NeighborsIn):
79     self.neighbors=NeighborsIn
80     return
81
82 def del_Neighbors(self):
83     del self.neighbors
84
85 nN = property(get_Neighbors, set_Neighbors, del_Neighbors, "Die naechsten Nachbarn eines
86     Spins")
87 # ^ naechsten Nachbarn des Spins ^ #
88
89 # v Farbe bzw. Typ des Spins v #
90 def get_Color(self):
91     if self.color in ['1','2','3']:
92         return 'red'
93     elif self.color in ['5','6','7']:
94         return 'blue'
95     elif self.color in ['4','8']:
96         return 'green'
97
98 def set_Color(self,Color): #Neighbors ist array
99     self.color=Color
100     return
101
102 def del_Color(self):
103     del self.color
104
105 typ = property(get_Color, set_Color, del_Color, "Farbe bzw. Typ des Spins")
106 # ^ Farbe bzw. Typ des Spins ^ #
107
108 def dist(self,other): #Entfernung zwischen zwei Spins bestimmen
109     return math.sqrt((self.xKoord-other.xKoord)**2+(self.yKoord-other.yKoord)**2+(self.
110         zKoord-other.zKoord)**2)

```

```

109
110 def __mul__(self,other): #typ unterscheidung um sowohl skalarprod und skalar mal spin
    abzudecken
111     if other.__class__==SpinClass:
112         return self.xVec*other.xVec + self.yVec*self.yVec+ self.zVec*self.zVec
113     else:
114         return SpinClass([self.xKoord, self.yKoord, self.zKoord, self.xVec*other, self.yVec*
            other,self.zVec*other, self.color], self.nummer)
115
116 def __rmul__(self,other):
117     return SpinClass([self.xKoord, self.yKoord, self.zKoord, self.xVec*other, self.yVec*
            other,self.zVec*other, self.color], self.nummer)
118
119 def __add__(self,other): #da hier self.nummer gew\ahlt wird sollte unten die Summe
    immer links stehen
120     return SpinClass([(self.xKoord+other.xKoord)/2, (self.yKoord+other.xKoord)/2, (self.
            zKoord+other.xKoord)/2,self.xVec+other.xVec, self.yVec+other.yVec,self.zVec+other
            .zVec, self.color],self.nummer)
121
122 def __sub__(self,other):
123     return SpinClass([0,0,0,self.xVec-other.xVec, self.yVec-other.yVec,self.zVec-other.
            zVec, self.color],self.nummer)
124
125 class InputFile:
126     #von der IT entwickelte Routine zum Einlesen von simulierten Spinbildern
127     #wiederholtes Aufrufen der Routine liest die darauffolgenden Spinbilder ein
128
129
130 def bestimme_Nn(Spin,SpinKonfT): #die naechsten Nachbarn von "Spin" bestimmen, muessen
    Randbedingungen erfuehlt werden
131     global globalzaehler
132     NeighborsTemp=[]
133     for i in SpinKonfT:
134         if len(NeighborsTemp)==6:
135             break
136         elif Spin==i:
137             pass
138         elif Spin.dist(i)<3.142:
139             NeighborsTemp.append(i)
140     return NeighborsTemp
141
142 def restliche_Nachbarn(Spin):
143     global globalzaehler
144     if len(Spin.nN)<6:
145         globalzaehler+=1
146         temp_Spins=[]
147         x_shift=0
148         y_shift=0
149         yx_shift=0
150         z_shift=0
151         count=0
152         xgrenze=4.177
153         ygrenze=0.907
154         zgrenze=0.000000
155         Spintemp=copy.copy(Spin)
156         if (Spin.xKoord+0.568181*Spin.yKoord)<(border[0]+xgrenze):
157             x_shift+=75.3982
158             count+=1
159         elif (Spin.xKoord+border[1]-0.568181*Spin.yKoord)>(border[1]-xgrenze):
160             x_shift=-75.3982
161             count+=1
162         if Spin.yKoord<border[2]+ygrenze:
163             y_shift+=65.2968
164             yx_shift=-0.568181*65.2968
165             count+=1
166         elif Spin.yKoord>border[3]-ygrenze:
167             y_shift=-65.2968
168             yx_shift+=0.568181*65.2968
169             count+=1
170         if Spin.zKoord<=border[4]+zgrenze:
171             z_shift+=123.1248
172             count+=1

```

