

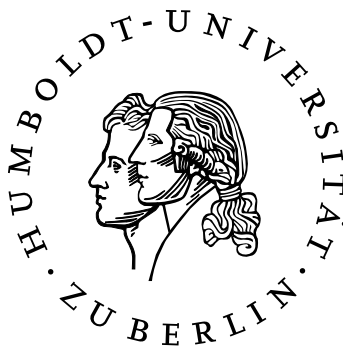
Der Einfluss von Unordnung auf den Magnetismus verdünnter Spinsysteme

Diplomarbeit

Humboldt-Universität zu Berlin

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät I

Institut für Physik



eingereicht von

Stefan Hilbert

geboren am 07.09.1976 in Strausberg

1. Gutachter: Prof. Dr. W. Nolting
2. Gutachter: Priv. Doz. Dr. B. Esser

Berlin, Dezember 2003

Inhaltsverzeichnis

1 Einführung	3
2 Das Heisenberg-Modell für verdünnte Spinsysteme	5
2.1 Das konzentrierte Spinsystem	7
2.2 Das verdünnte Spinsystem	14
2.3 Das Modell der Besetzungsindikatoren	15
2.4 Das Modell einer binären Legierung	18
2.5 Weitere Ansätze	21
2.6 Vergleich der Ansätze	23
2.7 Perkolation	24
3 Mittelung über Konfigurationsunordnung	27
3.1 Grundlegende Begriffe	28
3.2 Näherungen zur Substitutionsunordnung	34
3.3 Mittelung für teilweise besetzte Gitter	37
4 Konfigurationsmittelung für verdünnte Spinsysteme	39
4.1 Vorbereitungen	40
4.2 Die Virtual-Crystal Approximation	43
4.3 Die quadratische Näherung	46
4.4 Die Näherung von Montgomery, Krugler und Stubbs	52
4.5 Die Mean-Field-Näherung	58
4.6 Weitere Ansätze	62
5 Numerische Modellrechnungen	65
5.1 Analytische Vorbetrachtungen	67
5.2 Die Vorgehensweise bei den Modellrechnungen	70

5.3	Kommentare zur Vorgehensweise	72
5.4	Nichtpositive Eigenwerte	75
5.5	Kurzreichweitige Wechselwirkung	78
5.6	Langreichweitige ferromagnetische Wechselwirkung	87
5.7	Langreichweitige oszillierende Wechselwirkung	92
6	Zusammenfassung und Ausblick	95
A	Umordnen der Gitterplatzindizes	99
B	Fourier-Transformationen	103
C	Cluster und Eigenwerte	105
	Literaturverzeichnis	109

Kapitel 1

Einführung

In jüngster Vergangenheit hat die Entdeckung von Ferromagnetismus in *verdünnten magnetischen Halbleitern* (DMS, *diluted magnetic semiconductor*) große Aufmerksamkeit auf dem Gebiet der Materialforschung erregt. DMS bestehen aus einem unmagnetischen Halbleiter als *host material*, in den Atome mit einem permanenten magnetischen Moment in geringer Konzentration eingebettet sind. *Antiferromagnetische* und *Spinglas-artige* DMS sind bereits seit längerem bekannt [1], aber erst in den Neunziger Jahren des 20. Jahrhunderts gelang die Herstellung ferromagnetischer DMS. Typische Beispiele sind $\text{In}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ [2], $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ [3] und $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{N}$ [4], welche sich für Mangan-Konzentrationen von $x \approx 0.01$ bis $x \approx 0.05$ bei tiefen Temperaturen ferromagnetisch ordnen.

Das Interesse an ferromagnetischen DMS erklärt sich unter anderem daraus, dass sie eine große Vielfalt neuartiger technischer Anwendungen versprechen. Ihre potentiellen Einsatzgebiete reichen von Spinfiltern über verbesserte Mikroprozessoren und Speicherbausteine in konventionellen Computern bis hin zu kompletten Quantencomputern [5–9]. Allerdings liegt die Curie-Temperatur der meisten bisher untersuchten ferromagnetischen DMS noch unterhalb der Raumtemperatur, so dass sie für alltägliche Anwendungen weitgehend ungeeignet erscheinen. Für $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ beispielsweise wurde bisher eine Curie-Temperatur von $T_C = 110$ K bei einer Mangan-Konzentration von $x = 0.053$ erreicht [10–12].¹ Für $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{N}$ werden hingegen Curie-Temperaturen von bis zu 1 000 K vorhergesagt [15–17]. Experimentell bestimmte Werte im Bereich von 230 bis 370 K [4] bis hin zu aus Messungen bei Raumtemperatur extrapolierten 940 K [17] wurden bereits gemeldet, diese sind aber noch nicht hinreichend bestätigt. Die Fra-

¹In [13] geben Ku et al. an, dass mittels spezieller Herstellungsbedingungen und Nachbehandlung der Materialproben für $\text{Ga}_{0.915}\text{Mn}_{0.085}\text{As}$ -Schichten die Curie-Temperatur auf 150 K gesteigert werden konnte. Für ein Dreilageng- $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As-GaAs-Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ -System wurde sogar eine Curie-Temperatur von 160 K berichtet [14].

ge, ob bei derartigen Materialien tatsächlich eine Curie-Temperatur oberhalb Raumtemperatur erreicht werden kann, ist somit noch nicht zufriedenstellend geklärt.

Für die Identifizierung ferromagnetischer DMS mit einer möglichst hohen Curie-Temperatur spielt das theoretische Verständnis dieser Materialien eine wichtige Rolle. Da der Magnetismus in diesen Materialien von lokalisierten magnetischen Momenten getragen wird, stellt das Heisenberg-Modell [18] eine sehr realistische Beschreibung ihrer magnetischen Eigenschaften dar. Bisher ist jedoch noch keine exakte Lösung des Heisenberg-Modells bekannt; man ist daher auf Approximationstechniken angewiesen. Ursprünglich wurden solche Näherungsverfahren für *konzentrierte* magnetische Materialien wie MnO entwickelt, bei denen jeder Gitterplatz mit einem lokalisierten magnetischen Moment besetzt ist und das System somit Translationssymmetrie aufweist. In den verdünnten magnetischen Halbleitern sind hingegen nur wenige der Gitterplätze von magnetischen Atomen besetzt. Abgesehen von chemischer Nahordnung sind die besetzten Gitterplätze statistisch über das Kristallgitter verteilt. Diese *Substitutionsunordnung* zerstört die Translationssymmetrie des Gitters. Somit sind die konventionellen Näherungsverfahren für konzentrierte Systeme mit Translationssymmetrie nicht mehr direkt anwendbar und müssen modifiziert werden. Mit letzterem Problem befasst sich diese Arbeit. Insbesondere sollen verschiedene Techniken zur Behandlung der Substitutionsunordnung im Heisenberg-Modell vorgestellt und auch angewendet werden. Ein Hauptziel ist dabei, den Einfluss der Verdünnung auf den Magnetismus zu untersuchen. Zu diesem Zweck werden sowohl Methoden der Mittelung über Konfigurationsunordnung angewendet, als auch numerische Rechnungen zu endlichen Systemen durchgeführt. Die Arbeit ist dabei so aufgebaut, dass am Beginn eines jeden Kapitels eine tiefer gehende Einführung in die jeweils behandelte Problematik steht. Im dieser Einleitung folgenden zweiten Kapitel wird das Heisenberg-Modell für verdünnte Spinsysteme vorgestellt. Dabei werden unter anderem die verschiedenen für dieses Modell existierenden Ansätze miteinander verglichen. Das dritte Kapitel führt in die Methoden zur Mittelung über Konfigurationsunordnung ein, welche im vierten Kapitel konkrete Anwendung auf verdünnte Spinsysteme finden. Im fünften Kapitel werden numerische Untersuchungen zur Unordnung in verdünnten Spinsystemen durchgeführt. Den Abschluss der Arbeit bildet das sechste Kapitel mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und Vorschlägen für weitergehende Studien.

Kapitel 2

Das Heisenberg-Modell für verdünnte Spinsysteme

Das Heisenberg-Modell [18] dient zur Beschreibung der magnetischen Eigenschaften von permanenten lokalisierten magnetischen Momenten in Festkörpern, die direkt oder indirekt miteinander wechselwirken [19–21]. In Festkörpern werden permanente lokalisierte magnetische Momente im wesentlichen durch die Spins von Elektronen in Festkörperionen mit unvollständig gefüllten Elektronenschalen im Rumpf der Ionen hervorgerufen. Beispiele sind die Europium-Ionen in EuO, EuS und EuTe oder die Mangan-Ionen in MnO oder in $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$. Die Wechselwirkung zwischen den lokalisierten Momenten kann auf verschiedene Arten übertragen werden, zum Beispiel durch direkten Austausch, Superaustausch, Doppelaustausch oder über den RKKY-Mechanismus [19]. Da die Wechselwirkung in das Heisenberg-Modell nur in Form einer effektiven Wechselwirkung eingeht, werden die magnetischen Eigenschaften einer ganzen Reihe magnetischer Materialien mit lokalisierten magnetischen Momenten recht realistisch durch das Heisenberg-Modell beschrieben.

Obwohl das nach ihm benannte Modell schon 1928 von Werner Heisenberg vorgeschlagen wurde, konnte das zugehörige Vielteilchenproblem bis heute nicht exakt gelöst werden. Man ist also auf Näherungen angewiesen. Eine einfache Näherung stellt die *Mean-Field Approximation* (MFA) dar. Sie bildet das Heisenberg-Modell auf das Modell eines Weißschen Magneten ab und erlaubt die Berechnung charakteristischer Eigenschaften wie der Magnetisierung, Suszeptibilität und spezifischen Wärme in Abhängigkeit von der Temperatur. Die MFA überschätzt bei ferromagnetischen Systemen in der Regel die Curie-Temperatur und liefert auch nicht das in Experimenten gefundene Tieftemperaturverhalten der Magnetisierung (Blochsches $T^{3/2}$ -Gesetz [20]). Aus diesem Grund sind die verschiedenen *Spinwellentheorien* [22–25] entwickelt worden. Bei ihnen handelt es sich

um Tieftemperaturnäherungen. Sie beschreiben die Abweichung der Magnetisierung vom Grundzustand bei endlichen Temperaturen durch die Ausbildung von als *Magnonen* oder *Spinwellen* bezeichneten Quasiteilchen im System [20,21]. Die Theorie der *Linearen Spinwellen* von Holstein und Primakoff [22] vernachlässigt die Wechselwirkung dieser Quasiteilchen untereinander und ist deshalb nur für sehr tiefe Temperaturen geeignet, da dort nur wenige Magnonen im System vorhanden sind. Die *Tyablikov-Näherung* [23] und die Methode der *renormierten Spinwellen* nach Dyson [24, 25] berücksichtigen hingegen näherungsweise die Wechselwirkung der Magnonen untereinander und können deshalb auch für höhere Temperaturen verwendet werden [20,21].

Beim herkömmlichen Heisenberg-Modell geht man davon aus, dass die lokalisierten magnetischen Momente – im folgenden der Kürze halber einfach als *Spins* bezeichnet – auf einem Kristallgitter verteilt sind und dass jeder Gitterplatz des Kristalls mit einem Spin besetzt ist. Ein solches System wird als *konzentriertes Spinsystem* bezeichnet. Falls sich hingegen die Spins des Systems nicht auf den Gitterplätzen eines Kristallgitters befinden, so spricht man von einem *amorphen Spinsystem*. Gegenstand dieser Arbeit ist das Heisenberg-Modell für *verdünnte Spinsysteme*. In diesem Fall befinden sich zwar alle Spins auf einem Gitterplatz eines Kristallgitters, aber ein festgelegter Anteil der Gitterplätze ist nicht mit einem Spin besetzt.

Im Gegensatz zu konzentrierten Spinsystemen sind verdünnte Spinsysteme – wie auch amorphe Spinsysteme – nicht translationsinvariant. Mit Ausnahme der Mean-Field Approximation verwenden jedoch alle hier erwähnten Näherungen für konzentrierte Spinsysteme die Translationsinvarianz des Systems bei der Berechnung der magnetischen Eigenschaften. Im Falle eines verdünnten Spinsystems führt das Fehlen der Translationsinvarianz zu Problemen, denen mit zusätzlichen Näherungen begegnet werden muss. Dafür scheint die Tyablikov-Näherung besonders geeignet, auf welche sich deshalb diese Arbeit bei der Behandlung des Heisenberg-Modells konzentriert. Die Tyablikov-Näherung hat sich nicht nur bei der Beschreibung konzentrierter Spinsysteme bewährt, sondern besitzt zudem den Vorteil, dass sie Zugang zu den Methoden der Mittelung über Konfigurationsunordnung bietet, welche ursprünglich für die Berechnung elektronischer Eigenschaften ungeordneter metallischer Legierungen entwickelt wurden [26,27]. Außerdem können endliche Spinsysteme – wie sich zeigen wird – im Rahmen der Tyablikov-Näherung mit vertretbarem Rechenaufwand numerisch exakt behandelt werden.

Im Folgenden soll zunächst die Frage nach einer korrekten und handhabbaren Formulierung des Heisenberg-Modells für verdünnte Spinsysteme diskutiert werden. Dabei werden verschiedene Ansätze miteinander verglichen. Ferner wird auf das Problem der Perkolation bei Verdünnung eingegangen. Konkrete Methoden zur Berechnung der magnetischen Eigenschaften verdünnter Spinsysteme werden in den anschließenden Kapiteln diskutiert.

2.1 Das konzentrierte Spinsystem

Zur Einführung der Tyablikov-Näherung wird in diesem Abschnitt das Heisenberg-Modell eines konzentrierten Spinsystems diskutiert. Für das konzentrierte Spinsystem, in welchem alle Gitterplätze mit einem Spin besetzt sind, lautet der Hamilton-Operator des isotropen Heisenberg-Modells

$$H = - \sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z. \quad (2.1)$$

Dabei indizieren i und j die Gitterplätze und $\mathbf{S}_i = (S_i^x, S_i^y, S_i^z)$ ist der Operator des am Gitterplatz i lokalisierten Spins [20,21]. Die Summen im Hamilton-Operator erstrecken sich über alle Gitterplätze, wobei deren Gesamtzahl gleich N sei. Für die Austauschparameter J_{ij} wird

$$J_{ij} = J_{ji} = J(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) \quad \text{und} \quad J_{ii} = 0 \quad (2.2)$$

angenommen [20,21]. Dabei bezeichnet \mathbf{R}_i den Gittervektor des i -ten Gitterplatzes. Ferner koppelt im Hamilton-Operator (2.1) ein homogenes externes Magnetfeld $\mathbf{B} = (0, 0, B)$ mit $B > 0$ an die mit den Spins verbundenen magnetischen Momente. Das externe Magnetfeld wird benötigt, um die Rotationssymmetrie des Hamilton-Operators (2.1) aufzuheben und damit eine endliche Magnetisierung zu ermöglichen. Es werden periodische Randbedingungen angenommen. Damit ist der Hamilton-Operator (2.1) translationsinvariant.

Die Natur des Grundzustands des durch den Hamilton-Operator (2.1) beschriebenen Spinsystems hängt neben der Stärke des Magnetfeldes von der Wahl der Austauschparameter J_{ij} ab. Da hier nur ferromagnetische Spinsysteme betrachtet werden, wird angenommen, die J_{ij} seien so gewählt, dass im Grundzustand alle Spins des Systems maximal parallel ausgerichtet sind. Die Richtung der z -Achse ist so gewählt, dass sie mit der Orientierung der Spins zusammenfällt. Somit ist der

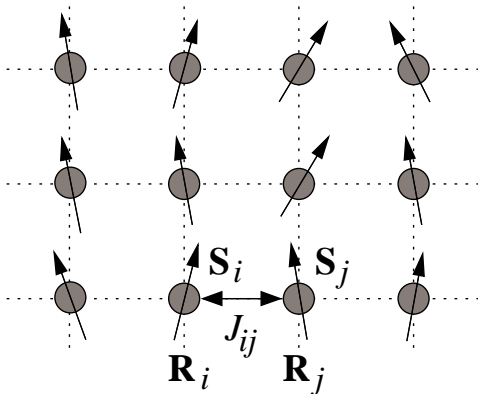


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung eines konzentrierten Spinsystems. Alle Plätze des Kristallgitters sind mit einem Spin besetzt. Die Stärke der Wechselwirkung zwischen den Spins \mathbf{S}_i und \mathbf{S}_j an den Gitterplätzen i und j mit den Gittervektoren \mathbf{R}_i und \mathbf{R}_j wird durch den Austauschparameter J_{ij} beschrieben.

total ausgerichtete Zustand

$$|S\rangle = | \langle S_i^z \rangle = S \forall i \in \{1, \dots, N\} \rangle \quad (2.3)$$

der Grundzustand des Systems.

Wie bereits mehrfach erwähnt wurde, ist man bei der Behandlung des Heisenberg-Modells auf Näherungen angewiesen, von denen hier insbesondere die Tyablikov-Näherung verwendet werden soll. Die Tyablikov-Näherung nutzt zur Untersuchung der magnetischen Eigenschaften des Modells die energieabhängige retardierte Kommutator-Green-Funktion

$$G_{ij}(E) = \left\langle\left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret}, \quad (2.4)$$

welche aus den Stufenoperatoren

$$S_i^\pm = S_i^x \pm i S_i^y \quad (2.5)$$

aufgebaut ist [21]. Die Bewegungsgleichung für $G_{ij}(E)$ ergibt [21]:

$$(E - gJ\mu_B B) G_{ij}(E) = 2\hbar^2 \delta_{ij} \langle S_i^z \rangle + 2\hbar \sum_m J_{im} \left(\left\langle\left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret} - \left\langle\left\langle S_m^+ S_i^z; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret} \right). \quad (2.6)$$

Neben dem Erwartungswert $\langle S_i^z \rangle$ der z -Komponente des Spins S_i , im folgenden kurz als *Magnetisierung* bezeichnet, stehen auf der rechten Seite der Gleichung die noch unbekannteren höheren Green-Funktionen $\left\langle\left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret}$ und $\left\langle\left\langle S_m^+ S_i^z; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret}$. Die Tyablikov-Näherung besteht nun darin, an diesen eine Hartree-Fock-Entkopplung durchzuführen. Mit $\langle S_i^+ \rangle \equiv 0$ (nach Voraussetzung $\langle S_i^x \rangle = \langle S_i^y \rangle \equiv 0$) bedeutet dies:

$$\left\langle\left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret} \xrightarrow{i \neq m} \langle S_m^z \rangle G_{ij}(E). \quad (2.7)$$

Ferner kann wegen der Translationsinvarianz eine gitterplatzunabhängige Magnetisierung

$$\langle S_i^z \rangle \equiv \langle S^z \rangle \quad (2.8)$$

angenommen werden. Damit reduziert sich die Bewegungsgleichung zu

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - J_0 \right) \delta_{im} + J_{im} \right) G_{mj} = \delta_{ij} \quad (2.9)$$

mit

$$J_0 = \sum_n J_{in}. \quad (2.10)$$

Die Matrixnotation erlaubt es, die Gleichungen für die Green-Funktion $G_{ij}(E)$ kurz und übersichtlich aufzuschreiben. In der Matrixnotation enthält die Matrix \mathbf{G} als Matrixelemente die von den Gitterplätzen i und j abhängige Größen G_{ij} ($i, j \in \{1 \dots N\}$). Die anderen Größen in der Bewegungsgleichung (2.9) werden in der Matrixnotation in gleicher Weise zu Matrizen zusammengefasst. Somit lässt sich die Bewegungsgleichung (2.9) schreiben als

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - J_0 \mathbf{1} + \mathbf{J} \right) \mathbf{G} = \mathbf{1}. \quad (2.11)$$

Die formale Lösung dieser Gleichung lautet in Matrixnotation

$$\mathbf{G} = \hbar \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - J_0 \mathbf{1} + \mathbf{J} \right)^{-1}. \quad (2.12)$$

Wegen Translationsinvarianz diagonalisiert ein Übergang

$$G_{ij}(E) \longrightarrow G_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(E) = \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} G_{ij}(E) e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \quad (2.13)$$

zu Wellenzahlen \mathbf{k} mittels räumlicher Fourier-Transformation diese Gleichung:

$$G_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}(E) = G_{\mathbf{k}}(E) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (2.14)$$

mit

$$G_{\mathbf{k}}(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - E_{\mathbf{k}} + i0^+}. \quad (2.15)$$

Der eingefügte infinitesimale imaginäre Part $i0^+$ sorgt dafür, dass die retardierte Green-Funktion $\mathbf{G}(E)$ für reelle Energien E die korrekten physikalischen Randbedingungen erfüllt [21].

Die Anregungsenergien

$$E_{\mathbf{k}} = g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}}) \quad (2.16)$$

mit der Fourier-transformierten Austauschwechselwirkung

$$J_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N} \sum_{ij} J_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} \quad (2.17)$$

können mit einem Quasiteilchen assoziiert werden, welches man *Magnon* nennt. Wie sich am Zeemann-Term $g_J \mu_B B$ in den Teilchenenergien $E_{\mathbf{k}}$ zeigt, hat dieses Spin $S = 1$ und ist somit ein Boson. Der Ein-Magnon-Zustand

$$|\mathbf{k}\rangle = S_{\mathbf{k}}^- |S\rangle = \frac{1}{\sqrt{N}} \sum_i e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} S_i^- |S\rangle \quad (2.18)$$

entspricht einem Zustand des Spinsystems, bei dem die Gesamtmagnetisierung gegenüber dem total ausgerichteten Zustand $|S\rangle$ um Eins verringert ist:

$$\langle \mathbf{k} | \sum_i S_i^z | \mathbf{k} \rangle = \hbar (NS - 1) . \quad (2.19)$$

Dabei ist die Spinabweichung gleichmäßig über alle Spins verteilt:

$$\langle \mathbf{k} | S_i^z | \mathbf{k} \rangle = \hbar \left(S - \frac{1}{N} \right) \quad \forall i \in 1 \dots N . \quad (2.20)$$

Zuweilen werden Magnonen im konzentrierten Spinsystem auch als Spinwellen bezeichnet [21]. Die Anregungsenergien $E_{\mathbf{k}}$ sind über $\langle S^z \rangle$ temperaturabhängig. Der Erwartungswert $\langle S^z \rangle$ lässt sich mittels der Spektraldichte

$$S_{\mathbf{k}}(E) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{\mathbf{k}}(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_{\mathbf{k}}) \quad (2.21)$$

beziehungsweise deren lokaler Form

$$S_{ii}(E) = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{ii}(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \delta(E - E_{\mathbf{k}}) \quad (2.22)$$

und dem Spektraltheorem

$$\begin{aligned} \langle S_i^- S_i^+ \rangle &= \frac{1}{\hbar} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{S_{ii}(E)}{e^{\beta E} - 1} dE = \frac{1}{N\hbar} \sum_{\mathbf{k}} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{S_{\mathbf{k}}(E)}{e^{\beta E} - 1} dE \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{2\hbar \langle S^z \rangle}{e^{\beta E_{\mathbf{k}}} - 1} \end{aligned} \quad (2.23)$$

berechnen [21]. Hierbei wurde die übliche Abkürzung $\beta = 1/k_{\text{B}}T$ verwendet, wobei T die Temperatur und k_{B} die Boltzmann-Konstante bezeichnet.

Für $S = 1/2$ ergibt sich wegen

$$\langle S_i^z \rangle = \hbar S - \frac{1}{\hbar} \langle S_i^- S_i^+ \rangle \quad (2.24)$$

aus Gleichung (2.23) und (2.8) die implizite Gleichung

$$\begin{aligned} \langle S^z \rangle &= \hbar S - \frac{1}{\hbar} \langle S_i^- S_i^+ \rangle = \hbar S - 2 \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\beta E_{\mathbf{k}}} - 1} \\ &= \frac{\hbar S}{1 + \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{q}} (e^{\beta E_{\mathbf{q}}} - 1)^{-1}} . \end{aligned} \quad (2.25)$$

welche in der Regel durch Iteration gelöst wird, da die $E_{\mathbf{k}}$ noch $\langle S^z \rangle$ -abhängig sind.

Hier wird angenommen, dass das System einen ferromagnetischen Grundzustand hat. In diesem Fall ergibt sich in dreidimensionalen Systemen bei niedrigen Temperaturen eine endliche Magnetisierung $\langle S^z \rangle > 0$ selbst für ein infinitesimales Magnetfeld $B = 0^+$. Das System hat also eine spontane Magnetisierung. Oberhalb einer kritischen Temperatur, der Curie-Temperatur T_C , ist das System hingegen paramagnetisch, das heißt $\langle S^z \rangle \xrightarrow{B \rightarrow 0^+} 0$. Der Phasenübergang von der ferromagnetischen zur paramagnetischen Phase ist von zweiter Art. Die Magnetisierung geht stetig gegen Null, wenn man sich der Curie-Temperatur von unten nähert. Somit lässt sich für $S = 1/2$ die Curie-Temperatur durch eine Entwicklung der Gleichung (2.25) für kleine $\langle S^z \rangle$ bestimmen:

$$\begin{aligned} \langle S^z \rangle &= \frac{\partial}{\partial \langle S^z \rangle} \frac{\hbar S}{1 + \frac{2}{N} \sum_{\mathbf{q}} (e^{\beta E_{\mathbf{k}}} - 1)^{-1}} \Big|_{\langle S^z \rangle = 0} \langle S^z \rangle + \mathcal{O}(\langle S^z \rangle^2) \\ &= \beta \left(\frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\hbar^2 (J_0 - J_{\mathbf{k}})} \right)^{-1} \langle S^z \rangle + \mathcal{O}(\langle S^z \rangle^2). \end{aligned} \quad (2.26)$$

Damit ergibt sich für $S = 1/2$ die Curie-Temperatur:

$$k_B T_C = \left(\frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\hbar^2 (J_0 - J_{\mathbf{k}})} \right)^{-1}. \quad (2.27)$$

Die Berechnung der Magnetisierung für $S > 1/2$ kann durch einen erweiterten Satz von Green-Funktionen erfolgen. In der Literatur existieren verschiedene Ansätze dafür [28–32]. Folgt man [28], so lässt sich für allgemeine Spins S die Magnetisierung aus der mittleren Magnonenzahl

$$\Phi = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\beta E_{\mathbf{k}}} - 1} \quad (2.28)$$

wie folgt berechnen [29]:

$$\langle S^z \rangle = \hbar \frac{(1 + S + \Phi) \Phi^{2S+1} + (S - \Phi) (1 + \Phi)^{2S+1}}{(1 + \Phi)^{2S+1} - \Phi^{2S+1}}. \quad (2.29)$$

Die Curie-Temperatur ergibt sich für allgemeine Spins aus

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S (S + 1) \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{J_0 - J_{\mathbf{k}}} \right)^{-1}. \quad (2.30)$$

Zur Berechnung der in der Bestimmungsgleichung (2.28) auftretenden Anregungsenergien $E_{\mathbf{k}}$ ist die Green-Funktion (2.4) ausreichend. Die explizite Berechnung weiterer Green-Funktionen im Falle von $S > 1/2$ ist für die Berechnung der Magnetisierung und der Curie-Temperatur nicht notwendig.

Als erstes Anwendungsbeispiel für die Tyablikov-Näherung wird im folgenden ein konzentriertes Spinsystem von $S = 1/2$ -Spins auf einem einfach-kubischen Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung betrachtet. Zunächst wird die Fourier-Transformierte $J_{\mathbf{k}}$ der Austauschwechselwirkung benötigt. Für das einfach-kubische Gitter mit Gitterkonstante a und Nächster-Nachbar-Wechselwirkung der Stärke J^0 ergibt sich:

$$J_{\mathbf{k}} = 2J^0 (\cos(ak_x) + \cos(ak_y) + \cos(ak_z)) . \quad (2.31)$$

Die Green-Funktion ist somit

$$G_{\mathbf{k}}(E) = \frac{c 2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}} + i0^+} , \quad (2.32)$$

wobei als Abkürzung

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = 6 - 2 \cos(ak_x) - 2 \cos(ak_y) - 2 \cos(ak_z) \quad (2.33)$$

verwendet wurde.

In Abbildung 2.2 ist der daraus resultierende Verlauf der Dispersionsrelation

$$E_{\mathbf{k}} = g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}} \quad (2.34)$$

für die Magnonen dargestellt.

Die lokale Spektraldichte

$$S_{ii}(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \delta(E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}}) \quad (2.35)$$

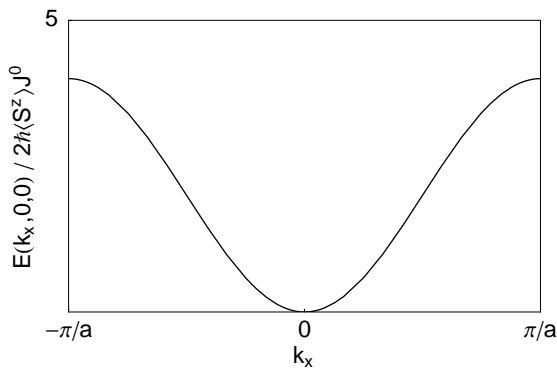


Abbildung 2.2: Magnonendispersion entlang der k_x -Achse für ein einfach-kubisches Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes B .

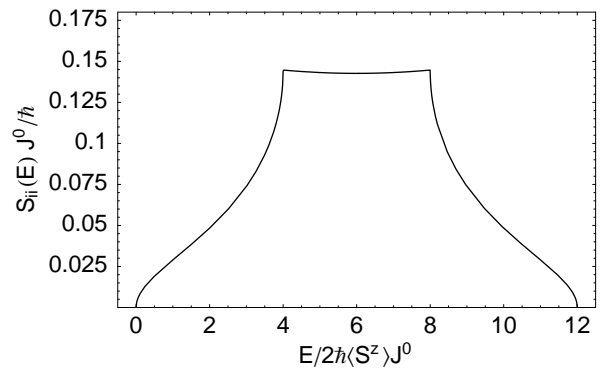


Abbildung 2.3: Die lokale Spektraldichte $S_{ii}(E)$ für ein einfach-kubisches Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung und $B = 0$.

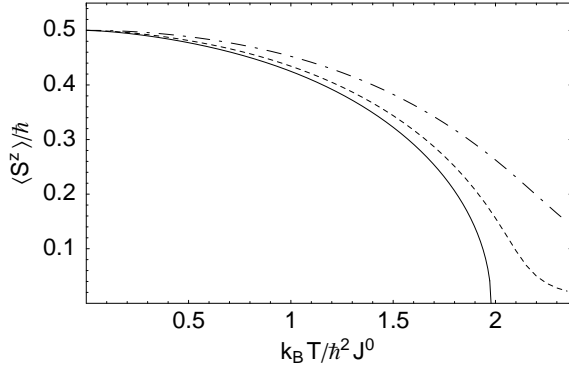


Abbildung 2.4: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur T für ein einfach-kubisches Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung für $B = 0$ (volle Linie), $g_J \mu_B B = 0.01 \hbar^2 J^0$ (gestrichelte Linie) und $g_J \mu_B B = 0.1 \hbar^2 J^0$ (Punkt-Strich-Linie).

ist in Abbildung 2.3 zu sehen. Diese muss man heutzutage nicht mehr selbst über die aufwendige \mathbf{k} -Summe berechnen, da in der Literatur [33] sehr gute, wesentlich einfacher zu berechnende Näherungsformeln für die aus der Dispersionsrelation (2.33) folgende Zustandsdichte

$$\rho^{\text{sc}}(\epsilon) = \frac{d}{d\epsilon} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \Theta(\epsilon - \epsilon_{\mathbf{k}}) \quad (2.36)$$

zu finden sind. Dabei ist

$$\Theta(x) = \begin{cases} 0 & x < 0 \\ 1 & x \geq 0 \end{cases} \quad (2.37)$$

die Stufenfunktion. Mit $\rho^{\text{sc}}(\epsilon)$ folgt dann:

$$S_{ii}(E) = \frac{\hbar}{J^0} \rho^{\text{sc}} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle J^0} \right). \quad (2.38)$$

Die mit der mittleren Magnonenzahl

$$\Phi = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{e^{\beta E_{\mathbf{k}}} - 1} = \int_{-\infty}^{\infty} \frac{\rho^{\text{sc}}(\epsilon)}{e^{\beta g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \beta J^0 \epsilon} - 1} d\epsilon \quad (2.39)$$

iterativ aus der Gleichung (2.29) berechnete Magnetisierung ist in Abbildung 2.4 dargestellt.

Für die Curie-Temperatur ergibt sich:

$$k_B T_C = \frac{\hbar^2 J^0}{2} \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\epsilon_{\mathbf{k}}} \right)^{-1} \approx 1.98 \hbar^2 J^0. \quad (2.40)$$

Dieser Wert ist um ein Drittel niedriger als der Wert $3\hbar^2 J^0$, welchen die Mean-Field-Näherung liefert (siehe Gleichung (4.127) in Abschnitt 4.5).

2.2 Das verdünnte Spinsystem

Nun sollen Systeme betrachtet werden, bei denen einige Spins von zufällig ausgewählten Gitterplätzen entfernt wurden. Als erstes wird ein Modell untersucht, bei dem die nicht besetzten Gitterplätze komplett aus der Betrachtung herausgehalten werden. Dieser Ansatz dient als Referenz für die anderen Ansätze zu Beschreibung verdünnter Spinsysteme und stellt später den Ausgangspunkt für Rechnungen zu endlichen Systemen dar.

Ein System, bei dem die Spins nicht alle Plätze eines Gitters besetzen, kann durch den – im allgemeinen nicht translationsinvarianten – Hamilton-Operator

$$H = -\sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z \quad (2.41)$$

beschrieben werden, wobei in den Summen die Indizes nur über die besetzten Gitterplätze laufen. Die Green-Funktion

$$G'_{ij}(E) = \left\langle \left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret}, \quad (2.42)$$

von der angenommen wird, dass sie auch nur für besetzte Gitterplätze definiert ist, genügt dann der Bewegungsgleichung

$$(E - g_J \mu_B B) G'_{ij}(E) = 2\hbar^2 \delta_{ij} \langle S_i^z \rangle + 2\hbar \sum_m J_{im} \left(\left\langle \left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} - \left\langle \left\langle S_m^+ S_i^z; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} \right). \quad (2.43)$$

Auch hier läuft der Index m in der Summe auf der rechten Seite der Gleichung nur über die besetzten Gitterplätze.

Mit der Tyablikov-Entkopplung für die höheren Green-Funktionen in (2.43) und der Annahme $\langle \mathbf{S}_i \rangle \equiv (0, 0, \langle S^z \rangle)$ ergibt sich somit:

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n J_{in} \right) \delta_{im} + J_{im} \right) G'_{mj} = \delta_{ij}. \quad (2.44)$$

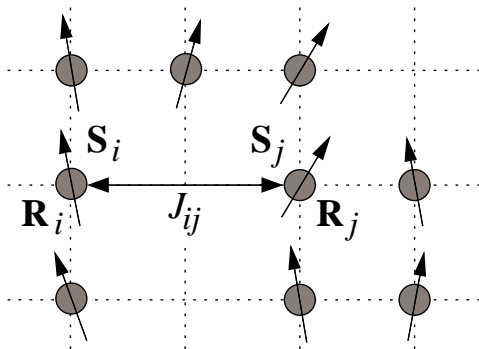


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung eines verdünnten Spinsystems. Die Spins besetzen einen Teil der Gitterplätze eines Kristallgitters, die restlichen Gitterplätze bleiben unbesetzt.

Die Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ stellt hier eine Näherung dar, da die $\langle S_i^z \rangle$ von den nicht notwendig äquivalenten Umgebungen der Gitterplätze abhängen. Eine Berücksichtigung der Gitterplatzabhängigkeit von $\langle S_i^z \rangle$ würde allerdings eine erhebliche Komplikation bedeuten, insbesondere in Bezug auf die selbstkonsistente Berechnung der Magnetisierung. Die Gleichung (2.44) kann auch als Matrixgleichung geschrieben werden, wenn man die spezielle Indizierung beachtet:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \right) \mathbf{1} - \mathbf{D} + \mathbf{J} \right) \mathbf{G}' = \mathbf{1}, \quad (2.45)$$

wobei

$$D_{ij} = \sum_n J_{in} \delta_{ij}. \quad (2.46)$$

Von der aus dieser Bewegungsgleichung folgenden Näherung für die Green-Funktion \mathbf{G}' wird in der vorliegenden Arbeit angenommen, dass sie eine adäquate Beschreibung der magnetischen Eigenschaften verdünnter Spinsysteme liefert. Die formale Lösung der Gleichung (2.45) ist durch

$$\mathbf{G}' = \mathbf{A}^{-1} \quad (2.47)$$

mit

$$\mathbf{A} = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D} + \mathbf{J} \right) \quad (2.48)$$

gegeben. Allerdings ist \mathbf{A} nicht translationsinvariant. Somit diagonalisiert eine Fourier-Transformation diese Matrix nicht mehr, und damit lässt sich \mathbf{A}^{-1} nicht mehr ohne weiteres berechnen. Bevor dieses Problem in den späteren Kapiteln bearbeitet wird, sollen in den folgenden Abschnitten dieses Kapitels weitere Ansätze zur Beschreibung verdünnter Spinsysteme betrachtet werden. Dabei soll deren Brauchbarkeit insbesondere daran gemessen werden, inwieweit sie für die magnetischen Eigenschaften ein Ergebnis liefern, welches mit dem aus der Gleichung (2.47) folgenden Ergebnis vergleichbar ist.

2.3 Das Modell der Besetzungsindikatoren

Die in diesem Abschnitt vorgestellte Variante, die Verdünnung in das Modell zu integrieren, wird in der Literatur häufig benutzt [34–50], da sie besonders zugänglich für die Methoden zur Mittelung über Konfigurationsunordnung ist. Dazu werden, statt die nicht besetzten Gitterplätze komplett aus der Beschreibung zu entfernen, Besetzungsindikatoren

$$p_i = \begin{cases} 1 & \text{Gitterplatz } i \text{ besetzt} \\ 0 & \text{Gitterplatz } i \text{ unbesetzt} \end{cases} \quad (2.49)$$

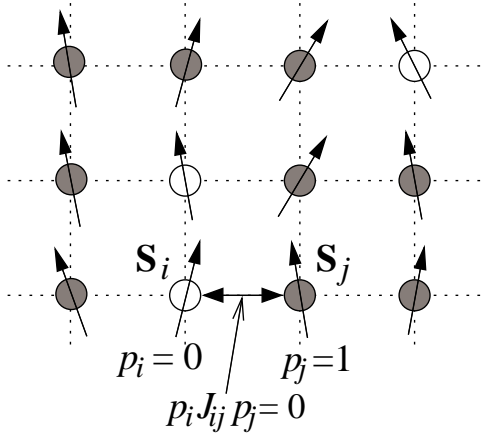


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung eines verdünnten Spinsystems. Dabei werden die Spins auf den als unbesetzt betrachteten Gitterplätzen (weiße Kreise) nicht aus dem System entfernt. Lediglich ihre Kopplung auf den als besetzt betrachteten Gitterplätzen (dunkle Kreise) wird mittels der Besetzungsindikatoren p_i gleich Null gesetzt.

in (2.1) eingefügt:

$$H = - \sum_{i,j} J_{ij} p_i \mathbf{S}_i \cdot p_j \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i p_i S_i^z . \quad (2.50)$$

Dieser Hamilton-Operator hängt nur von den Spins an den als besetzt betrachteten Gitterplätzen ab. Die Einführung der Besetzungsindikatoren vermeidet die unhandliche Vorschrift, alle nicht besetzten Gitterplätze aus den Gleichungen zu entfernen.