```
173     elif Spin.zKoord>=border[5]-zgrenze:
174         z_shift=-123.1248
175         count+=1
176     if count==1:
177         n=1
178     if count==2:
179         n=3
180     if count==3:
181         n=7
182
183     for i in range(0,n):
184         temp_Spins.append(copy.copy(Spin))
185
186     if count==1:
187         temp_Spins[0].xKoord+=x_shift
188         temp_Spins[0].yKoord+=y_shift
189         temp_Spins[0].xKoord+=yx_shift
190         temp_Spins[0].zKoord+=z_shift
191     if count==2:
192         if x_shift==0:
193             temp_Spins[0].xKoord+=yx_shift
194             temp_Spins[0].yKoord+=y_shift
195             temp_Spins[1].zKoord+=z_shift
196             temp_Spins[2].xKoord+=yx_shift
197             temp_Spins[2].yKoord+=y_shift
198             temp_Spins[2].zKoord+=z_shift
199
200         if y_shift==0:
201             temp_Spins[0].xKoord+=x_shift
202             temp_Spins[1].zKoord+=z_shift
203             temp_Spins[2].xKoord+=x_shift
204             temp_Spins[2].zKoord+=z_shift
205
206
207         if z_shift==0:
208             temp_Spins[0].xKoord+=x_shift
209             temp_Spins[1].xKoord+=yx_shift
210             temp_Spins[1].yKoord+=y_shift
211             temp_Spins[2].xKoord+=x_shift
212             temp_Spins[2].xKoord+=yx_shift
213             temp_Spins[2].yKoord+=y_shift
214
215     if count==3:
216         temp_Spins[0].xKoord+=x_shift
217         temp_Spins[1].yKoord+=y_shift
218         temp_Spins[1].xKoord+=yx_shift
219         temp_Spins[2].zKoord+=z_shift
220         temp_Spins[3].xKoord+=x_shift
221         temp_Spins[3].yKoord+=y_shift
222         temp_Spins[3].xKoord+=yx_shift
223         temp_Spins[4].zKoord+=z_shift
224         temp_Spins[4].xKoord+=x_shift
225         temp_Spins[5].yKoord+=y_shift
226         temp_Spins[5].xKoord+=yx_shift
227         temp_Spins[5].zKoord+=z_shift
228         temp_Spins[6].xKoord+=x_shift
229         temp_Spins[6].yKoord+=y_shift
230         temp_Spins[6].xKoord+=yx_shift
231         temp_Spins[6].zKoord+=z_shift
232
233     Abstand=[]
234     for Spin2 in SpinKonfig:
235         for temp_Spin in temp_Spins:
236             Abstand.append(temp_Spin.dist(Spin2))
237             if temp_Spin==Spin2:
238                 pass
239             elif temp_Spin.dist(Spin2)<4:
240                 Spin.nN.append(Spin2)
241
242 def initialisiere_Nn():
243     zaehler=0
244     for i in SpinKonfig:
```