Die Besetzungsindikatoren sind idempotent:

$$p_i^2 = p_i \quad \forall i . \quad (2.51)$$

Im Hamilton-Operator (2.50) enthalten sie die gesamte Information über die aus der Verdünnung resultierende Unordnung. Die Austauschparameter J_{ij} bleiben translationsinvariant, was bei späteren Rechnungen ausgenutzt werden kann.

Zur Untersuchung der Eigenschaften des Modells wird wieder die retardierte Kommutator-Green-Funktion (2.4) herangezogen, welche für alle Gitterplätze definiert ist, aber – wie sich zeigen wird – höchstens für besetzte Gitterplätze verschieden von Null ist.

Die Bewegungsgleichung für $G_{ij}(E)$ ergibt:

$$(E - p_i g_J \mu_B B) G_{ij}(E) = 2\hbar^2 \delta_{ij} \langle S_i^z \rangle + 2\hbar \sum_m p_i J_{im} p_m \left(\left\langle \left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} - \left\langle \left\langle S_m^+ S_i^z; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} \right) . \quad (2.52)$$

Mit $\langle S_i^+ \rangle \equiv 0$ und einer Hartree-Fock-Entkopplung der höheren Green-Funktionen

$$\left\langle \left\langle S_i^+ S_m^z; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} \xrightarrow{i \neq m} \langle S_m^z \rangle G_{ij}(E) \quad (2.53)$$

reduziert sich die Bewegungsgleichung zu

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - p_i g_J \mu_B B}{2\hbar} - \sum_n p_i J_{in} p_n \langle S_n^z \rangle \right) \delta_{im} + p_i J_{im} p_m \langle S_i^z \rangle \right) G_{mj} = \delta_{ij} \langle S_j^z \rangle. \quad (2.54)$$

Nun wird wieder eine gitterplatzunabhängige Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle \equiv \langle S^z \rangle$ für die besetzten Gitterplätze angenommen. Ferner wird für die unbesetzten Gitterplätze $\langle S_i^z \rangle$ durch $p_i \langle S^z \rangle = 0$ ersetzt (dies würde eine selbstkonsistente Berechnung liefern). Es ergibt sich:

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - p_i g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n p_i J_{in} p_n \right) \delta_{im} + p_i J_{im} p_m \right) G_{mj} = \delta_{ij} p_j. \quad (2.55)$$

In Matrixnotation heißt das:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \frac{g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{P} - \mathbf{P} \mathbf{D} + \mathbf{P} \mathbf{J} \mathbf{P} \right) \mathbf{G} = \mathbf{P}, \quad (2.56)$$

wobei

$$P_{ij} = p_i \delta_{ij} \quad (2.57)$$

und

$$D_{ij} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} p_n. \quad (2.58)$$

Diese Gleichung wird nun mit Gleichung (2.45) verglichen. Durch eine alternative Nummerierung der Gitterplatzindizes kann man erreichen, dass die ersten N' Indizes $i = 1 \dots N'$ volle Gitterplätze bezeichnen und die restlichen $i = (N' + 1) \dots N$ leere Gitterplätze. In der Matrixgleichung (2.56) entspricht dies einem gleichzeitigen Umordnen der Zeilen und Spalten der Matrizen.¹ Als Ergebnis dieser Transformation nimmt Gleichung (2.56) folgende Blockform an:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E}{2\hbar \langle S^z \rangle} \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} - \frac{g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{D}^{11} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{11} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} \right) \times \\ \times \begin{pmatrix} \mathbf{G}^{11} & \mathbf{G}^{10} \\ \mathbf{G}^{01} & \mathbf{G}^{00} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix}. \quad (2.59)$$

Für eine Matrix \mathbf{A} bezeichnen hierbei \mathbf{A}^{11} den Block für die besetzten Gitterplätze, \mathbf{A}^{10} und \mathbf{A}^{01} die Blöcke mit einem besetzten und einem unbesetzten Gitterplatz und \mathbf{A}^{00} den Block für die leeren Gitterplätze.

¹Die alternative Nummerierung und das Umordnen werden in Anhang A kurz an einem Beispiel erklärt.

Aus Gleichung (2.59) kann man ablesen, dass für die Blöcke, in denen Indizes unbesetzter Gitterplätze auftreten, gilt:

$$\mathbf{G}^{01} = \mathbf{G}^{10} = \mathbf{G}^{00} = \mathbf{0} . \quad (2.60)$$

Dies ist konsistent mit der Näherung in Gleichung (2.56). Damit hat die Green-Funktion die Eigenschaft

$$\mathbf{G} = \mathbf{P}\mathbf{G}\mathbf{P} . \quad (2.61)$$

Ferner hat man für den Block, in dem nur Indizes besetzter Gitterplätze auftreten,

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D}^{11} + \mathbf{J}^{11} \right) \mathbf{G}^{11} = \mathbf{1} . \quad (2.62)$$

Der Vergleich mit (2.45) zeigt, dass \mathbf{G}' und \mathbf{G}^{11} die selbe Bewegungsgleichung erfüllen. Damit ist

$$\mathbf{G}^{11} \equiv \mathbf{G}' \quad (2.63)$$

beziehungsweise

$$G_{ij}(E) = \begin{cases} G'_{ij}(E) & \text{Gitterplätze } i, j \text{ besetzt} \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} . \quad (2.64)$$

Werden nun die Green-Funktionen G_{ii} der besetzten Gitterplätze i verwendet, um die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ und die Curie-Temperatur T_C zu berechnen, so erhält man die gleichen Ergebnisse wie für den im letzten Abschnitt vorgestellten Ansatz, in welchem die unbesetzten Gitterplätze gar nicht in der Beschreibung enthalten sind. Ferner liefern die unbesetzten Gitterplätze keine zusätzlichen, unphysikalischen Anregungen, wenn man deren Green-Funktion mit in die Berechnung der magnetischen Eigenschaften einbezieht. Somit ist der Ansatz mit Besetzungsindikatoren zur Beschreibung verdünnter Spinsysteme geeignet.

2.4 Das Modell einer binären Legierung

Eine weitere Möglichkeit, verdünnte Spinsysteme zu beschreiben, nutzt als Ausgangspunkt eine ungeordnete Legierung zweier magnetischer Atomsorten A und B mit dem Hamilton-Operator [51–54]

$$H = - \sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z , \quad (2.65)$$

wobei für die Austauschparameter

$$J_{ij} = \begin{cases} J^{AA}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) & \text{beides } A\text{-Atome} \\ J^{AB}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = J^{BA}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) & \text{von jeder Sorte eins} \\ J^{BB}(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) & \text{beides } B\text{-Atome} \end{cases} \quad (2.66)$$

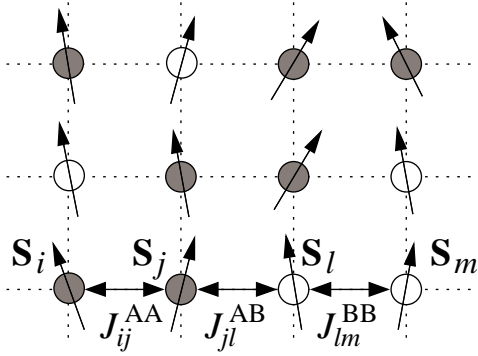


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung eines Spinsystems einer binären Legierung mit Atomen der Sorte A (dunkle Kreise) und Atomen der Sorte B (helle Kreise). Je nachdem, zu welchen Atomsorten die Spins gehören, unterscheiden sich die Austauschparameter.

gilt. Für die Green-Funktion (2.4) erhält man mit der Tyablikov-Entkopplung die Bewegungsgleichung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar} - \sum_n J_{in} \langle S_n^z \rangle \right) \delta_{im} + J_{im} \langle S_i^z \rangle \right) G_{mj} = \delta_{ij} \langle S_i^z \rangle . \quad (2.67)$$

Diese reduziert sich unter Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle \equiv \langle S^z \rangle$ zu [51,52]

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n J_{in} \right) \delta_{im} + J_{im} \right) G_{mj} = \delta_{ij} , \quad (2.68)$$

was wieder als Matrixgleichung interpretiert werden kann:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D} + \mathbf{J} \right) \mathbf{G} = \mathbf{1} , \quad (2.69)$$

wobei

$$D_{ij} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} . \quad (2.70)$$

Nach dem Sortieren der Zeilen und Spalten nach Atomsorten (siehe Anhang A) ergibt sich folgende Blockform:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{D}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{D}^{BB} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{AA} & \mathbf{J}^{AB} \\ \mathbf{J}^{BA} & \mathbf{J}^{BB} \end{pmatrix} \right) \times \\ \times \begin{pmatrix} \mathbf{G}^{AA} & \mathbf{G}^{AB} \\ \mathbf{G}^{BA} & \mathbf{G}^{BB} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} . \quad (2.71)$$

Setzt man nun die Kopplung der B-Atome Null, nimmt man also $J^{AB} = J^{BB} = 0$ an, so ergibt sich:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{D}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} \right) \begin{pmatrix} \mathbf{G}^{AA} & \mathbf{G}^{AB} \\ \mathbf{G}^{BA} & \mathbf{G}^{BB} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} . \quad (2.72)$$

Daraus folgt

$$\mathbf{G}^{AB} = \mathbf{G}^{BA} = \mathbf{0} . \quad (2.73)$$

Für \mathbf{G}^{AA} ergibt sich die zu (2.45) äquivalente Gleichung

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D}^{AA} + \mathbf{J}^{AA} \right) \mathbf{G}^{AA} = \mathbf{1} . \quad (2.74)$$

Für \mathbf{G}^{BB} gilt nun allerdings

$$\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} \mathbf{G}^{BB} = \mathbf{1} . \quad (2.75)$$

Diese Gleichung beschreibt die dispersionslosen Anregungen freier Spins. Von einem Modell für verdünnte Spinsysteme sollte man aber erwarten, dass die unbesetzten Gitterplätze keine Anregungen zum Spinsystem beisteuern. Deshalb ist diesem Ansatz die Methode der Besetzungskennzahlen vorzuziehen, da dort die unbesetzten Gitterplätze keine solchen unphysikalischen Anregungen liefern.

Eine verbesserte Näherung stellt die Annahme unterschiedlicher Magnetisierungen

$$\langle S_i^z \rangle = \begin{cases} \langle S^A \rangle & \text{für } A\text{-Atome} \\ \langle S^B \rangle & \text{für } B\text{-Atome} \end{cases} \quad (2.76)$$

dar [53, 54]. Für die Green-Funktion (2.4) ergibt sich nach Tyablikov-Entkopplung und Division durch $\langle S_i^z \rangle$ als Bewegungsgleichung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S_i^z \rangle} - \sum_n J_{in} \frac{\langle S_n^z \rangle}{\langle S_i^z \rangle} \right) \delta_{im} + J_{im} \right) G_{mj} = \delta_{ij} . \quad (2.77)$$

Als Matrixgleichung interpretiert führt diese Gleichung mit der Näherung (2.76) nach Sortieren der Zeilen und Spalten auf folgende Blockform:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar} \begin{pmatrix} \langle S^A \rangle^{-1} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \langle S^B \rangle^{-1} \mathbf{1} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{D}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{D}^{BB} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{AA} & \mathbf{J}^{AB} \\ \mathbf{J}^{BA} & \mathbf{J}^{BB} \end{pmatrix} \right) \times \\ \times \begin{pmatrix} \mathbf{G}^{AA} & \mathbf{G}^{AB} \\ \mathbf{G}^{BA} & \mathbf{G}^{BB} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix} , \quad (2.78)$$

wobei nun

$$D_{ij} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} \frac{\langle S_n^z \rangle}{\langle S_i^z \rangle} \quad (2.79)$$

ist. Mit $J^{AB} = J^{BB} = 0$ vereinfacht sich die Gleichung zu

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar} \begin{pmatrix} \langle S^A \rangle^{-1} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \langle S^B \rangle^{-1} \mathbf{1} \end{pmatrix} - \begin{pmatrix} \mathbf{D}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} + \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{AA} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{0} \end{pmatrix} \right) \times \\ \times \begin{pmatrix} \mathbf{G}^{AA} & \mathbf{G}^{AB} \\ \mathbf{G}^{BA} & \mathbf{G}^{BB} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{1} & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \mathbf{1} \end{pmatrix}. \quad (2.80)$$

Dies ergibt für \mathbf{G}^{BB} die Lösung

$$\mathbf{G}^{BB} = \mathbf{1} \frac{2\hbar^2 \langle S^B \rangle}{E - g_J \mu_B B}. \quad (2.81)$$

Diese Gleichung beschreibt einen Paramagneten [19–21]. Die selbstkonsistente Berechnung von $\langle S^B \rangle$ aus \mathbf{G}^{BB} ergibt dann – zumindest in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes – $\langle S^B \rangle = 0$ und damit $\mathbf{G}^{BB} = \mathbf{0}$. Der Fehler der Division durch Null in Gleichung (2.80) wird in Gleichung (2.81) rückgängig gemacht, indem wieder mit $\langle S^B \rangle$ multipliziert wird. Somit führt in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes die Einführung verschiedener Magnetisierungen für die beiden Untergitter zu einem zu (2.64) äquivalenten Ergebnis für die Magnetisierung. Nimmt man hingegen ein externes Magnetfeld endlicher Stärke an, gilt $\mathbf{G}^{BB} \equiv \mathbf{0}$ nicht mehr. Somit liefern die unbesetzten Gitterplätze beispielsweise Beiträge zur magnetischen Suszeptibilität, was vom physikalischen Standpunkt aus gesehen nicht korrekt ist.

Das Problem der unphysikalischen Anregungen auf den unbesetzten Gitterplätzen kann man im Rahmen des Ansatzes einer binären Legierung nur dadurch in den Griff bekommen, dass man zusätzlich zu (2.76) noch $\langle S^B \rangle \equiv 0$, also

$$\langle S_i^z \rangle = \begin{cases} \langle S^A \rangle & \text{für } A\text{-Atome} \\ 0 & \text{für } B\text{-Atome} \end{cases} \quad (2.82)$$

annimmt. Damit erhält man eine zum Modell der Besetzungsindikatoren äquivalente Beschreibung, allerdings mit einer geringfügig aufwendigeren Notation.

2.5 Weitere Ansätze

In der Literatur [27,55] wird unter anderem folgende Green-Funktion zur Untersuchung des durch den Hamilton-Operator (2.41) beschriebenen Modells verwendet:

$$G_{ij}(E) = \frac{\left\langle\left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle\right\rangle_E^{ret}}{\langle S_i^z \rangle^{1/2} \langle S_j^z \rangle^{1/2}}. \quad (2.83)$$

Die Bewegungsgleichung für diese Green-Funktion ergibt nach Tyablikov-Entkopplung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - p_i g_J \mu_B B}{2\hbar} - \sum_n p_i J_{in} p_n \langle S_n^z \rangle \right) \delta_{im} + \langle S_i^z \rangle^{1/2} p_i J_{im} p_m \langle S_m^z \rangle^{1/2} \right) G_{mj} = \delta_{ij} . \quad (2.84)$$

Somit erhält man eine Einheitsmatrix auf der rechten Seite der Gleichung ohne – wie bei der Bewegungsgleichung für die Green-Funktion (2.4) – explizit durch $\langle S_i^z \rangle$ teilen zu müssen. Dies verschleiert lediglich die Tatsache, dass hier für Gitterplätze mit $\langle S_i^z \rangle = 0$ in der Definition der Green-Funktion durch Null geteilt wird. Nach Umordnen der Gitterplatzindizes ergibt sich für den Block \mathbf{G}^{00} der unbesetzten Gitterplätze

$$\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} \mathbf{G}^{00} = \mathbf{1} . \quad (2.85)$$

Somit erhält man auch mit diesem Ansatz unphysikalische Anregungen an den unbesetzten Gitterplätzen.

Gleiches gilt für die Green-Funktion

$$G_{ij}(E) = \frac{\langle\langle S_i^+; S_j^- \rangle\rangle_E^{ret}}{\langle S_i^z \rangle} , \quad (2.86)$$

deren Bewegungsgleichung nach Tyablikov-Entkopplung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - p_i g_J \mu_B B}{2\hbar} - \sum_n p_i J_{in} p_n \langle S_n^z \rangle \right) \delta_{im} + p_i J_{im} p_m \langle S_m^z \rangle \right) G_{mj} = \delta_{ij} \quad (2.87)$$

lautet. Falls jetzt eine gitterplatzunabhängige Magnetisierung angenommen wird, erhält man wieder unphysikalische Anregungen an den unbesetzten Gitterplätzen.

Eine Möglichkeit, diese Anregungen zumindest aus dem thermodynamisch relevanten Teil des Anregungsspektrums zu entfernen, besteht darin, an den unbesetzten Gitterplätzen ein lokales Magnetfeld einzuführen [39, 55]. Wird das lokale Magnetfeld stark genug gewählt, verschieben sich die Anregungen zu so hohen Energien, dass sie bei endlichen Temperaturen praktisch unbesetzt sind. Diese Methode scheint aber nicht problemlos zu funktionieren [39, 55].

Ein Weg, um zu konkreten Ergebnissen für die Green-Funktion $G_{ij}(E)$ und damit für die magnetischen Eigenschaften des Systems zu gelangen, ist die Mittelung über ein Ensemble von Konfigurationen der Verteilung der Spins auf dem Gitter. Eine Möglichkeit, bei Konfigurationsmittelung die besetzten und unbesetzten Gitterplätze zu unterscheiden, stellt die Verwendung

bedingter Green-Funktionen

$$G_{ij}^{\alpha\beta} = p_i^\alpha G_{ij} p_j^\beta \quad \alpha, \beta \in \{0, 1\} \quad (2.88)$$

mit

$$p_i^1 = p_i \quad \text{und} \quad p_i^0 = 1 - p_i \quad (2.89)$$

dar [56]. Für die bedingten Green-Funktionen ergibt sich dann ein System gekoppelter Bewegungsgleichungen, welches die ursprüngliche Bewegungsgleichung für die Green-Funktion \mathbf{G} ersetzt. Die volle Green-Funktion \mathbf{G} ergibt sich dann aus der Summe der bedingten Green-Funktionen:

$$G_{ij} = \sum_{\alpha\beta} G_{ij}^{\alpha\beta} . \quad (2.90)$$

Allerdings sollte diese nicht für die Berechnung der magnetischen Eigenschaften verwendet werden, wenn als Ausgangspunkt ein Ansatz gewählt wurde, in welchem die unbesetzten Gitterplätze unphysikalische Anregungen liefern. In diesem Falle sollte allein die bedingte Green-Funktion G_{ii}^{00} zur Berechnung herangezogen werden.

2.6 Vergleich der Ansätze

Alle hier vorgestellten Ansätze liefern für die Green-Funktion $G_{ij}(E)$ formal das korrekte Ergebnis (2.47) für besetzte Gitterplätze i und j . Die Methode der Besetzungsindikatoren liefert darüber hinaus das korrekte Ergebnis für $G_{ij}(E)$, falls einer oder beide der Gitterplätze i und j unbesetzt sind. Dies leistet der Ansatz einer binären Legierung nur dann, wenn die Magnetisierung der Legierungskomponente, welche die unbesetzten Gitterplätze darstellt, explizit gleich Null gesetzt wird. Ansätze wie in den Arbeiten [27, 34, 55] ergeben hingegen fälschlicherweise $G_{ii}(E) \neq 0$ für unbesetzte Gitterplätze i .

Die korrekte Behandlung der unbesetzten Gitterplätze ist besonders dann wichtig, wenn in den Näherungen zur Konfigurationsmittelung die saubere Unterscheidung zwischen besetzten und unbesetzten Gitterplätzen nicht eingehalten wird. Sonst enthält die gemittelte Green-Funktion unphysikalische Anteile der unbesetzten Gitterplätze [55]. Benutzt man als Ausgangspunkt ein Modell, das die unbesetzten Gitterplätze nicht korrekt beschreibt, so kann man mit der Verwendung bedingter Green-Funktionen (2.88) dafür sorgen, dass dies keinen Einfluss auf die Berechnung der bedingten Green-Funktion G_{ij}^{11} für die besetzten Gitterplätze hat. Da dann aber statt einer Bewegungsgleichung für die Green-Funktion \mathbf{G} ein System von vier Gleichungen für

die vier bedingten Green-Funktionen $\mathbf{G}^{\alpha\beta}$ gelöst werden muss, bedeutet dies einen zusätzlichen Aufwand.

Benutzt man hingegen als Ausgangspunkt das Modell der Besetzungsindikatoren, so ist eine Verwendung von bedingten Green-Funktionen unnötig. Die bedingte Green-Funktion G_{ij}^{11} für die besetzten Gitterplätze ist identisch mit der Green-Funktion G_{ij} . Zudem würden die anderen bedingten Green-Funktionen G_{ij}^{10} , G_{ij}^{01} und G_{ij}^{00} , welche identisch Null sind, nur unnötigen Ballast in den Gleichungen darstellen. Dies spricht insgesamt dafür, die in Abschnitt 2.3 vorgestellte Methode der Besetzungsindikatoren den anderen Ansätzen bei der Arbeit mit den Methoden der Konfigurationsmittelung vorzuziehen.

Der in Abschnitt 2.2 vorgestellte Ansatz gänzlich ohne unbesetzte Gitterplätze scheint für die Methoden der Konfigurationsmittelung wegen der unhandlichen Nummerierung der Gitterplätze ungeeignet. Für die numerische Analyse endlicher Spinsysteme, wie sie im Kapitel 5 vorgenommen wird, stellt dies hingegen kein Hindernis dar. Im Gegensatz zu dieser Methode würden bei den anderen Methoden die eigentlich uninteressanten unbesetzten Gitterplätze unter Umständen zusätzliche Rechnerressourcen verbrauchen. Somit ist bei den numerischen Arbeiten zu endlichen Spinsystemen der Ansatz ohne unbesetzte Gitterplätze vorzuziehen.

2.7 Perkolation

Aus Überlegungen zur Perkolation auf Gittern lassen sich einige grundlegende qualitative Aussagen zu den Effekten der Verdünnung in Spinsystemen ableiten. Verdünnt man ferromagnetische Materialien mit nichtmagnetischen Elementen, so sinkt im allgemeinen die Curie-Temperatur. Diese Eigenschaft zeigt auch das Heisenberg-Modell: Entfernt man aus einem konzentrierten Spinsystem die Spins an einigen zufällig ausgewählten Gitterplätzen, so sinkt die Curie-Temperatur. Die Ursache des Absinkens liegt darin, dass mit zunehmender Verdünnung die Zahl der Wechselwirkungspartner für die verbleibenden Spins sinkt.

Hat die Wechselwirkung der Spins eine begrenzte Reichweite, so existiert eine kritische Konzentration der Spins, unterhalb derer sich keine ferromagnetische Phase mehr ausbildet. Unterhalb dieser kritischen Konzentration, der kritischen Perkulationskonzentration c_p , haben die Cluster, in denen die Spins durch die Wechselwirkung miteinander verbunden sind, nur eine endliche Ausdehnung [57]. Somit fehlt die Möglichkeit, Informationen über die Ausrichtung der Spins im System über weite Distanzen zu übertragen, welches aber die Voraussetzung für die Ausbildung langreichweitiger Korrelationen ist. Oberhalb der kritischen Perkulationskonzentration c_p bildet sich im unendlichen System ein unendlich ausgedehnter durch die Wechselwirkung verbundener

Cluster aus, welcher das gesamte System durchdringt (*perkoliert*), und öffnet damit die Möglichkeit für langreichweitige magnetische Ordnung im System. In Abbildung 2.8 ist dies am Beispiel eines Quadratgitters illustriert.

Die kritische Perkolkationskonzentration ist eine Eigenschaft des zu Grunde liegenden Gitters und der Reichweite der Wechselwirkung und eventuell vorhandener chemischer Nahordnung [57]. Damit stimmt sie beispielsweise für das Ising-Modell und das Heisenberg-Modell mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung überein und ist zudem unabhängig von der Größe des Spins S [58]. Die exakte Berechnung der kritischen Perkolkationskonzentrationen c_p für die verschiedenen dreidimensionalen Gitterstrukturen gestaltet sich schwierig. Aus Monte-Carlo-Rechnungen [59] ergeben sich für das einfach-kubische Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung $c_p^{\text{sc}} \simeq 0.3$, für das raumzentriert-kubische Gitter $c_p^{\text{bcc}} \simeq 0.25$ und für das flächenzentriert-kubische Gitter $c_p^{\text{fcc}} \simeq 0.2$.

Für Konzentrationen von $c \approx 0.01 - 0.05$, wie sie beispielsweise in ferromagnetischen DMS wie $\text{Ga}_{1-x}\text{Mn}_x\text{As}$ vorliegen, hat dies zur Konsequenz, dass die Reichweite der Wechselwirkung

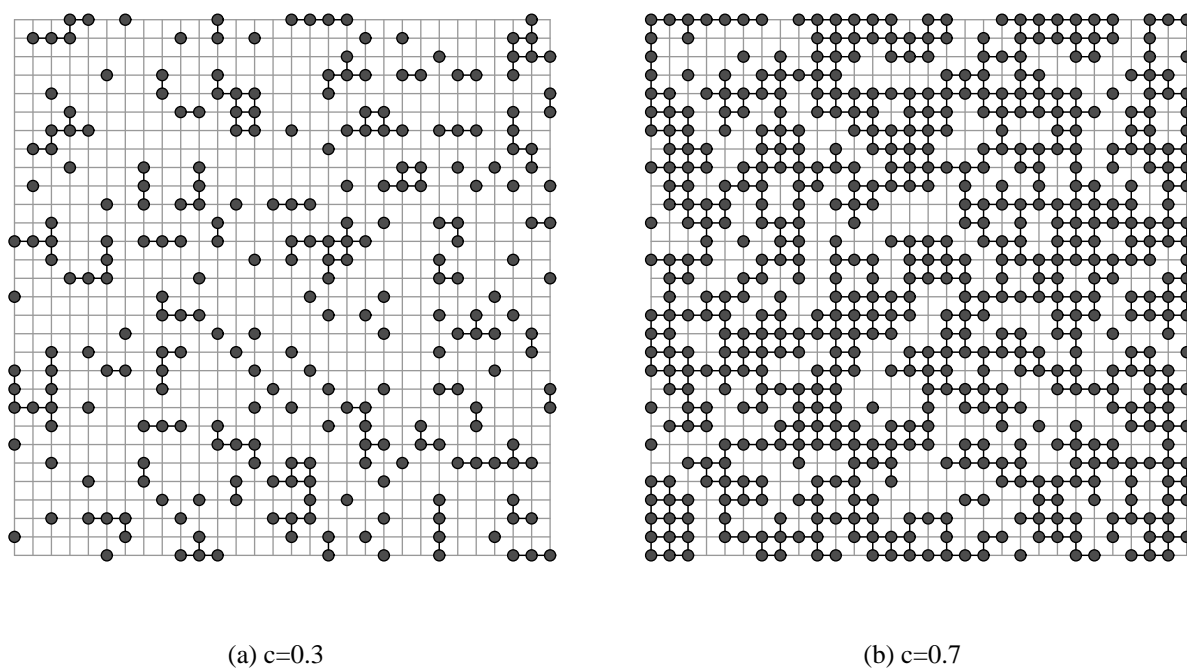


Abbildung 2.8: Perkolationskonzentration am Beispiel eines Quadratgitters mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung. Die kritische Perkolkationskonzentration für dieses Modell ist $c_p = 0.5928$ [57]. Für eine Konzentration $c = 0.3$ der besetzten Gitterplätze existieren nur kleinere Cluster (a). Bei $c = 0.7$ hingegen befindet sich die meisten besetzten Gitterplätze in einem großen perkolierenden Cluster (b).

über nächste Nachbarn hinausgehen muss, damit sich eine ferromagnetische Phase ausbilden kann. Dies bedeutet aber auch, dass solche Materialien nicht durch Modelle beschrieben werden können, in denen nur die Nächste-Nachbar-Wechselwirkung der Spins berücksichtigt ist. Insbesondere bei den Näherungen zur Mittelung über Konfigurationsunordnung, welche im folgenden Kapitel besprochen werden, steigt damit der rechnerische Aufwand erheblich, wenn sich die zu berücksichtigende Reichweite der Wechselwirkung erhöht.

Für Spinsysteme, in denen auch antiferromagnetische Wechselwirkung vorliegt, sind die Effekte der Verdünnung komplexer. Zwar kann man mit Sicherheit sagen, dass auch für solche Spinsysteme unterhalb der kritischen Perkolationskonzentration c_p keine magnetische Fernordnung existiert. Aber selbst wenn das System für $c = 1$ ferromagnetisch ordnet, kann der Zustand des Systems für Konzentrationen $c_p < c < 1$ erheblich von ferromagnetischer Ordnung abweichen, weil für einige Spins die antiferromagnetische Kopplung zu den anderen Spins überwiegt.

Kapitel 3

Mittelung über Konfigurationsunordnung

Methoden der Konfigurationsmittelung stellen ein wichtiges Instrument zur Behandlung von ungeordneten Materialien dar. Darunter versteht man Materialien mit einer räumlichen Struktur, die lokal statistisch von einer gitterperiodischen Struktur abweicht, aber eingefroren ist, das heißt, keinen zeitlichen Fluktuationen unterliegt. Beispiele sind ungeordnete Legierungen, bei denen die unterschiedlichen Legierungskomponenten statistisch über die Plätze eines Kristallgitters verteilt sind. Für diese Materialien sind die Methoden der Konfigurationsmittelung ursprünglich entwickelt worden. Heute existiert ein wesentlich breiteres Spektrum an Anwendungen, die zum Teil darauf beruhen, einem zu untersuchenden System eine fiktive Legierung zuzuordnen, welche dann mit den bewährten Methoden der Konfigurationsmittelung behandelt wird.

Die Vielfalt der Konfigurationsunordnung in ungeordneten Materialien lässt sich grob in zwei Kategorien einteilen. Bei der *Substitutionsunordnung* sind die unterschiedlichen chemischen Komponenten des Materials statistisch auf die Gitterplätze eines Kristallgitters verteilt (Abbildung 3.1). Dabei sorgt die zufällige Besetzung der Gitterplätze mit der einen oder anderen chemischen Spezies dafür, dass die physikalischen Verhältnisse statistisch von Gitterplatz zu Gitterplatz wechseln und damit die Translationsinvarianz des Systems verloren geht. Beispiele sind die bereits oben erwähnten ungeordneten Legierungen. Die zweite Kategorie bildet *strukturelle Unordnung*. Diese liegt vor, wenn Aufbau des Materials in zufälliger Weise von einem Kristallgitter abweicht (Abbildung 3.2). Beispiele sind amorphe Festkörper und Gläser.

Da in verdünnten Spinsystemen Substitutionsunordnung vorliegt, beschränkt sich die Diskussion in diesem Kapitel auf diese Form der Konfigurationsunordnung. Im ersten Abschnitt erfolgt eine Einführung der Begriffe zur Mittelung über Substitutionsunordnung sowie der in dieser Arbeit dafür verwendeten Notation. Diese ist bewusst sehr formal und allgemein gehalten, um die verschiedenen für die Konfigurationsmittelung existierenden Näherungen einheitlich beschreiben

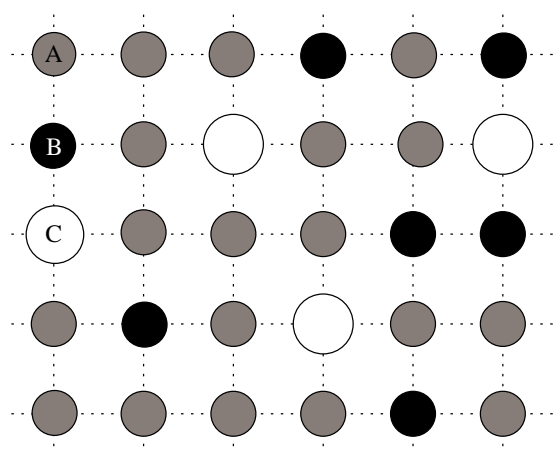


Abbildung 3.1: Substitutionsunordnung am Beispiel einer Legierung dreier Atomsorten, welche zufällig über die Plätze eines Kristallgitters verteilt sind.

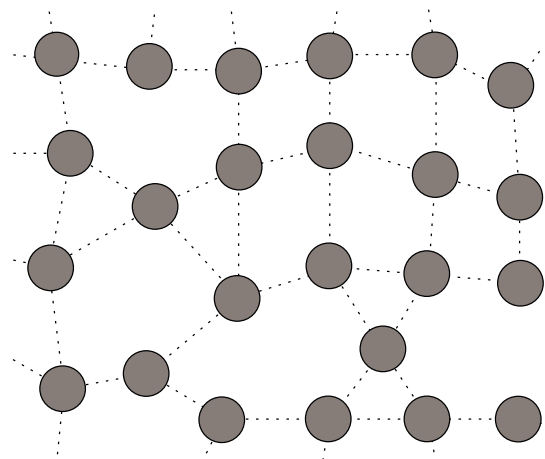


Abbildung 3.2: Strukturelle Unordnung am Beispiel eines amorphen Festkörpers. Dessen Atome bilden kein regelmäßiges Gitter.

zu können und somit einen Vergleich untereinander zu ermöglichen. In Abschnitt 3.2 werden einige konkrete Näherungen zur Konfigurationsmittelung vorgestellt. Anschließend wird auf die Besonderheiten der Konfigurationsmittelung bei verdünnten Spinsystemen eingegangen. Damit sind die Grundlagen für das Kapitel 4 geschaffen, wo die Methoden der Konfigurationsmittelung eine konkrete Anwendung auf verdünnte Spinsysteme finden werden.

3.1 Grundlegende Begriffe

In diesem Abschnitt werden die grundlegenden Begriffe und Ideen der Konfigurationsmittelung für Systeme mit Substitutionsunordnung diskutiert. Derartigen Systemen liegt generell ein Kristallgitter zu Grunde. Da die Berechnung der Eigenschaften solcher Systeme eine Reihe gitterplatzabhängiger Größen benutzt, bietet sich aus Gründen der Ökonomie und Übersichtlichkeit der Gebrauch der Matrixnotation an. Dabei stellen – wie bereits zuvor in Kapitel 2 – die Matrixelemente M_{ij} ($i, j \in \{1 \dots N\}$) einer Matrix \mathbf{M} eine von den Gitterplätzen i und j des Kristallgitters abhängige Größe dar.

Ausgangspunkt für Konfigurationsmittelung ist ein Ensemble $\mathcal{E} = \{\mathcal{K}^\xi\}_{\xi \in I}$ von Konfigurationen \mathcal{K}^ξ mit statistischem Gewicht $p(\xi)$. Jede Konfiguration $\mathcal{K}^\xi \in \mathcal{E}$ entspricht dabei einer möglichen Realisierung des zu untersuchenden ungeordneten Systems. Für ungeordnete Legierungen beispielsweise bedeutet jede Konfiguration eine mögliche Verteilung der verschiedenen Atomsorten

auf die Gitterplätze des Kristalls.

Die Berechnung von makroskopischen thermodynamischen Größen F erfolgt durch Mittelung über alle Konfigurationen $\mathcal{K}^\xi \in \mathcal{E}$ mit entsprechenden Größen F^ξ :

$$F = \langle F^\xi \rangle_\xi = \sum_\xi p(\xi) F^\xi . \quad (3.1)$$

Dieser Vorgehensweise liegt die Annahme zu Grunde, dass für die meisten Konfigurationen \mathcal{K}^ξ – und damit auch für ein konkretes durch das Modell beschriebene System – die makroskopische Größe F^ξ sehr gut durch den über alle Konfigurationen gemittelten Wert F angenähert werden kann:

$$F^\xi \approx F. \quad (3.2)$$

Ferner ist die Konfigurationsmittelung oftmals notwendig, um überhaupt zu brauchbaren Aussagen über das durch die Konfiguration \mathcal{K}^ξ definierte System zu gelangen. Ein Grund dafür ist, dass sich F^ξ für eine gegebene Konfiguration \mathcal{K}^ξ oft nicht exakt berechnen lässt. Außerdem ist von dem zu beschreibenden System oft auch nicht genau bekannt, welche Konfiguration \mathcal{K}^ξ in einer konkreten Situation, zum Beispiel in einem Experiment, gerade vorliegt. Mit einiger Kenntnis über \mathcal{E} und der Annahme (3.2) können dann aber trotzdem Aussagen über wichtige physikalische Größen abgeleitet werden.

Im folgenden wird nach Wegen gesucht, die Green-Funktion eines Systems mit Substitutionsunordnung zu berechnen. Die Green-Funktion-Matrix

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \left(G_{ij}^\xi(E) \right)_{i,j=1\dots N} \quad (3.3)$$

für eine Konfiguration \mathcal{K}^ξ genügt der Matrixgleichung

$$(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi) \mathbf{G}^\xi(E) = \hbar \mathbf{1} . \quad (3.4)$$

Die Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ , welche die Dynamik der Konfiguration \mathcal{K}^ξ beschreiben soll, wird dabei als bekannt vorausgesetzt. Die formale Lösung von Gleichung (3.4) lautet

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \hbar (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi)^{-1} . \quad (3.5)$$

Im Allgemeinen ist die konkrete Berechnung von \mathbf{G}^ξ nicht durchführbar, da wegen fehlender Translationsinvarianz des ungeordneten Systems die Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ auch nicht translationsinvariant ist. Es fehlt somit die Möglichkeit, die Gleichung (3.4) durch Fourier-Transformation zu diagonalisieren und anschließend nach \mathbf{G} aufzulösen.

Es wird aber angenommen, dass das Konfigurationsmittel der Hamilton-Matrix $\langle \mathbf{H}^\xi \rangle_\xi$ translationsinvariant ist. Als Näherung für \mathbf{G}^ξ wird deshalb die konfigurationsgemittelte Green-Funktion

$$\mathbf{G}(E) = \langle \mathbf{G}^\xi(E) \rangle_\xi = \hbar \left\langle (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi)^{-1} \right\rangle_\xi \quad (3.6)$$

verwendet¹, welche dann auch als translationsinvariant angenommen werden kann.