```

245     i.nN=bestimme_Nn(i)
246     restliche_Nachbarn(i)
247     zaehler+=1
248     print zaehler
249     return
250
251 def schreibe_nNKonf():
252     nN_datei=open("naechstNachbar.sav","w")
253     for Spin in SpinKonfig:
254         Zeile='%i ' % Spin.nummer
255         for naechstN in Spin.nN:
256             Zeile=Zeile + '%i ' % naechstN.nummer
257         nN_datei.write(Zeile + '\n')
258     nN_datei.close()
259     return
260
261 def lese_nNKonf():
262     nN_datei=open("naechstNachbar.sav","r")
263     nN_Spins=nN_datei.readlines()
264     for Spin in nN_Spins:
265         Zeile=Spin.strip().split()
266         nN_zusammen=[]
267         for nN_einer in Zeile[1:]:
268             nN_zusammen.append(SpinKonfig[int(nN_einer)])
269         SpinKonfig[int(Zeile[0])].nN=nN_zusammen
270     nN_datei.close()
271     return
272
273 def berechne_SummeNN(Spin):
274     Summe=SpinClass([0,0,0,0, 0, 0, '0'],Spin.nummer)
275     for nN in Spin.nN:
276         if Spin.typ==nN.typ:
277             Summe=Summe+J1*nN
278         elif Spin.typ!=nN.typ:
279             Summe=Summe+J2*nN
280     Summe.nummer=Spin.nummer
281     Summe.color=Spin.color
282     Summe.Koord=Spin.Koord
283     return Summe
284
285
286
287 def schreibe_SpinKonfig(time=None): #wegschreiben der Konfiguration fuer die
    Fouriertransformation
288 #ob File oder Feld ist eigentlich egal, Feld waere wohl schneller, hierbei nicht zu
    verachten
289     lokaleListe=[]
290     if time==0:
291         #l\osche vorherige Simulation
292         print 'Die Spinkonfiguration fuer Zeit 0 wird geschrieben ...'
293         SpinKonf_datei=open("/local/reim/SpinKonf_test.sav","w")
294         SpinKonf_datei.write(str(len(SpinKonfig)) +'\n')
295         for Spin in SpinKonfig:
296             SpinKonf_datei.write('%f %f %f %f %f %f %s\n' % (Spin.xKoord, Spin.yKoord, Spin.
                zKoord, Spin.xVec, Spin.yVec, Spin.zVec, Spin.color))
297         SpinKonf_datei.close()
298     else:
299         #nun an den Zeitpunkt 0 nur noch anhaengen:
300         print 'Die Spinkonfiguration fuer Zeit %i wird geschrieben ...' % time
301         SpinKonf_datei=open("/local/reim/SpinKonf_test.sav","a")
302         SpinKonf_datei.write(str(len(SpinKonfig)) +'\n')
303         for Spin in SpinKonfig:
304             SpinKonf_datei.write('%f %f %f %f %f %f %s\n' % (Spin.xKoord, Spin.yKoord, Spin.
                zKoord, Spin.xVec, Spin.yVec, Spin.zVec, Spin.color))
305         SpinKonf_datei.close()
306
307     return
308
309 def initialisier_Spins(Data):
310     zaehler=0
311     for i in Data:
312         SpinKonfig.append(SpinClass(i, zaehler))

```

```

313     zaehler+=1
314     return
315
316 def spinDispersion(SpinKonfT,time, h): #hier wird die Spinkonstellation eingelesen,
    komplette Simulation berechnen und dann zu SpinKonf hinzuf\ugen
317     Summen=[]
318     for Spin in SpinKonfT:
319         Summen.append(berechne_SummeNN(Spin))
320     for Spin,Summe in zip(SpinKonfT,Summen):
321         Spin.Direc = rungeKutta8thOrder(Spin.Direc, Summe.Direc, time , h)
322     del Summen
323     return
324
325 # Berechnung der der Spin Bewegung mit Rungekutta 8th Ordnung
326 def rungeKutta8thOrder(Spin_Direc, nNSumme_Direc, time, h):
327     return rungeKutta8pd.wrapper(Spin_Direc,nNSumme_Direc,time, h)
328
329 def Nachbarspinanzahl():
330     #Kontrollroutine f\"ur die Anzahl n\"achster Nachbarn
331     return
332
333 def bestimme_MinMax():
334     xMin=1000
335     xMax=-1000
336     yMin=1000
337     yMax=-1000
338     zMin=1000
339     zMax=-1000
340
341     for Spin in SpinKonfig:
342         if Spin.xKoord<xMin:
343             xMin=Spin.xKoord
344         if Spin.yKoord<yMin:
345             yMin=Spin.yKoord
346         if Spin.zKoord<zMin:
347             zMin=Spin.zKoord
348         if Spin.xKoord>xMax:
349             xMax=Spin.xKoord
350         if Spin.yKoord>yMax:
351             yMax=Spin.yKoord
352         if Spin.zKoord>zMax:
353             zMax=Spin.zKoord
354
355     print 'xMin: %f' % xMin
356     print 'xMax: %f' % xMax
357     print 'yMin: %f' % yMin
358     print 'yMax: %f' % yMax
359     print 'zMin: %f' % zMin
360     print 'zMax: %f' % zMax
361     return [xMin,xMax,yMin,yMax,zMin,zMax]
362
363
364
365 if __name__ == "__main__" :
366     globalzaehler=0
367     try:
368         test=InputFile(sys.argv[1])
369     except IndexError:
370         test=InputFile('fort.101')
371
372     initialisier_Spins(test.get_data())
373     border =bestimme_MinMax()
374
375     if 'naechstNachbar.sav' not in os.listdir(os.getcwd()):
376         initialisiere_Nn()
377         Nachbarspinanzahl()
378         schreibe_nNKonf()
379     else:
380         lese_nNKonf()
381         print 'naechste Nachbarn wurden aus Datei gelesen: '
382         Nachbarspinanzahl()
383

```