In der Regel kann auch die konfigurationsgemittelte Green-Funktion \mathbf{G} nicht genau berechnet werden, da ein konkreter Ausdruck für $\left\langle (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi)^{-1} \right\rangle_\xi$ nicht bekannt ist. Hingegen lassen sich Ausdrücke der Form $\langle (\mathbf{H}^\xi \dots)^n \rangle_\xi$ berechnen, wenn man über das Ensemble \mathcal{E} gewisse Annahmen macht, wie zum Beispiel, dass die Wahrscheinlichkeiten, mit denen die Gitterplätze eines Kristalls von einer bestimmten Atomsorte besetzt sind, bekannt sind. Zur approximativen Bestimmung von \mathbf{G} wird deshalb zunächst die Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ in eine translationsinvariante geordnete Hamilton-Matrix \mathbf{H}^0 und ein nicht translationsinvariantes Störpotential \mathbf{V}^ξ aufgeteilt:

$$\mathbf{H}^\xi = \mathbf{H}^0 + \mathbf{V}^\xi . \quad (3.7)$$

Für das geordnete System, welches durch $\mathbf{V}^\xi = \mathbf{0}$ definiert ist, hat man die geordnete Green-Funktion

$$\mathbf{G}^0(E) = \hbar (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^0)^{-1} , \quad (3.8)$$

welche wegen der Translationsinvarianz von \mathbf{H}^0 diagonal im \mathbf{k} -Raum ist:

$$G_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^0(E) = \frac{\hbar}{E - E_{\mathbf{k}}^0} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (3.9)$$

¹Zwar ist für \mathbf{G}^ξ als mikroskopische Größe im Allgemeinen die Näherung (3.2) nicht zulässig; experimentell zugänglich ist \mathbf{G}^ξ jedoch oft nur in einer über viele Gitterplätze gemittelten Form. Für die gitterplatzgemittelte Green-Funktion

$$\langle G_{i+n,n}^\xi \rangle_n := \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N G_{i+n,n}^\xi$$

kann man hingegen als makroskopische Größe die Beziehung (3.2) annehmen:

$$\langle G_{i+n,n}^\xi \rangle_n \approx \left\langle \left\langle G_{i+n,n}^\xi \right\rangle_n \right\rangle_\xi = \langle G_{i+n,n} \rangle_n .$$

Ferner stimmt wegen der Translationsinvarianz der konfigurationsgemittelten Green-Funktion \mathbf{G} deren gitterplatzgemittelte Form $\langle G_{i+n,n} \rangle_n$ mit der Green-Funktion $G_{i+j,j}$ eines beliebig herausgegriffenen Gitterplatzes j überein:

$$\langle G_{i+n,n} \rangle_n = G_{i+j,j} .$$

Kombiniert man nun diese beiden Beziehungen, so kann man die Mittelung über Gitterplätze durch eine Mittelung über Konfiguration ersetzen:

$$\langle G_{i+n,n}^\xi \rangle_n \approx \langle G_{i+n,n} \rangle_n = G_{i+j,j} = \langle G_{i+j,j}^\xi \rangle_\xi .$$

Somit entspricht die konfigurationsgemittelte Green-Funktion einer gitterplatzgemittelten Green-Funktion.

mit $E_{\mathbf{k}}^0$ aus

$$H_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^0 = E_{\mathbf{k}}^0 \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} . \quad (3.10)$$

Kombiniert ergeben (3.5) und (3.8) unter Ausnutzung von (3.7) die Dyson-Gleichung

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^\xi(E) . \quad (3.11)$$

Durch Iteration der Gleichung (3.11) erhält man:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}^\xi(E) &= \mathbf{G}^0(E) \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \right)^k \\ &= \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar^2} \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 + \dots \end{aligned} \quad (3.12)$$

Führt man die Konfigurationsmittelung an dieser Reihe durch, so ergibt sich für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion:

$$\begin{aligned} \mathbf{G}(E) &= \mathbf{G}^0(E) \sum_{k=0}^{\infty} \left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \right)^k \right\rangle_\xi \\ &= \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \rangle_\xi + \frac{1}{\hbar^2} \langle \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \rangle_\xi + \dots \end{aligned} \quad (3.13)$$

Diese Reihe wird nun verwendet, um Näherungen für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion zu bestimmen. Im Prinzip kann für jeden Term in der Reihe ein konkreter Ausdruck angegeben werden. Nur kann man die durch Einsetzen dieser Ausdrücke entstehende Reihe nicht geschlossen aufsummieren. Das Aufsummieren ist aber notwendig, denn für alle interessanten Probleme konvergiert die Reihenentwicklung (3.13) – wie die Entwicklung (3.12) – nicht, da alle höheren Terme in der Entwicklung bei bestimmten Energien divergieren [26]. Dies macht alle Näherungen, welche die Reihe (3.13) einfach nach endlich vielen Gliedern abbrechen, nutzlos. Trotzdem können mit der Reihe (3.13) Näherungen für \mathbf{G} entwickelt werden. Dazu werden die Glieder der Reihe derart approximiert, dass sich die so entstandene Reihe wieder aufsummieren lässt. Dabei ergeben sich die besseren Näherungen dadurch, dass physikalisch wichtige Teilreihen der exakten Entwicklung (3.13) mit aufsummiert werden.

Bezüglich der Struktur der Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ lassen sich verschiedene Typen substitutioneller Unordnung unterscheiden. Von *diagonaler Substitutionsunordnung* spricht man, wenn die Art der Besetzung des i -ten Gitterplatzes in der Konfiguration \mathcal{K}^ξ nur Auswirkung auf das Matrixelement H_{ii}^ξ der Hamilton-Matrix hat. Dann unterscheiden sich nämlich die Hamilton-Matrizen für verschiedene Konfigurationen nur in den Diagonalelementen H_{ii}^ξ , während die Nichtdiagonalelemente $H_{i \neq j}^\xi$ für alle Konfigurationen übereinstimmen. Von *nichtdiagonaler Substitutionsunordnung* spricht man, wenn die Nichtdiagonalelemente von \mathbf{H}^ξ konfigurationsabhängig sind.

Umgebungsunordnung liegt vor, wenn die Matrixelemente H_{ij} nicht nur von der Besetzung der Gitterplätze i und j abhängen, sondern auch von der Besetzung benachbarter Gitterplätze. Ferner spricht man von *chemischer Nahordnung*, wenn die Wahrscheinlichkeit, dass ein Gitterplatz mit einer bestimmten Atomsorte besetzt ist, von der Besetzung der umgebenden Gitterplätze abhängt. In realen Substanzen erzeugt die zufällige Ersetzung einiger Atome in einem Kristall durch eine andere Atomsorte sicherlich sowohl Unordnung im Diagonalteil, als auch im Nichtdiagonalteil der Hamilton-Matrix, und Effekte der Umgebungsunordnung können auch eine Rolle spielen. Welcher Typ von Substitutionsunordnung im Modell berücksichtigt wird, hat allerdings entscheidenden Einfluss darauf, welche Näherungen zur Konfigurationsmittelung anwendbar sind. Einige Methoden zur Konfigurationsmittelung entwickeln nicht direkt Näherungen für die Summanden der Reihe (3.13), sondern für die Selbstenergie $\Sigma(E)$. Diese ist definiert durch die konfigurationsgemittelte Dyson-Gleichung

$$\begin{aligned}\mathbf{G}(E) &= \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^\xi(E) \rangle_\xi \\ &= \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \Sigma(E) \mathbf{G}(E) .\end{aligned}\quad (3.14)$$

Falls $\Sigma(E)$ bekannt ist, ist das Problem gelöst. Natürlich ist auch Σ selten exakt berechenbar. Doch bewirken bereits sehr einfache Näherungen für die Selbstenergie, dass ganze Teilreihen der Reihe (3.13) bei der Näherung für \mathbf{G} berücksichtigt werden.

Ein weiterer Ansatz benutzt zur Bestimmung der konfigurationsgemittelten Green-Funktion die Streumatrix $\mathbf{T}^\xi(E)$. Diese ist definiert durch die Gleichung

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{T}^\xi(E) \mathbf{G}^0(E) . \quad (3.15)$$

Der Vergleich mit Reihe (3.12) ergibt für die Streumatrix:

$$\mathbf{T}^\xi(E) = \mathbf{V}^\xi \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \right)^k . \quad (3.16)$$

Die Konfigurationsmittelung von (3.15) ergibt:

$$\mathbf{G}(E) = \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \langle \mathbf{T}^\xi(E) \rangle_\xi \mathbf{G}^0(E) . \quad (3.17)$$

Damit transformiert sich die Lösung des Problems auf die Bestimmung der konfigurationsgemittelten Streumatrix

$$\mathbf{T}(E) = \langle \mathbf{T}^\xi(E) \rangle_\xi = \left\langle \mathbf{V}^\xi \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \right)^k \right\rangle_\xi . \quad (3.18)$$

Die Streumatrix findet insbesondere bei der *Methode des effektiven Mediums* Anwendung. Diese Methode nutzt aus, dass die Aufspaltung (3.7) der Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ nicht von vornherein festgelegt ist. Hat man eine gegebene Aufteilung von \mathbf{H}^ξ in geordnete Hamilton-Matrix \mathbf{H}^0 und Störpotential \mathbf{V}^ξ , so kann man mittels eines translationsinvarianten Potentials \mathbf{v} eine neue Aufteilung

$$\mathbf{H}^\xi = \tilde{\mathbf{H}}^0 + \tilde{\mathbf{V}}^\xi \quad (3.19)$$

mit

$$\tilde{\mathbf{H}}^0 = \mathbf{H}^0 + \mathbf{v} \quad \text{und} \quad \tilde{\mathbf{V}}^\xi = \mathbf{H}^0 - \mathbf{v} \quad (3.20)$$

festlegen. Die Hamilton-Matrix $\tilde{\mathbf{H}}^0$ definiert ein neues ungeordnetes System, das *effektive Medium*. Die neue Aufteilung definiert auch eine neue Streumatrix

$$\tilde{\mathbf{T}}^\xi(E) = \tilde{\mathbf{V}}^\xi \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \tilde{\mathbf{V}}^\xi \right)^k . \quad (3.21)$$

Mit ihr ergibt sich für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion:

$$\mathbf{G}(E) = \tilde{\mathbf{G}}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \left\langle \tilde{\mathbf{T}}^\xi \right\rangle_\xi \tilde{\mathbf{G}}^0(E) . \quad (3.22)$$

Nun wird das Potential \mathbf{v} so variiert, dass die konfigurationsgemittelte Streumatrix $\tilde{\mathbf{T}}$ verschwindet:

$$\left\langle \tilde{\mathbf{T}}^\xi \right\rangle_\xi \stackrel{!}{=} 0 . \quad (3.23)$$

Dann folgt nämlich aus der Gleichung (3.22), dass

$$\mathbf{G} = \tilde{\mathbf{G}}^0 \quad (3.24)$$

beziehungsweise

$$\mathbf{G} = \hbar (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^0 - \Sigma)^{-1} \quad \text{mit} \quad \Sigma = -\mathbf{v} . \quad (3.25)$$

Da in der Regel die Streumatrix $\tilde{\mathbf{T}}$ nicht exakt berechnet werden kann, lässt sich die Bedingung (3.23) auch nur näherungsweise erfüllen.

Auch die Aufteilung der Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ in geordneten Anteil \mathbf{H}^0 und Störpotential \mathbf{V}^ξ ist nicht zwingend. Der *Lokatorformalismus* verwendet eine alternative Aufteilung

$$\mathbf{H}^\xi = \boldsymbol{\epsilon}^\xi + \mathbf{W}^\xi \quad (3.26)$$

in ein lokales Potential $\boldsymbol{\epsilon}^\xi$ und eine Hoppingmatrix \mathbf{W}^ξ mit

$$\epsilon_{ij}^\xi = \epsilon_i^\xi \delta_{ij} \quad \text{und} \quad W_{ii}^\xi = 0 . \quad (3.27)$$

Der Lokator ist definiert als

$$\mathbf{g}^\xi = \hbar (E\mathbf{1} - \boldsymbol{\epsilon}^\xi)^{-1}, \quad (3.28)$$

und damit diagonal im Ortsraum:

$$g_{ij}^\xi = \frac{\hbar}{E - \epsilon_i^\xi} \delta_{ij}. \quad (3.29)$$

Mit dem Lokator ergibt sich für die Green-Funktion \mathbf{G}^ξ die Dyson-Gleichung

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{g}^\xi + \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{G}^\xi, \quad (3.30)$$

welche wieder iteriert werden kann:

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{g}^\xi + \frac{1}{\hbar} \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi + \frac{1}{\hbar^2} \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi + \dots \quad (3.31)$$

Die Konfigurationsmittelung dieser *Lokatorentwicklung* ergibt dann:

$$\mathbf{G} = \langle \mathbf{g}^\xi \rangle_\xi + \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi \rangle_\xi + \frac{1}{\hbar^2} \langle \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi \mathbf{W}^\xi \mathbf{g}^\xi \rangle_\xi + \dots \quad (3.32)$$

An dieser Reihe können dann wieder Näherungen vorgenommen werden, um einen geschlossenen Ausdruck für \mathbf{G} zu erhalten. Der Lokatorformalismus ist insbesondere für den Fall diagonalen Substitutionsunordnung geeignet, wenn also die Hoppingmatrix unabhängig von der Konfiguration ist.

3.2 Näherungen zur Substitutionsunordnung

Die einfachste Näherung für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion ist die *Virtual-Crystal Approximation* (VCA). Diese entkoppelt die Glieder der Reihe (3.13) folgendermaßen [21]:

$$\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \right)^k \right\rangle_\xi \rightarrow \left(\frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \mathbf{G}^0(E) \right)^k. \quad (3.33)$$

Damit ergibt sich als Dyson-Gleichung der konfigurationsgemittelten Green-Funktion in der VCA

$$\mathbf{G}^{\text{VCA}}(E) = \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \mathbf{G}^{\text{VCA}}(E). \quad (3.34)$$

Somit ist die VCA-Green-Funktion gegeben durch die Gleichung

$$\begin{aligned} \mathbf{G}^{\text{VCA}}(E) &= \hbar \left(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^0 - \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \right)^{-1} \\ &= \hbar \left(E\mathbf{1} - \langle \mathbf{H}^\xi \rangle_\xi \right)^{-1}, \end{aligned} \quad (3.35)$$

deren rechte Seite sich mit translationsinvariantem $\langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi$ durch Fourier-Transformation berechnen lässt. In der VCA wird also die konfigurationsgemittelte Hamilton-Matrix $\langle \mathbf{H}^\xi \rangle_\xi$ als effektive Hamilton-Matrix der konfigurationsgemittelten Green-Funktion \mathbf{G} verwendet. Damit ist \mathbf{G}^{VCA} unabhängig von der Wahl der Aufspaltung der Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ in geordneten Anteil \mathbf{H}^0 und Störpotential \mathbf{V}^ξ .

Für die Streumatrix bedeutet die VCA eine einfache Entkopplung der Störpotentiale:

$$\mathbf{T} \longrightarrow \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \sum_{k=0}^{\infty} \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \right)^k . \quad (3.36)$$

Für die Selbstenergie bedeutet die VCA, dass dort nur der erste Term berücksichtigt wird:

$$\Sigma \longrightarrow \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi . \quad (3.37)$$

Der Vorteil der VCA ist ihre relative Einfachheit. Außerdem lässt sie sich auf fast alle Modelle mit Substitutionsunordnung anwenden. Allerdings ist die VCA sehr grob. Ihre Ergebnisse entsprechen im wesentlichen denen eines geordneten Systems. Damit können die meisten Effekte, die auf die Unordnung zurückzuführen sind, mit der VCA nicht beschrieben werden.

In der Arbeit [60] von Montgomery, Krugler und Stubbs (MKS) wird für die Glieder von (3.13) folgende Näherung verwendet:

$$\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \right)^k \right\rangle_\xi \longrightarrow \begin{cases} \left(\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \right)^2 \right\rangle_\xi \right)^{k/2} & k \text{ gerade} \\ 0 & k \text{ ungerade} \end{cases} . \quad (3.38)$$

Ausgangspunkt für diese Näherung ist eine symmetrische Verteilung von \mathbf{V}^ξ , von der man annimmt, dass sie

$$\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \right)^{2n+1} \right\rangle_\xi = 0 \quad (3.39)$$

erfüllt. In diesem Fall verschwindet die VCA-Selbstenergie $\Sigma^{\text{VCA}} = \langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi = 0$ und somit ist \mathbf{G}^0 identisch mit der VCA-Greenfunktion. Um ein über die VCA-Näherung hinausgehendes Ergebnis zu erhalten, werden die übrig bleibenden Glieder der Reihe (3.13) gemäß

$$\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \right)^{2n} \right\rangle_\xi \longrightarrow \left(\left\langle \left(\frac{1}{\hbar} \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \right)^2 \right\rangle_\xi \right)^n \quad (3.40)$$

genähert. Damit kann man die so erhaltene Reihe wieder aufsummieren:

$$\mathbf{G}^{\text{MKS}}(E) = \mathbf{G}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0(E) \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \mathbf{G}^{\text{MKS}}(E) \quad (3.41)$$

beziehungsweise

$$\mathbf{G}^{\text{MKS}}(E) = \hbar \left(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^0 - \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \right)^{-1}. \quad (3.42)$$

Die konfigurationsgemittelten Terme sind dann wieder translationsinvariant, und damit kann die Gleichung durch Fourier-Transformation diagonalisiert werden. Wie man an der Dyson-Gleichung (3.41) sieht, enthält in dieser Näherung die Selbstenergie

$$\Sigma^{\text{MKS}} = \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi \quad (3.43)$$

neben dem verschwindenden VCA-Term nur den ersten nichtverschwindenden Term der vollen Selbstenergie. Dieser ist quadratisch im Störpotential \mathbf{V}^ξ . Gegenüber der VCA kann die MKS-Näherung demnach zu qualitativ anderen Vorhersagen für die Systemeigenschaften führen [60]. Die beiden soeben vorgestellten Näherungen lassen sich auf Systeme anwenden, die sowohl diagonale als auch nichtdiagonale und Umgebungsunordnung enthalten können. Für Systeme mit ausschließlich diagonaler Substitutionsunordnung sind eine Vielzahl weiterer Näherungen entwickelt worden [21, 26]. Unter den *Single-Site-Näherungen*, welche Korrelationen zwischen der Streuung an verschiedenen Gitterplätzen vernachlässigen, stellt die *Coherent-Potential Approximation* (CPA) [61–63] die mit Abstand beste Näherung dar, wie man mit Hilfe diagrammatischer Methoden zeigen kann [21, 26]. Die CPA ist so erfolgreich bei der Beschreibung von Systemen mit diagonaler Substitutionsunordnung, dass häufig versucht wurde, sie auf den Fall nichtdiagonaler Substitutionsunordnung zu verallgemeinern. Tatsächlich gelungen ist dies erstmals Blackman, Esterling und Berk [56]. Sie zerlegten dafür die Green-Funktion in mehrere bedingte Green-Funktionen, deren System von Bewegungsgleichungen sich dann in einem erweiterten Lokatorformalismus auf ein Problem diagonaler Unordnung transformieren ließ. Auf das resultierende Problem konnte anschließend die herkömmliche CPA angewendet werden. Voraussetzung für die Transformation auf diagonale Unordnung war allerdings die Abwesenheit von Umgebungsunordnung.

Um Systeme mit allgemeinerer Substitutionsunordnung zu behandeln, kann die *Kumulantenentwicklung* verwendet werden [44, 64–67]. Für ausschließlich diagonale Unordnung reduziert sich diese zu einer der CPA äquivalenten Näherung. Bei Vorhandensein von Umgebungs- und nichtdiagonaler Unordnung, wenn die CPA nicht anwendbar ist, stellt die Kumulantenentwicklung eine Verbesserung gegenüber der VCA dar. Die Güte der Näherung kann in solchen Fällen allerdings nicht so genau eingeschätzt werden wie bei der CPA für diagonale Substitutionsunordnung [26]. Für verschiedene Single-Site-Näherungen existieren Ansätze, diese dahingehend zu erweitern, *Cluster-Effekte* einzubeziehen [26]. Die daraus resultierenden *n-Site-* oder *Cluster-Näherungen*

sind wesentlich komplexer als die ursprünglichen Single-Site-Näherungen. Die bisher entwickelten Cluster-Näherungen haben allerdings noch nicht in umfassendem Maße die aus physikalischer Sicht gewünschten Eigenschaften wie zum Beispiel Selbstkonsistenz *und* korrektes analytisches Verhalten der Spektraldichte [26].

3.3 Mittelung für teilweise besetzte Gitter

Die bisher vorgestellten Methoden zur Konfigurationsmittelung können in bestimmten Fällen, wie zum Beispiel für verdünnte Spinsysteme, nicht direkt verwendet werden. Erfüllt nämlich die Green-Funktion die gegenüber Gleichung (3.4) allgemeinere Bewegungsgleichung

$$(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi) \mathbf{G}^\xi(E) = \hbar \mathbf{P}^\xi, \quad (3.44)$$

so müssen die Näherungen bei der Konfigurationsmittelung daran angepasst werden. Falls \mathbf{P}^ξ invertierbar ist, kann (3.44) von rechts mit $(\mathbf{P}^\xi)^{-1}$ multipliziert werden:

$$(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi) \mathbf{G}^\xi(E) (\mathbf{P}^\xi)^{-1} = \hbar \mathbf{1}. \quad (3.45)$$

Durch anschließenden Übergang von $\mathbf{G}^\xi(E)$ nach

$$\tilde{\mathbf{G}}^\xi(E) = \mathbf{G}^\xi(E) (\mathbf{P}^\xi)^{-1} \quad (3.46)$$

kann dann die Bewegungsgleichung auf die vertraute Form (3.4) gebracht werden.

Für verdünnte Spinsysteme ist \mathbf{P}^ξ allerdings nicht invertierbar, sondern hat die Form

$$P_{ij}^\xi = p_i^\xi \delta_{ij}, \quad (3.47)$$

wobei

$$p_i^\xi = \begin{cases} 1 & \text{Platz } i \text{ „besetzt“} \\ 0 & \text{Platz } i \text{ „leer“} \end{cases}. \quad (3.48)$$

Somit lässt sich die Transformation (3.46) nicht anwenden. Löst man aber zunächst das Problem

$$(E\mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi) \tilde{\mathbf{G}}^\xi(E) = \hbar \mathbf{1}, \quad (3.49)$$

dann zeigt der Vergleich mit Gleichung (3.44), dass

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \tilde{\mathbf{G}}^\xi(E) \mathbf{P}^\xi. \quad (3.50)$$

Nutzt man wieder die Aufspaltung (3.7) der Hamilton-Matrix und definiert

$$\tilde{\mathbf{G}}(E) = \hbar (E\mathbf{1} - \mathbf{H}^0(E))^{-1} \quad (3.51)$$

als geordnete Green-Funktion, so erhält man zunächst für $\tilde{\mathbf{G}}$ die Dyson-Gleichung:

$$\tilde{\mathbf{G}}^\xi(E) = \tilde{\mathbf{G}}^0(E) + \frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{V}^\xi \tilde{\mathbf{G}}^\xi(E). \quad (3.52)$$

Somit ergibt sich für \mathbf{G}^ξ eine modifizierte Dyson-Gleichung:

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{P}^\xi + \frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^\xi(E). \quad (3.53)$$

Iteriert man diese, so findet man:

$$\mathbf{G}^\xi(E) = \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{P}^\xi + \frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{V}^\xi \cdot \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{P}^\xi + \dots \quad (3.54)$$

Für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion ergibt sich damit als Reihe:

$$\mathbf{G}(E) = \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \langle \mathbf{P}^\xi \rangle_\xi + \frac{1}{\hbar} \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \left\langle \mathbf{V}^\xi \tilde{\mathbf{G}}^0(E) \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi + \dots \quad (3.55)$$

An den Gliedern dieser Reihe werden dann wieder entsprechende Näherungen vorgenommen, um eine geschlossene Form für \mathbf{G} zu erhalten. Diese Näherungen unterscheiden sich von den in den letzten Abschnitten vorgestellten Näherungen in dem zusätzlich zu berücksichtigenden \mathbf{P}^ξ -Faktor in den Reihengliedern.

Kapitel 4

Konfigurationsmittelung für verdünnte Spinsysteme

Die aus der Verdünnung resultierende Unordnung bereitet bei der Behandlung verdünnter Spinsysteme zusätzliche Schwierigkeiten. Einer der ersten, der sich theoretisch mit diesem Problem beschäftigte, war Brout [68], der dazu durch experimentelle Arbeiten zu ungeordneten Legierungen seltener Erden [69] angeregt wurde. Brout benutzte in seiner Arbeit bereits die Mittelung über die Konfigurationsunordnung, um das Problem fehlender Translationsinvarianz bei den verdünnten Spinsystemen zu behandeln. Allerdings beschränkte er sich bei der Diskussion der Ergebnisse seiner Theorie auf qualitative Aussagen. Auf Grundlage der Fortschritte bei der Beschreibung elektronischer Eigenschaften ungeordneter Legierungen mittels der Methoden der Konfigurationsmittelung entstanden eine ganze Reihe Arbeiten zu ungeordneten Spinsystemen in den Siebziger Jahren des letzten Jahrhunderts [34–48, 51, 60]. In den Achtziger und Neunziger Jahren ging das Interesse an der Theorie ungeordneter Spinsysteme zurück, und die Zahl der Veröffentlichungen zu diesem Thema war vergleichsweise gering [49, 50, 53, 70]. Mit einiger Zeitverzögerung belebte jedoch die Entdeckung der ersten ferromagnetischen DMS in den Neunziger Jahren [2, 3] das Interesse an allgemeinen Theorien zur Konfigurationsmittelung in verdünnten Spinsystemen wieder. So entstanden um die Jahrtausendwende einige neue Arbeiten auf diesem Gebiet [54, 71, 72].

Bei der Behandlung verdünnter Spinsystemen mit den Methoden der Konfigurationsmittelung ergeben sich spezielle Probleme. Bereits das Aufstellen einer zur Konfigurationsmittelung geeigneten Bewegungsgleichung für eine Green-Funktion, die sowohl die besetzten als auch die unbesetzten Gitterplätze korrekt beschreibt, ist nicht ganz unproblematisch. In Kapitel 2 wurde dieses Problem mit der Tyablikov-Näherung und der Einführung von Besetzungsindikatoren

gelöst. Die daraus resultierende Bewegungsgleichung (2.56) bildet den Ausgangspunkt der Betrachtungen dieses Kapitels. Im ersten Abschnitt werden einige Eigenschaften der verwendeten Green-Funktion und ihrer Bewegungsgleichung im Hinblick auf die Konfigurationsmittelung untersucht. In den folgenden Abschnitten werden verschiedene Näherungen zur Konfigurationsmittelung vorgestellt. Dabei sollen auch alternative Ansätze zur Beschreibung verdünnter Spinsysteme mit Methoden der Konfigurationsmittelung besprochen werden. Im vierten Abschnitt wird eine Näherung zu amorphen Spinsystemen vorgestellt. Im fünften Abschnitt wird eine Methode besprochen, die statt der Tyablikov-Näherung die Mean-Field-Näherung verwendet. Weitere in der Literatur verwendete Ansätze werden im letzten Abschnitt diskutiert.

4.1 Vorbereitungen

Zunächst wird als Ausgangspunkt für die Methoden der Konfigurationsmittelung für verdünnte Spinsysteme das Modell der Besetzungsindikatoren aus Abschnitt 2.3 gewählt. Für eine Konfiguration \mathcal{K}^ξ eines verdünnten Spinsystems, welches durch den Hamilton-Operator

$$H^\xi = - \sum_{i,j} p_i^\xi J_{ij} p_j^\xi \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} gJ\mu_B B \sum_i p_i^\xi S_i^z \quad (4.1)$$

mit den Besetzungsindikatoren

$$p_i^\xi = \begin{cases} 1 & \text{Gitterplatz } i \text{ besetzt} \\ 0 & \text{Gitterplatz } i \text{ unbesetzt} \end{cases} \quad (4.2)$$

beschrieben wird, ergibt sich für die Green-Funktion

$$G_{ij}^\xi(E) := \left\langle \left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} \quad (4.3)$$

mit den Näherungen aus Abschnitt 2.3 die Bewegungsgleichung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - p_i^\xi gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n p_i^\xi J_{in} p_n^\xi \right) \delta_{im} + p_i^\xi J_{im} p_m^\xi \right) G_{mj}^\xi = \delta_{ij} p_j^\xi. \quad (4.4)$$

In diesem Kapitel wird angenommen, dass die Energie E einen infinitesimalen imaginären Anteil $i0^+$ enthält. Dieser ist notwendig, damit die Green-Funktion $G^\xi(E)$ die für eine retardierte Green-Funktion geforderten Randbedingungen erfüllt und die Spektraldichte $S_{ii}^\xi(E) = -1/\pi \text{Im}G_{ii}$ nicht negativ ist [21].

In Matrixnotation lautet die Bewegungsgleichung (4.4) für $\mathbf{G}^\xi(E)$:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \frac{g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{P}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{D}^\xi + \mathbf{P}^\xi \mathbf{J} \mathbf{P}^\xi \right) \mathbf{G}^\xi = \mathbf{P}^\xi \quad (4.5)$$

mit

$$P_{ij}^\xi = p_i^\xi \delta_{ij} \quad (4.6)$$

und

$$D_{ij}^\xi = \delta_{ij} \sum_n J_{in} p_n^\xi . \quad (4.7)$$

Mit der Hamilton-Matrix

$$\mathbf{H}^\xi = g_J \mu_B B \mathbf{P}^\xi + 2\hbar \langle S^z \rangle (\mathbf{P}^\xi \mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J} \mathbf{P}^\xi) \quad (4.8)$$

lässt sich die Bewegungsgleichung kurz schreiben als:

$$\frac{1}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} (E \mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi) \mathbf{G}^\xi = \mathbf{P}^\xi . \quad (4.9)$$

Diese Bewegungsgleichung enthält sowohl diagonale, als auch nichtdiagonale Unordnung. Damit kann beispielsweise die herkömmliche CPA [61–63] nicht angewendet werden. Außerdem tritt in der Bewegungsgleichung Umgebungsunordnung auf. Damit entfällt auch die Möglichkeit, die Methode von Blackman, Esterling und Berk [56] zu verwenden, mit der man ein Problem mit nichtdiagonaler Unordnung auf ein Problem mit ausschließlich diagonalen Unordnung transformiert. Ferner enthält auch die rechte Seite der Gleichung Unordnung.

Eine wichtige Eigenschaft von Spinsystemen ist, dass sie – in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes B und unter einigen physikalisch nur wenig einschränkenden Voraussetzungen für die Austauschparameter – das *Goldstone-Theorem* erfüllen [73–75]. Dies besagt, dass *Goldstone-Systeme*, also Systeme, welche die Voraussetzungen des Goldstone-Theorems erfüllen, Anregungszustände besitzen, deren Anregungsenergien beliebig nahe am Grundzustand des Systems liegen. Im konzentrierten Spinsystem sind dies die langwelligen Spinwellen. Aber auch verdünnte Spinsysteme sind Goldstone-Systeme. Die Tyablikov-Näherung erhält diese wichtige Eigenschaft der Spinsysteme; dort drückt sie sich in einer Balance zwischen den Diagonal- und den Nichtdiagonalelementen der Hamilton-Matrix (4.8) aus:

$$\sum_j H_{ij}^\xi = 0 \quad \forall i = 1, \dots, N, \text{ falls } B = 0 . \quad (4.10)$$

Deshalb kommen für die Konfigurationsmittelung nur solche Näherungen in Frage, welche die Korrelationen zwischen den Diagonal- und Nichtdiagonaltermen der Hamilton-Matrix berücksichtigen und damit die Goldstone-Eigenschaft der Spinsysteme erhalten.

Für die Konfigurationsmittelung bietet es sich an, die Gleichung (2.61) und die Vertauschbarkeit von \mathbf{P}^ξ mit diagonalen Matrizen zu verwenden. Dies vereinfacht die Bewegungsgleichung:

$$\frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D}^\xi + \mathbf{P}^\xi \mathbf{J} \right) \mathbf{G}^\xi = \mathbf{P}^\xi . \quad (4.11)$$

Für das Ensemble $\mathcal{E} = \{\mathcal{K}^\xi\}_{\xi \in I}$ sei im Folgenden angenommen, dass die Spins mit einer Konzentration $c \in [0, 1]$ statistisch über das Gitter verteilt sind. Damit ist c gleichzeitig die Wahrscheinlichkeit dafür, einen Spin an einem bestimmten Gitterplatz anzutreffen:

$$c = \langle p_i^\xi \rangle_\xi \quad \forall i = 1, \dots, N . \quad (4.12)$$

Ferner seien die Besetzungen unterschiedlicher Gitterplätze unkorreliert. Das heißt zum Beispiel:

$$\langle p_i^\xi p_j^\xi \rangle_\xi = c \delta_{ij} + c^2 (1 - \delta_{ij}) \quad \forall i, j = 1, \dots, N . \quad (4.13)$$

Analoges gelte für höhere Korrelationen. Damit wird natürlich eine eventuell in realen Substanzen vorhandene chemische Nahordnung im Modell nicht berücksichtigt.

In den folgenden Abschnitten werden verschiedene Näherungen für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion

$$\mathbf{G} = \langle \mathbf{G}^\xi \rangle_\xi \quad (4.14)$$

vorgestellt. Eigentliches Ziel ist es, aus dieser die Magnetisierung selbstkonsistent zu bestimmen. Dabei ist eine im Folgenden diskutierte Feinheit zu beachten, die auf die Näherung zurückzuführen ist, dass für alle besetzten Gitterplätze eine einheitliche Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle^\xi = \langle S^z \rangle$ und für die unbesetzten Gitterplätze $\langle S_i^z \rangle^\xi = 0$ angenommen wird: Aus Gleichung (2.60) folgt für die Konfigurationen $\mathcal{K}^\xi \in \mathcal{E}$ mit unbesetztem Gitterplatz i eine verschwindende Greenfunktion G_{ii}^ξ . Die Konfigurationen mit besetztem Gitterplatz i haben in \mathcal{E} insgesamt das statistische Gewicht c . Damit ist die konfigurationsgemittelte lokale Green-Funktion:

$$G_{ii} = c \langle G_{ii}^\xi \rangle_{\xi \text{ mit } p_i^\xi=1} + (1 - c) \langle G_{ii}^\xi \rangle_{\xi \text{ mit } p_i^\xi=0} = c \langle G_{ii}^\xi \rangle_{\xi \text{ mit } p_i^\xi=1} . \quad (4.15)$$

Daraus folgt für die konfigurationsgemittelte lokale Green-Funktion unter der Einschränkung, dass der Gitterplatz i besetzt ist, die Beziehung

$$\tilde{G}_{ii} = \langle G_{ii}^\xi \rangle_{\xi \text{ mit } p_i^\xi=1} = \frac{1}{c} G_{ii} . \quad (4.16)$$

Diese Green-Funktion wird nachfolgend als Näherung für die lokale Green-Funktion G_{ii}^ξ eines besetzten Gitterplatzes i verwendet, welche die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle^\xi$ am Gitterplatz i festlegt. Dies bedeutet dann auch, dass dort die zu \tilde{G}_{ii} gehörende Spektraldichte

$$\tilde{S}_{ii} = \frac{1}{c} S_{ii} \quad (4.17)$$

benutzt wird, um die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ zu berechnen.

4.2 Die Virtual-Crystal Approximation

Für die Virtual-Crystal Approximation ist die Wahl der Aufspaltung der Hamilton-Matrix \mathbf{H}^ξ in geordneten Anteil \mathbf{H}^0 und Störpotential \mathbf{V}^ξ nicht entscheidend. Wählt man den Lokator des konzentrierten Spinsystems

$$\mathbf{g} = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B} \mathbf{1} \quad (4.18)$$

als geordnete Green-Funktion, so ergibt sich die Dyson-Gleichung

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{g} \mathbf{P}^\xi + \mathbf{g} \frac{1}{\hbar} (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J}) \mathbf{G}^\xi . \quad (4.19)$$

Iteriert man diese, so erhält man:

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{g} \mathbf{P}^\xi + \mathbf{g} \frac{1}{\hbar} (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J}) \mathbf{g} \mathbf{P}^\xi + \mathbf{g} \frac{1}{\hbar} (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J}) \mathbf{g} \frac{1}{\hbar} (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J}) \mathbf{g} \mathbf{P}^\xi + \dots \quad (4.20)$$

Für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion ergibt sich damit:

$$\mathbf{G} = c \mathbf{g} + \mathbf{g} \frac{1}{\hbar} \langle (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{P}^\xi \mathbf{J}) \mathbf{g} \mathbf{P}^\xi \rangle_\xi + \dots \quad (4.21)$$

Nähert man nun gemäß der Vorschrift (3.33) alle Glieder der Reihe mittels

$$\langle \dots P_{ij}^\xi \dots P_{kl}^\xi \dots \rangle_\xi \xrightarrow{\text{VCA}} \dots \langle P_{ij}^\xi \rangle_\xi \dots \langle P_{kl}^\xi \rangle_\xi \dots = \dots c \delta_{ij} \dots c \delta_{kl} \dots \quad (4.22)$$

und summiert die so erhaltene Reihe wieder auf, so erhält man die VCA-Green-Funktion

$$\begin{aligned} \mathbf{G}^{\text{VCA}} &= \sum_{k=0}^{\infty} \left(\mathbf{g} \frac{1}{\hbar} (J_0 c \mathbf{1} - c \mathbf{J}) \right)^k \mathbf{g} c \\ &= c \hbar \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - c J_0 \mathbf{1} + c \mathbf{J} \right)^{-1} . \end{aligned} \quad (4.23)$$

Für die Wahl $\mathbf{G}^0 = \mathbf{g}$ ist die VCA-Selbstenergie somit:

$$\mathbf{\Sigma}^{\text{VCA}} = \langle \mathbf{D}^\xi + \mathbf{P}^\xi \mathbf{J} \rangle_\xi = c J_0 \mathbf{1} - c \mathbf{J} . \quad (4.24)$$

Eine Fourier-Transformation diagonalisiert die VCA-Green-Funktion, und man erhält

$$G_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}}(E) = \frac{c 2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - c 2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}})} . \quad (4.25)$$

Für $c = 1$ reproduziert die VCA-Green-Funktion die Green-Funktion (2.15) für den konzentrierten Fall. Auch für $c = 0$ erfüllt die VCA-Green-Funktion den Grenzfall korrekt mit $\mathbf{G}^{\text{VCA}} = 0$.

Die lokale Spektraldichte

$$S_{ii}^{\text{VCA}} = -\frac{1}{\pi} \text{Im} G_{ii}^{\text{VCA}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} c 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}}) \quad (4.26)$$

mit

$$E_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}} = g_J \mu_B B + c 2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}}) \quad (4.27)$$

ist gegenüber der Spektraldichte (2.22) für den konzentrierten Fall als Funktion der Energie in E -Richtung mit dem Faktor c gestaucht. Damit ist die integrierte VCA-Spektraldichte proportional zur Konzentration:

$$\int_{-\infty}^{\infty} S_{ii}^{\text{VCA}}(E) dE = c 2\hbar^2 \langle S^z \rangle . \quad (4.28)$$

Dies würde die exakte konfigurationsgemittelte lokale Spektraldichte auch liefern.

Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ wird bestimmt aus der Green-Funktion

$$\tilde{\mathbf{G}}^{\text{VCA}} = \frac{1}{c} \mathbf{G}^{\text{VCA}} = \hbar \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - c J_0 \mathbf{1} + c \mathbf{J} \right)^{-1} , \quad (4.29)$$

welche die Fourier-Transformierte

$$\tilde{G}_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}}(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - c 2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}}) + i0^+} . \quad (4.30)$$

besitzt. Die Green-Funktion $\tilde{\mathbf{G}}^{\text{VCA}}$ stellt nun die Näherung der Green-Funktion für die besetzten Gitterplätze dar. Aus ihr ergibt sich für die besetzten Gitterplätze als Näherung für die lokale Spektraldichte

$$\tilde{S}_{ii}^{\text{VCA}} = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}}) , \quad (4.31)$$

deren Energieintegral auf $2\hbar^2 \langle S^z \rangle$ normiert ist. Man erhält somit eine Curie-Temperatur, die proportional zur Konzentration ist:

$$k_B T_C = c \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{J_0 - J_{\mathbf{k}}} \right)^{-1} . \quad (4.32)$$

Als Anwendungsbeispiel für die VCA soll im folgenden ein System von $S = 1/2$ -Spins auf einem einfach-kubischen Gitter mit Nächste-Nachbar-Wechselwirkung diskutiert werden. Im folgenden wird $B = 0^+$ angenommen. Die Stärke der Nächste-Nachbar-Wechselwirkung wird mit J^0 und die Gitterkonstante mit a bezeichnet. Für die Fourier-Transformierte der Austauschwechselwirkung hat man:

$$J_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j \cdot \mathbf{k}} J_{ij} = 2J^0 (\cos(ak_x) + \cos(ak_y) + \cos(ak_z)) . \quad (4.33)$$

Damit ist die VCA-Green-Funktion

$$G_{\mathbf{k}}^{\text{VCA}}(E) = \frac{c \, 2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - c \, 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}}} \quad (4.34)$$

mit der Abkürzung

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = 6 - 2 \cos(ak_x) - 2 \cos(ak_y) - 2 \cos(ak_z). \quad (4.35)$$

Daraus ergibt sich für die lokale Spektraldichte:

$$S_{ii}^{\text{VCA}} = c \, 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \delta(E - c \, 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}}). \quad (4.36)$$

Die Zustandsdichten S_{ii}^{VCA} und $\tilde{S}_{ii}^{\text{VCA}} = S_{ii}^{\text{VCA}}/c$ sind in Abbildung 4.1 und 4.2 dargestellt. Diese haben die bekannte Form einer einfach-kubischen Zustandsdichte, für welche in der Literatur gute Näherungsformeln vorhanden sind. Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ wird mittels Iteration aus

$$\langle S^z \rangle = \frac{\hbar}{2} - 2c \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{e^{2\beta c \hbar J^0 \langle S^z \rangle \epsilon_{\mathbf{k}}} - 1} \quad (4.37)$$

bestimmt. In Abbildung 4.3 ist der Temperaturverlauf von $\langle S^z \rangle$ für verschiedene Konzentrationen c dargestellt. Für die Curie-Temperatur ergibt sich:

$$k_{\text{B}} T_{\text{C}} = c \hbar^2 J^0 \frac{1}{2} \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{\epsilon_{\mathbf{k}}} \right)^{-1} \approx 1.98 c \hbar^2 J^0. \quad (4.38)$$

In Abbildung 4.4 ist diese in Abhängigkeit von der Konzentration dargestellt.

Die VCA stellt gewissermaßen eine erste Näherung für den Einfluss der Verdünnung auf Magnetisierung und Curie-Temperatur dar. Wegen ihrer relativen Einfachheit wird diese Näherung oft

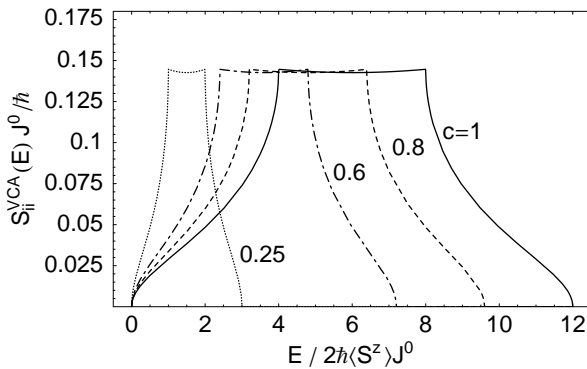


Abbildung 4.1: Die lokale Spektraldichte $S_{ii}^{\text{VCA}}(E)$ für verschiedene Konzentrationen c .

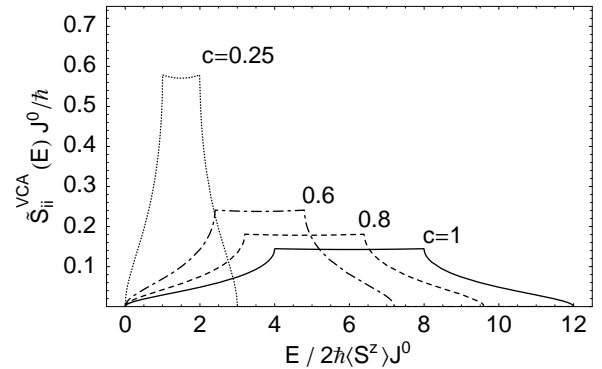


Abbildung 4.2: Die lokale Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}^{\text{VCA}}(E)$ der besetzten Gitterplätze für verschiedene Konzentrationen c .

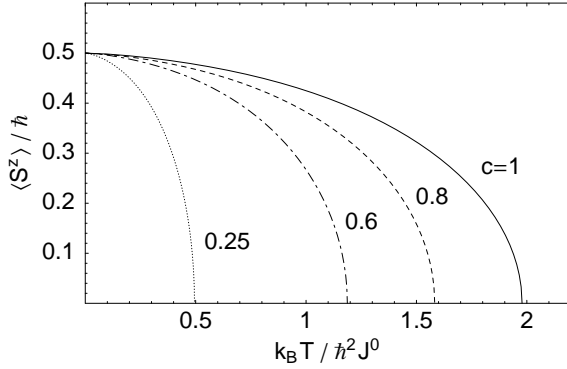


Abbildung 4.3: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur T für verschiedene Konzentrationen c .

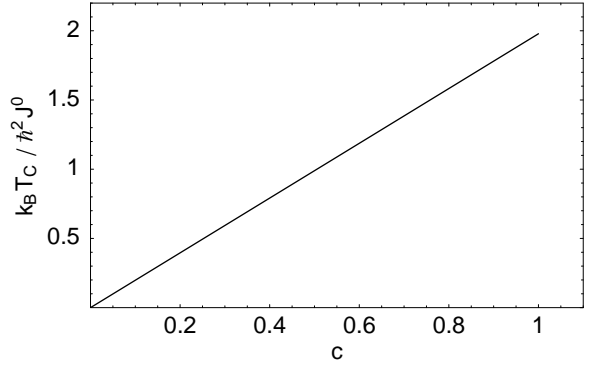


Abbildung 4.4: Die Curie-Temperatur T_C als Funktion der Konzentration c .

zur Berechnung magnetischer Eigenschaften verdünnter Spinsysteme benutzt, insbesondere für langreichweitige Wechselwirkungen [71]. Die Verwendung der Virtual-Crystal-Näherung birgt aber auch Probleme: In der VCA wächst die Curie-Temperatur linear mit der Konzentration. Damit ergibt sich eine endliche Curie-Temperatur auch für sehr kleine Konzentrationen. Dies steht im Widerspruch zu der Tatsache, dass unterhalb der kritischen Perkolkonzentration c_p , die für einfach-kubische Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung bei $c \approx 0.3$ liegt, die verbleibenden Spins keinen ausgedehnten durch die Wechselwirkung verbundenen Cluster bilden können, was jedoch eine Grundvoraussetzung für kollektive magnetische Phänomene, wie Ferromagnetismus, ist. Die VCA liefert also im allgemeinen keine befriedigenden Ergebnisse für kleine Konzentrationen und ist völlig ungeeignet für Konzentrationen unterhalb der Perkolkonzentration des Modells.

4.3 Die quadratische Näherung

In diesem Abschnitt wird eine von Dvay-Aharon und Fibich in der Arbeit [47] vorgeschlagene Methode diskutiert, die über die Virtual-Crystal-Näherung hinausgeht. Sie basiert auf einer Näherung für die Konfigurationsmittelung, die der von Montgomery, Krugler und Stubbs in Arbeit [60] vorgestellten sehr ähnlich ist: Die aus der Iteration einer Dyson-artigen Gleichung resultierenden Glieder werden in der Konfigurationsmittelung derart entkoppelt, dass die resultierende Selbstenergie quadratisch im Störpotential ist. Spaltet man den Virtual-Crystal-Anteil

$$(\mathbf{G}^0)^{-1} = (\tilde{\mathbf{G}}^{\text{VCA}})^{-1} = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - cJ_0 \mathbf{1} + c\mathbf{J} \right) \quad (4.39)$$

als geordneten Anteil in der Bewegungsgleichung (4.11) ab, so erhält man als Dyson-Gleichung:

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^\xi \quad (4.40)$$

mit Störpotential

$$\mathbf{V}^\xi = \mathbf{D}^\xi - (\mathbf{P}^\xi - c\mathbf{1}) \mathbf{J} \quad (4.41)$$

und

$$D_{ij}^\xi = \delta_{ij} \sum_n J_{in} (p_n^\xi - c) . \quad (4.42)$$

Iteriert man diese, so ergibt sich:

$$\mathbf{G}^\xi = \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi + \dots + \frac{1}{\hbar^n} \mathbf{G}^0 (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^n \mathbf{P}^\xi + \dots \quad (4.43)$$

Wählt man für die Glieder der konfigurationsgemittelten Reihe

$$\mathbf{G} = c\mathbf{G}^0 + \dots + \frac{1}{\hbar^n} \mathbf{G}^0 \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^n \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi + \dots \quad (4.44)$$

die in Arbeit [47] vorgeschlagene und dort als *Low Quadratic Approximation* (LQA) bezeichnete Näherung

$$\begin{aligned} \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^{2n} \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi &\xrightarrow{\text{LQA}} \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^2 \right\rangle_\xi^n \left\langle \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi \\ \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^{2n+1} \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi &\xrightarrow{\text{LQA}} \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^2 \right\rangle_\xi^n \left\langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi , \end{aligned} \quad (4.45)$$

so ergibt sich nach dem Aufsummieren für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion als Näherung die LQA-Green-Funktion

$$\mathbf{G}^{\text{LQA}} = \mathbf{G}^0 \left(1 - \frac{1}{\hbar^2} \left\langle (\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0)^2 \right\rangle_\xi \right)^{-1} \left(\left\langle \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi + \frac{1}{\hbar} \left\langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi \right\rangle_\xi \right) \quad (4.46)$$

beziehungsweise in kompakter Schreibweise

$$\mathbf{G}^{\text{LQA}} = \bar{\mathbf{G}}^{\text{LQA}} (c\mathbf{1} + \mathbf{\Delta}^{\text{LQA}}) \quad (4.47)$$

mit der unkorrigierten Green-Funktion

$$\bar{\mathbf{G}}^{\text{LQA}} = \left((\mathbf{G}^0)^{-1} - \frac{1}{\hbar} \mathbf{\Sigma}^{\text{LQA}} \right)^{-1} , \quad (4.48)$$

welche die Selbstenergie

$$\mathbf{\Sigma}^{\text{LQA}} = \frac{1}{\hbar} \left\langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^\xi \right\rangle_\xi \quad (4.49)$$

enthält, und der Endpunktkorrektur

$$\Delta^{\text{LQA}} = \frac{1}{\hbar} \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0 \mathbf{P}^\xi \rangle_\xi . \quad (4.50)$$

Mit der Verwendung der VCA-Green-Funktion als geordnete Green-Funktion in der Reihenentwicklung (4.44) geht die Hoffnung einher, dass nicht nur $\langle \mathbf{V}^\xi \rangle_\xi$ verschwindet, sondern auch die Reihenglieder möglichst klein werden. Die Entkopplung der Reihenglieder (4.45) ist gerade deshalb so gewählt, dass sich die resultierende Reihe wieder aufsummieren lässt und eine der einfachsten Näherungen liefert, die über die VCA hinausgeht. Allen Näherungen jenseits der VCA ist gemeinsam, dass sie eine nichttriviale Endpunktkorrektur haben. Ebenso wie der Term $c\mathbf{1}$ in der Näherungslösung (4.47) hat die Endpunktkorrektur ihren Ursprung in der von $\mathbf{1}$ verschiedenen Inhomogenität in der Bewegungsgleichung (4.11). Die Abspaltung des Terms $c\mathbf{1}$ von Δ ist Konvention. Da in dieser Näherung die Selbstenergie quadratisch im Störpotential ist, wird die Näherung hier als *quadratische* Näherung bezeichnet. Die von Dvey-Aharon und Fibich in ihrer Arbeit [47] gewählte Bezeichnung „LQA“ wird später etwas genauer erläutert; zunächst soll diese Näherung jedoch weiter ausgewertet werden.

Für die konkrete Berechnung von Σ^{LQA} und Δ^{LQA} werden modifizierte Besetzungsindikatoren

$$\rho_i^\xi = p_i^\xi - c , \quad (4.51)$$

$$\rho_{ij}^\xi = \rho_i^\xi \delta_{ij} \quad (4.52)$$

eingeführt. Für diese gilt:

$$\begin{aligned} \langle \rho_i^\xi \rangle_\xi &= 0 \\ \langle \rho_i^\xi \rho_j^\xi \rangle_\xi &= (c - c^2) \delta_{ij} \quad \forall i, j . \end{aligned} \quad (4.53)$$

Mit ihnen lässt sich das Störpotential etwas kürzer schreiben als:

$$V_{ij}^\xi = \delta_{ij} \sum_n J_{in} \rho_n^\xi - \rho_j^\xi J_{ij} . \quad (4.54)$$

Ferner bietet es sich an, die Rechnungen im \mathbf{k} -Raum durchzuführen. Mit

$$\rho_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\xi = \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^\xi = \frac{1}{N} \sum_i e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}') \cdot \mathbf{R}_i} \rho_i^\xi , \quad (4.55)$$

$$P_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^\xi = c \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} + \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^\xi \quad (4.56)$$

und

$$J_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = J_{\mathbf{k}} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k} \cdot (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j)} J_{ij} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (4.57)$$

hat man für das Fourier-transformierte Störpotential (siehe Anhang B):

$$V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\xi} = \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'}^{\xi} (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} - J_{\mathbf{k}'}) . \quad (4.58)$$

Ferner ist

$$G_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^0 = \tilde{G}_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{VCA}}(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}})} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \quad (4.59)$$

und

$$\begin{aligned} \left\langle \rho_{\mathbf{k}}^{\xi} \right\rangle_{\xi} &= 0, \\ \left\langle \rho_{\mathbf{k}_1}^{\xi} \rho_{\mathbf{k}_2}^{\xi} \right\rangle_{\xi} &= (c - c^2) \frac{1}{N} \delta(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) . \end{aligned} \quad (4.60)$$

Damit ist die Fourier-transformierte Selbstenergie

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{LQA}}(E) &= \frac{1}{\hbar} \left\langle (\mathbf{V}^{\xi} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^{\xi})_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \right\rangle_{\xi} \\ &= \left\langle \sum_{\mathbf{k}''} \frac{\rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''}^{\xi} (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''}) 2\hbar \langle S^z \rangle \rho_{\mathbf{k}''-\mathbf{k}'}^{\xi} (J_{\mathbf{k}''-\mathbf{k}'} - J_{\mathbf{k}'})}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}''})} \right\rangle_{\xi} \\ &= \sum_{\mathbf{k}''} \frac{(J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''}) 2\hbar \langle S^z \rangle (J_{\mathbf{k}''-\mathbf{k}'} - J_{\mathbf{k}'})}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}''})} \left\langle \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''}^{\xi} \rho_{\mathbf{k}''-\mathbf{k}'}^{\xi} \right\rangle_{\xi} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{(c - c^2) 2\hbar \langle S^z \rangle (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''}) (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}'})}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}''})} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \\ &= \Sigma_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} . \end{aligned} \quad (4.61)$$

Für die Endpunktkorrektur hat man:

$$\begin{aligned} \Delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{\text{LQA}}(E) &= \frac{1}{\hbar} \left\langle (\mathbf{V}^{\xi} \mathbf{G}^0(E) \mathbf{P}^{\xi})_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \right\rangle_{\xi} \\ &= \left\langle \sum_{\mathbf{k}''} \frac{\rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''}^{\xi} (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''}) 2\hbar \langle S^z \rangle (c\delta_{\mathbf{k}''\mathbf{k}'} + \rho_{\mathbf{k}''-\mathbf{k}'}^{\xi})}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}''})} \right\rangle_{\xi} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{(c - c^2) 2\hbar \langle S^z \rangle (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''})}{E - g_J \mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}''})} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} \\ &= \Delta_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E) \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} . \end{aligned} \quad (4.62)$$

Damit ergibt sich schließlich für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion:

$$\begin{aligned} G_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E) &= \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle \left(c + \Delta_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E) \right)}{E - gJ\mu_B B - c2\hbar \langle S^z \rangle (J_0 - J_{\mathbf{k}}) - 2\hbar \langle S^z \rangle \Sigma_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E)} \\ &= \hbar \frac{1 + \frac{1-c}{c} \bar{\Delta}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\bar{E})}{\bar{E} - (J_0 - J_{\mathbf{k}}) - \frac{1-c}{c} \bar{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\bar{E})} \end{aligned} \quad (4.63)$$

mit den Abkürzungen

$$\bar{E} = \frac{E - gJ\mu_B B}{c2\hbar \langle S^z \rangle}, \quad (4.64)$$

$$\bar{\Delta}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\bar{E}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''}}{\bar{E} - (J_0 - J_{\mathbf{k}''})}, \quad (4.65)$$

$$\bar{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\bar{E}) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{(J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}''})(J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}})}{\bar{E} - (J_0 - J_{\mathbf{k}''})}. \quad (4.66)$$

Die quantitative Auswertung dieser Näherung für gegebene Spinsysteme gestaltet sich numerisch recht aufwendig, da explizit Summen im \mathbf{k} -Raum ausgeführt werden müssen. In der Arbeit [47] wird die quadratische Näherung dazu verwendet, die Spektraldichte und die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur für ein System von $S = 1/2$ -Spins auf einem einfach-kubischen Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung zu berechnen. Weiterhin werden in der Arbeit [47] die Response-Funktion $S_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E) = -1/\pi \text{Im} G_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E)$ und die spezifische Wärme des Spinsystems untersucht.

Für den Fall $S = 1/2$ erhält man für die Curie-Temperatur [47]:

$$k_B T_C = c\hbar^2 \left(\frac{2}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1 + \frac{1-c}{c} \bar{\Delta}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(0)}{(J_0 - J_{\mathbf{k}}) + \frac{1-c}{c} \bar{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(0)} \right)^{-1}. \quad (4.67)$$

Diese Gleichung wird in Arbeit [47] verwendet, um für ein System von $S = 1/2$ -Spins mit

$$J(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) = \begin{cases} J^1 & i \text{ und } j \text{ Nächste Nachbarn} \\ J^2 & i \text{ und } j \text{ Übernächste Nachbarn} \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (4.68)$$

für das einfach-kubische, das kubisch-flächenzentrierte und das kubisch-raumzentrierte Gitter die Curie-Temperatur T_C als Funktion der Konzentration c zu bestimmen. Die Curie-Temperatur zeigt dabei qualitativ für alle drei Gittertypen und verschiedene J^1 und J^2 das gleiche Verhalten: Im Gegensatz zur VCA verschwindet die Curie-Temperatur unterhalb einer kritischen Konzentration

$c_c > 0$, die von der Gitterstruktur und dem Verhältnis J^2/J^1 abhängt. Oberhalb c_c zeigt T_C hingegen einen im Wesentlichen linearen Verlauf.