```

384 h=0.01 #Schrittweite
385 tEnd=1000.0 #Endzeitpunkt
386 schreibe_SpinKonfig(0)
387 for i in range(0,int(tEnd/h)):
388     print 'Zeitpunkt %f wird simuliert ...'% ((i+1)*h)
389     spinDispersion(SpinKonfig, (i+1)*h, h)
390     schreibe_SpinKonfig(i+1)

```

Mit folgendem Programmcode werden die berechneten Zeitschritte erst einzeln im Raum und dann zusammen in der Zeit transformiert. Bei der Fouriertransformation in der Zeit, wird der abgedeckte Zeitraum durch vielfaches Anfügen wie in 2.5.2 beschrieben erweitert.

```

1  import math
2  import numpy as np
3  import os
4  import copy
5  import sys
6  import resource
7  import scipy as sp
8  #from __future__ import division
9  import math
10 import time
11
12 #SpinKofig=[]
13 #SofQT=[]
14 SofQW=0
15 qWerte=[]
16 wWerte=[]
17 FOLDER='/local/reim/'
18
19
20 #####SPINKLASSE#####
21 class SpinClass(object): #Klasse fuer die Spins
22     #wie in spindispers_simulation.py
23 #####SPINKLASSE#####
24
25
26 #####DATENEINLESEKLASSE#####
27 class InputFile:
28     #wie in spindispers_simulation.py
29 #####DATENEINLESEKLASSE#####
30
31 def dft_to_SofQT(SpinKonfT, verbose = False) :
32     global qWerte
33     t = time.clock()
34     zeroArray=[]
35     N = len(SpinKonfT) #Anzahl der Spins
36     s32=math.sqrt(3.0)*0.5
37     stepsizeX=0.5/6.0
38     stepsizeY=1.0/(math.sqrt(3)*6.0)
39     stepsizeZ=0.02
40
41     lowerboundX=-4 #Beschr\ankung des q-Raums auf die xAchse von -4 bis 4
42     upperboundX=4
43     lowerboundY=0
44     upperboundY=0
45     lowerboundZ=0
46     upperboundZ=0
47
48     tempList = fill_qmatrix(lowerboundX, lowerboundY, lowerboundZ, stepsizeZ,
49                             stepsizeX, stepsizeY, upperboundZ, upperboundY, upperboundX)
49     SofQT=np.zeros((3, len(tempList)), dtype=np.complex)
50     QMatrix=np.mat(tempList)
51     qWerte=np.array(np.mat(tempList).T)
52
53     i=0
54     for Spin in SpinKonfT : #eingabearray durchlaufen
55         SkalarQR= QMatrix*np.mat(Spin.Koord).T
56         SofQT+=np.dot(np.mat(Spin.Direc).T , np.exp( - 1j * SkalarQR).T)
57         i+=1

```

```

58     t = time.clock() - t
59     if verbose :
60         print "Computed a DFT of size",N,
61         print "in",t,"sec."
62     return SofQT
63
64 def fill_qmatrix(lowerboundX, lowerboundY, lowerboundZ, stepsizeZ, stepsizeX, stepsizeY,
65                 upperboundZ, upperboundY, upperboundX):
66     tempListE=[]
67     for x in range(int(lowerboundX/stepsizeX),int((upperboundX+stepsizeX)/stepsizeX+
68                 stepsizeX),1):
69         for y in range(int(lowerboundY/stepsizeY),int((upperboundY+stepsizeY)/stepsizeY+
70                 stepsizeY),1):
71             for z in range(int(lowerboundZ/stepsizeZ),int((upperboundZ+stepsizeZ)/stepsizeZ+
72                 stepsizeZ),1):
73                 #print z
74                 tempListE.append([x*stepsizeX,y*stepsizeY,z*stepsizeZ])#-x*0.5*stepsizeY
75     return tempListE
76
77 def TTransformFensterFunc(time, AnzahlZeiten):
78     return math.exp(-1.0/2.0 *((time-AnzahlZeiten/2.0)/(0.35*AnzahlZeiten/2.0))**2)
79
80 def dft_to_SofQW(SofQT, verbose = False) :
81     global wWerte
82     t = time.clock()
83     zeroArray=[]
84     Zeiten = len(SofQT) #Anzahl der simulierten Zeiten
85     stepsInQ=len(SofQT[0][0])
86     stepsizeW=0.1
87     stepsizeT=0.01
88     maxW=2
89
90     zeroArray=np.zeros((SofQT[0].shape[1],int(maxW/stepsizeW)), dtype=np.complex).T
91
92     SofQWx=np.mat(zeroArray).T
93     SofQWy=np.mat(zeroArray).T
94     SofQWz=np.mat(zeroArray).T
95
96     W = np.arange( 0., maxW, stepsizeW )
97     T = np.arange( 0., int(Zeiten*stepsizeT), stepsizeT )
98
99     tempListE=[]
100
101     for w in range(0,int(maxW/stepsizeW)):
102         tempListE.append(w*stepsizeW)
103     WMatrix=np.mat(tempListE)
104     wWerte=tempListE
105     TArray=[]
106
107     for t in range(0,Zeiten):
108         TArray.append(t*stepsizeT)
109
110     #Erg\ "anzung der Zeit nach plus minus unendlich
111     Zeitergaenzung =[]
112     Zeitergaenzung.append(0)
113     for i in range(1,1000):
114         Zeitergaenzung.append(i)
115         Zeitergaenzung.append(-i)
116
117     for Zeitfaktor in Zeitergaenzung:
118         for SofQ,Time in zip(SofQT,TArray) :
119             einhuellende=TTransformFensterFunc(Time, Zeiten)
120             vollstExponentialterm=np.exp(np.mat( - 1j * WMatrix*(Time+Zeitfaktor*Zeiten)))
121             SofQWx += einhuellende*np.dot(np.mat(SofQ[0]).T,
122                 vollstExponentialterm)
123             SofQWy += einhuellende*np.dot(np.mat(SofQ[1]).T,
124                 vollstExponentialterm)
125             SofQWz += einhuellende*np.dot(np.mat(SofQ[2]).T,
126                 vollstExponentialterm)

```

```

123         print "bei Zeitergaenzung: " + str(Zeitfaktor) + " von " + str(
124             Zeitergaenzung[-2]*2+1) + " Zeitergaenzungen."
125     t = time.clock() - t
126     if verbose :
127         print "Computed a DFT of size",str(Zeiten*Zeitergaenzung
128             [-2]*2+1),"to S(Q,w)",
129         print "in",t,"sec."
130     SofQW=np.array([SofQWx,SofQWy,SofQWz])
131     return SofQW
132
133 def umgebung_von_ZeitTrafo(SofQT):
134     SofQWFile=open(FOLDER+'SofQW.sav','w')
135     SofQWFilexDirec=open(FOLDER+'SofQWxDirec.map','w')
136     SofQWFileyDirec=open(FOLDER+'SofQWyDirec.map','w')
137     SofQWFilezDirec=open(FOLDER+'SofQWzDirec.map','w')
138     SofQWArray=dft_to_SofQW(SofQT, True)
139     SofQWFile.write(str(SofQWArray))
140     for qx,qy,qz,SofQWx,SofQWy,SofQWz in zip(qWerte[0],qWerte[1],qWerte[2],SofQWArray[0],
141         SofQWArray[1],SofQWArray[2]):
142         if qy==0 and qz==0:
143             for w,tri,tra,tru in zip(wWerte,SofQWx,SofQWy,SofQWz):
144                 SofQWFilexDirec.write("%f %f %f %f %f\n" %(qx, qy, qz, w,
145                     (np.abs(tri)**2+np.abs(tra)**2+np.abs(tru))/len(
146                         SpinKonfig)))
147                 SofQWFilexDirec.write("\n")
148             if qx==0 and qz==0:
149                 for w,tri,tra,tru in zip(wWerte,SofQWx,SofQWy,SofQWz):
150                     SofQWFileyDirec.write("%f %f %f %f %f\n" %(qx, qy, qz, w,
151                         (np.abs(tri)**2+np.abs(tra)**2+np.abs(tru))/len(
152                             SpinKonfig)))
153                     SofQWFileyDirec.write("\n")
154             if qx==0 and qy==0:
155                 for w,tri,tra,tru in zip(wWerte,SofQWx,SofQWy,SofQWz):
156                     SofQWFilezDirec.write("%f %f %f %f %f\n" %(qx, qy, qz, w,
157                         (np.abs(tri)**2+np.abs(tra)**2+np.abs(tru))/len(
158                             SpinKonfig)))
159                     SofQWFilezDirec.write("\n")
160         return
161
162 def schreibe_SofQT(SofQT,qWerte,i):
163     SofQTFilexyLayer=open(FOLDER+'SofQTxyLayer_' +str(i)+' .map','w')
164     qxlast=qWerte[0][0]
165     for qx,qy,qz,SofQTx,SofQTy,SofQTz in zip(qWerte[0],qWerte[1],qWerte[2],SofQT[-1][0],
166         SofQT[-1][1], SofQT[-1][2]):
167         if qxlast!=qx:
168             SofQTFilexyLayer.write("\n")
169         if qz ==0:
170             SofQTFilexyLayer.write("%f %f %f %f %f\n" %(qx, qy, qz, (np.abs(SofQTx)+np.abs(SofQTy)+
171                 np.abs(SofQTz))/len(SpinKonfig)))
172
173     qxlast=qx
174     SofQTFilexyLayer.close()
175     return
176
177 def initialisier_Spins(Data):
178     SpinKonfig=[]
179     zaehler=0
180     for i in Data:
181         SpinKonfig.append(SpinClass(i,zaehler))
182         zaehler+=1
183     return SpinKonfig
184
185 def berechne_SofQT(SpinKonf):
186     Summe=0
187     for Spin in SpinKonf:
188         Summe
189     return
190
191 def loesche_Spins():

```

```
184         return
185
186
187 def schneide(xRichtung, y):
188     return
189
190
191 if __name__ == "__main__" :
192     SofQT=[]
193     try:
194         test=InputFile(sys.argv[1])
195     except IndexError:
196         test=InputFile(FOLDER+'SpinKonf_test.sav')
197     #wenn mehrer Spinkonfigurationen in dem Spinfile vorhanden sind, dann liest
198     #erneutes lesen den naechsten
199     i=0
200     lauf=True
201     while lauf:
202         try:
203             SpinKonfig=np.array(initialisier_Spins(test.get_data()))
204             #berechne_SofQT(SpinKonfig)
205             SofQT.append(dft_to_SofQT(SpinKonfig,True))
206             print "Zeitpunkt %i wurde nach S(Q,t) transformiert" % i
207             i+=1 #zaehlt die Schritte in Zeit falls nicht alle berechneten
208             #Zeitpunkte auch verwendet werden sollen
209             if i==10000:
210                 lauf=False
211         except IOError:
212             print "Datenfile ist zuende"
213             break
214     umgebung_von_ZeitTrafo(SofQT)
```