In der Arbeit [47] werden kritische Konzentrationen außerdem für den Fall einer zusätzlichen Wechselwirkung J^3 zwischen Drittnächsten Nachbarn berechnet. Für die verschiedenen Gittertypen und der Wahl $\{J^1 > 0, J^2 = 0, J^3 = 0\}$, $\{J^1 > 0, J^2 = J^1, J^3 = 0\}$ beziehungsweise $\{J^1 > 0, J^2 = J^1, J^3 = J^1\}$ als Parameter zeigt c_c recht gute Übereinstimmung mit der aus der Perkolations-theorie folgenden kritischen Perkolationskonzentration c_p . Dies spricht für die quadratische Näherung.

Wie bereits erwähnt, ist in der hier vorgestellten Näherung die Selbstenergie quadratisch im Störpotential. In Arbeit [47] wird gezeigt, dass diese Näherung nur einen Teil der quadratischen – das heißt, mit dem Faktor $P_2(c) = c - c^2$ assoziierten – Terme in der Reihe (4.44) berücksichtigt. Deshalb wird dort diese Näherung als *Low Quadratic Approximation* (LQA) bezeichnet. Ersetzt man in Gleichung (4.63) die Größen $\tilde{\Delta}^{\text{LQA}}$ und $\tilde{\Sigma}^{\text{LQA}}$ durch $\tilde{\Delta}^{\text{HQA}}$ und $\tilde{\Sigma}^{\text{HQA}}$, welche

$$\tilde{\Delta}_{\mathbf{k}}^{\text{HQA}}(\tilde{E}) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}}}{\tilde{E} - (J_0 - J_{\mathbf{k}''}) - \frac{1-c}{c} \tilde{\Delta}_{\mathbf{k}''}^{\text{HQA}}(\tilde{E})} \quad (4.69)$$

$$\tilde{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{HQA}}(\tilde{E}) = -\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}''} \frac{(J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}})(J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}''} - J_{\mathbf{k}})}{\tilde{E} - (J_0 - J_{\mathbf{k}''}) - \frac{1-c}{c} \tilde{\Sigma}_{\mathbf{k}''}^{\text{HQA}}(\tilde{E})} \quad (4.70)$$

erfüllen, so entspricht dies einer Näherung, die eine größere Anzahl solcher quadratischer Terme berücksichtigt. Diese Näherung wird deshalb als *High Quadratic Approximation* (HQA) bezeichnet [47]. Laut Dvey-Aharon und Fibich [47] liefert die LQA für die Berechnung der Magnetisierung, der Curie-Temperatur, der kritischen Konzentration und anderer statischer Eigenschaften bereits eine gute Übereinstimmung mit experimentellen und numerisch exakten Ergebnissen, während für viele dynamische Eigenschaften, zum Beispiel für die Response-Funktion $S_{\mathbf{k}}(E)$ für größere \mathbf{k} , nur die HQA vernünftige Ergebnisse liefert.

Im Folgenden soll die LQA verwendet werden, um die Spinwellensteifigkeit D abzuschätzen, welche im konzentrierten Spinsystem durch die dort im Falle von $B = 0$ zu findende Dispersionsrelation

$$E_{\mathbf{k}} \approx D\mathbf{k}^2 \quad (4.71)$$

für kleine Wellenvektoren \mathbf{k} definiert ist. Da für kleine Energien die LQA-Selbstenergie auch für $c < 1$ nur einen kleinen Imaginärteil hat, ist die Spektraldichte $S_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E)$ in diesem Energiebereich näherungsweise eine Delta-Funktion, die für kleine \mathbf{k} -Werte bei kleinen Energien ihr Maximum hat. Damit sind die niedrig-energetischen Anregungen näherungsweise Spinwellen mit kleinen Wellenvektoren, für die man auch eine quadratische Dispersionsrelation erwarteten sollte.

Um die Position des Maximums von $S_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(E)$ abzuschätzen, müssen die Nullstellen des Nenners der Green-Funktion (4.63) bestimmt werden. Das bedeutet:

$$0 = \tilde{E}_{\mathbf{k}} - (J_0 - J_{\mathbf{k}}) - \frac{1-c}{c} \tilde{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\tilde{E}). \quad (4.72)$$

Für kleine \mathbf{k} gilt aber für Modelle mit begrenzter Reichweite der Austauschwechselwirkung

$$J_0 - J_{\mathbf{k}} \approx J^{(2)} \mathbf{k}^2, \quad (4.73)$$

$$\tilde{\Sigma}_{\mathbf{k}}^{\text{LQA}}(\tilde{E}) \approx \tilde{\Sigma}^{\text{LQA}(2)} \mathbf{k}^2, \quad (4.74)$$

wobei die $J^{(2)}$ und $\tilde{\Sigma}^{\text{LQA}(2)}$ von \mathbf{J} abhängige Konstanten sind [47]. Damit findet man für die Spinwellen mit kleinen Wellenvektoren näherungsweise eine quadratische Energiedispersion

$$E_{\mathbf{k}} = c2\hbar \langle S^z \rangle \left(J^{(2)} + \frac{1-c}{c} \tilde{\Sigma}^{\text{LQA}(2)} \right) \mathbf{k}^2. \quad (4.75)$$

Daraus liest man

$$D = c2\hbar \langle S^z \rangle \left(J^{(2)} + \frac{1-c}{c} \tilde{\Sigma}^{\text{LQA}(2)} \right) \quad (4.76)$$

für die Spinwellensteifigkeit ab.

4.4 Die Näherung von Montgomery, Krugler und Stubbs

Das in diesem Abschnitt diskutierte Modell, welches zuerst von Montgomery, Krugler und Stubbs (MKS) in ihrer Arbeit [60] vorgestellt wurde, beschreibt nicht direkt den Fall eines verdünnten Heisenberg-Ferromagneten. Vielmehr ist ein konzentriertes Spinsystem Ausgangspunkt der Betrachtung, bei dem die Austauschwechselwirkung J_{ij} statistischen Schwankungen unterworfen ist. Die Verteilung der Wechselwirkungsstärke ist dabei charakterisiert durch einen translationsinvarianten Mittelwert und eine mittlere quadratische Abweichung.

Wegen fehlender Translationsinvarianz von J_{ij} kann die für die Green-Funktion (2.4) nach der Tyablikov-Entkopplung unter der Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung resultierende Bewegungsgleichung (2.9) nicht mehr durch Fourier-Transformation nach G aufgelöst werden. Hier kommt wieder die Mittelung über Konfigurationsunordnung ins Spiel.

Für eine Konfiguration $\mathcal{K}^{\xi} \in \mathcal{E}$ sei der Hamilton-Operator

$$H^{\xi} = - \sum_{i,j} J_{ij}^{\xi} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z, \quad (4.77)$$

wobei sich die Austauschparameter

$$J_{ij}^{\xi} = J_{ij}^0 + j_{ij}^{\xi} \quad (4.78)$$

in einen translationsinvarianten Mittelwert

$$J_{ij}^0 = \langle J_{ij}^{\xi} \rangle_{\xi} = J^0 (\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) \quad (4.79)$$

und eine Abweichung j_{ij}^{ξ} mit

$$\langle j_{ij}^{\xi} j_{mn}^{\xi} \rangle_{\xi} = \sigma_{ij}^2 (\delta_{im} \delta_{jn} + \delta_{in} \delta_{jm}) \quad (4.80)$$

und translationsinvarianter mittlerer quadratischer Abweichung

$$\sigma_{ij}^2 = \langle (j_{ij}^{\xi})^2 \rangle_{\xi} \quad (4.81)$$

aufteilen lassen. Für die Green-Funktion $G_{ij}^{\xi}(E) = \langle\langle S_i^+; S_j^- \rangle\rangle_E^{ret}$ erhält man dann nach Tyablikov-Entkopplung unter der Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle_{\xi} \approx \langle S^z \rangle$ die Bewegungsgleichung

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n J_{in}^{\xi} \right) \delta_{im} + J_{im}^{\xi} \right) G_{mj} = \delta_{ij}. \quad (4.82)$$

Diese lässt sich wieder zu einer Dyson-Gleichung

$$\mathbf{G}^{\xi} = \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \mathbf{V}^{\xi} \mathbf{G}^{\xi} \quad (4.83)$$

umformen, wobei das Störpotential

$$V_{ij}^{\xi} = \sum_n j_{in}^{\xi} \delta_{ij} - j_{ij}^{\xi} \quad (4.84)$$

die aus der Abweichung j_{ij}^{ξ} resultierenden Terme enthält und die geordnete Green-Funktion \mathbf{G}^0 im Wellenzahlraum gegeben ist durch

$$G_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^0(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle (J_{\mathbf{0}}^0 - J_{\mathbf{k}}^0)} \delta_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}. \quad (4.85)$$

Die geordnete Green-Funktion \mathbf{G}^0 entspricht dem VCA-Resultat, denn wegen der Aufteilung (4.78) und der Voraussetzung (4.79) ist

$$\Sigma^{\text{VCA}} = \langle \mathbf{V}^{\xi} \rangle_{\xi} = 0. \quad (4.86)$$

Nimmt man nun an, dass die Verteilung von j_{ij}^ξ symmetrisch ist und die Eigenschaft (3.39) hat und nähert in der Dyson-Gleichung

$$\mathbf{G} = \langle \mathbf{G}^\xi \rangle_\xi = \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \langle \mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^\xi \rangle_\xi = \mathbf{G}^0 + \frac{1}{\hbar} \mathbf{G}^0 \boldsymbol{\Sigma} \mathbf{G} \quad (4.87)$$

für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion \mathbf{G} die Selbstenergie $\boldsymbol{\Sigma}$ gemäß Vorschrift (3.43), so ergibt sich für die Selbstenergie in der MKS-Näherung:

$$\begin{aligned} \Sigma_{ij}^{\text{MKS}}(E) &= \frac{1}{\hbar} \left\langle \left(\mathbf{V}^\xi \mathbf{G}^0(E) \mathbf{V}^\xi \right)_{ij} \right\rangle_\xi \\ &= \frac{1}{\hbar} \left\langle \sum_{kl} \left(\sum_n j_{in}^\xi \delta_{ik} - j_{ik}^\xi \right) G_{kl}^0(E) \left(\sum_m j_{im}^\xi \delta_{lj} - j_{lj}^\xi \right) \right\rangle_\xi \\ &= \frac{1}{\hbar} \sum_{kl} \left\langle j_{ik}^\xi \left(G_{kl}^0 - G_{il}^0 - G_{kj}^0 + G_{ij}^0 \right) j_{lj}^\xi \right\rangle_\xi \\ &= \frac{1}{\hbar} \sum_{kl} \left(G_{kl}^0 - G_{il}^0 - G_{kj}^0 + G_{ij}^0 \right) \sigma_{ij}^2 (\delta_{il} \delta_{kj} + \delta_{ij} \delta_{kl}) \\ &= \frac{1}{\hbar} \sum_n 2 (G_{ii}^0 - G_{in}^0) \sigma_{in}^2 \delta_{ij} - 2 (G_{ii}^0 - G_{ij}^0) \sigma_{ij}^2 . \end{aligned} \quad (4.88)$$

Diese Selbstenergie ist energieabhängig und komplexwertig aufgrund der enthaltenen geordneten Green-Funktion $\mathbf{G}^0(E)$. Ferner ist sie quadratisch im die Unordnung enthaltenden Störpotential \mathbf{V}^ξ .

Mit $\boldsymbol{\Sigma}^{\text{MKS}}$ ergibt sich als Näherung für die konfigurationsgemittelte Green-Funktion:

$$\mathbf{G}^{\text{MKS}}(E) = \hbar \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - J_0^0 \mathbf{1} + \mathbf{J}^0 - \boldsymbol{\Sigma}^{\text{MKS}}(E) \right)^{-1}, \quad (4.89)$$

wobei

$$J_0^0 = \sum_n J_{in}^0 . \quad (4.90)$$

Da alle Terme in Gleichung (4.89) translationsinvariant sind, lässt sich $G_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}$ mittels Fourier-Transformation bestimmen.

Als Beispiel wird im folgenden wieder der Fall eines einfach-kubischen Gitters mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung diskutiert. Der Mittelwert der Nächster-Nachbar-Wechselwirkung sei J^0 , während deren mittlere quadratische Abweichung σ^2 betrage. Die Gitterkonstante sei a . Für die geordnete Green-Funktion ergibt sich:

$$G_{\mathbf{k}}^0(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon_{\mathbf{k}}} \quad (4.91)$$

mit der Abkürzung

$$\epsilon_{\mathbf{k}} = 6 - 2 \cos(ak_x) - 2 \cos(ak_y) - 2 \cos(ak_z). \quad (4.92)$$

Für die Selbstenergie Σ^{MKS} ergibt sich zunächst:

$$\Sigma_{ij}^{\text{MKS}} = \frac{2}{\hbar} \left(G_{ii}^0 - G_{i\text{NN}(i)}^0 \right) \sigma^2 (6\delta_{ij} - \delta_{\text{NN}(i)j}). \quad (4.93)$$

Dabei bezeichnet $\text{NN}(i)$ einen der sechs äquivalenten nächsten Nachbarn des Gitterplatzes i . Mit Hilfe der Zustandsdichte $\rho^{\text{sc}}(\epsilon)$, welche in Gleichung (2.36) definiert ist und für die sehr gute und einfach zu berechnende Näherungsformeln in der Literatur [33] zu finden sind, kann die lokale geordnete Green-Funktion $G_{ii}^0(E)$ mittels

$$G_{ii}^0(E) = \int_{-\infty}^{\infty} \rho^{\text{sc}}(\epsilon) \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \epsilon} d\epsilon \quad (4.94)$$

bestimmt werden, was in der numerischen Auswertung aufwendige \mathbf{k} -Summen vermeiden hilft. Die geordnete Green-Funktion $G_{i\text{NN}(i)}^0$ lässt sich nicht so einfach über eine Energieintegration berechnen. Jedoch kann die Bewegungsgleichung für \mathbf{G}^0 verwendet werden, um $G_{i\text{NN}(i)}^0$ aus der Gleichung für die Selbstenergie Σ^{MKS} zu eliminieren:

$$\begin{aligned} (E - g_J \mu_B B) G_{ii}^0 &= 2\hbar^2 \langle S^z \rangle + 2\hbar \langle S^z \rangle \left(\sum_n J_{in}^0 G_{ii}^0 - \sum_m J_{im}^0 G_{mj}^0 \right) \\ &= 2\hbar^2 \langle S^z \rangle + 12\hbar \langle S^z \rangle J^0 \left(G_{ii}^0 - G_{i\text{NN}(i)}^0 \right). \end{aligned} \quad (4.95)$$

Daraus folgt:

$$G_{ii}^0 - G_{i\text{NN}(i)}^0 = \frac{\hbar}{6J^0} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} G_{ii}^0 - 1 \right), \quad (4.96)$$

und damit ist die Selbstenergie

$$\Sigma_{ij}^{\text{MKS}} = \frac{\sigma^2}{3J^0} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} G_{ii}^0 - 1 \right) (6\delta_{ij} - \delta_{\text{NN}(i)j}) \quad (4.97)$$

beziehungsweise

$$\begin{aligned} \Sigma_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E) &= \frac{\sigma^2}{3J^0} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} G_{ii}^0(E) - 1 \right) \epsilon_{\mathbf{k}} \\ &= \frac{\sigma^2}{3J^0} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}'} G_{\mathbf{k}'}^0(E) - 1 \right) \epsilon_{\mathbf{k}}. \end{aligned} \quad (4.98)$$

Damit ist die Green-Funktion

$$G_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - g_J \mu_B B - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 \left(1 + \frac{\sigma^2}{3(J^0)^2} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} G_{ii}^0(E) - 1 \right) \right)} \epsilon_{\mathbf{k}}. \quad (4.99)$$

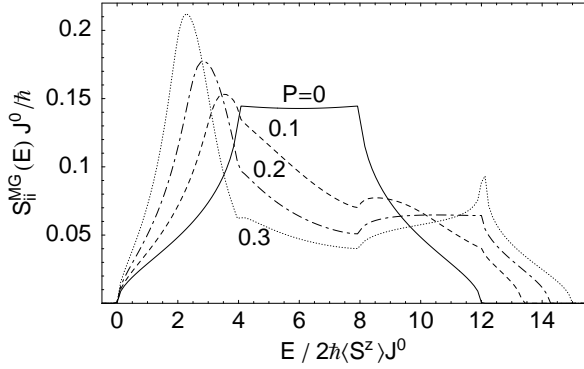


Abbildung 4.5: Die lokale Spektraldichte $S_{ii}^{\text{MKS}}(E)$ für verschiedene Werte des Unordnungsparameters P .

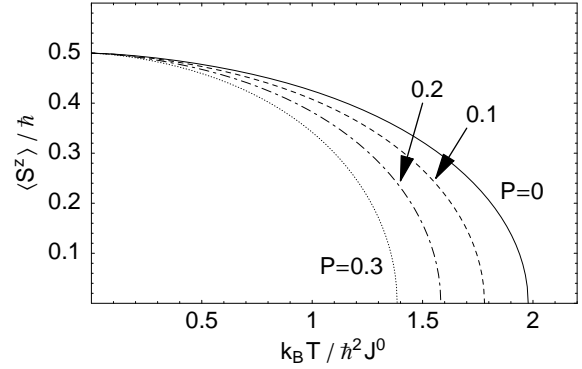


Abbildung 4.6: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur für verschiedene Werte des Unordnungsparameters P .

Die Spektraldichte

$$S_{ii}^{\text{MKS}}(E) = \frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} S_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E) = -\frac{1}{N\pi} \sum_{\mathbf{k}} \text{Im}(G_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E)) = \quad (4.100)$$

$$= -\frac{\hbar}{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \text{Im} \frac{\rho^{\text{sc}}(\epsilon)}{\bar{E} - J^0 \left(1 + P \left(\bar{E} \frac{1}{\hbar} G_{ii}^0(E) - 1 \right) \right) \epsilon} d\epsilon \quad (4.101)$$

mit der reduzierten Energie

$$\bar{E} = \frac{E - gJ\mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \quad (4.102)$$

und dem Unordnungsparameter

$$P = \frac{\sigma^2}{3J^0} \quad (4.103)$$

ist in Abbildung 4.5 für $S = 1/2$ und $T = 0$ für verschiedene Werte von P dargestellt. Der Unordnungsparameter P stellt ein relatives Maß für die Breite der Verteilung von $J_{i\mathbb{N}\mathbb{N}(i)}^{\xi}$ dar. Er bestimmt neben J^0 die Curie-Temperatur:

$$T_C^{\text{MKS}} = T_C^0 (1 - P) , \quad (4.104)$$

wobei

$$T_C^0 = \frac{\hbar^2}{2k_B} \left(\frac{1}{N} \sum_{\mathbf{k}} \frac{1}{(J^0 - J_{\mathbf{k}}^0)} \right)^{-1} . \quad (4.105)$$

Damit existiert für $P \geq 1$ keine ferromagnetische Phase mehr. Dies wird auch deutlich, wenn man das Verhalten der Spektraldichte $S_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E)$ für kleine Energien E und kleine Wellenvektoren \mathbf{k} , d.h. $|E| \ll J^0$ und $|\mathbf{k}| \ll 2\pi/a$, untersucht. Für kleine Energien ist

$$G_{ii}^0(E) \approx G_{ii}^0(0) = -\pi \frac{\hbar}{12J^0} . \quad (4.106)$$

Somit ist die Green-Funktion

$$G_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E) \approx \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{(E - g_J \mu_B B) \left(1 + \frac{\pi}{12} P \epsilon_{\mathbf{k}}\right) - 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 (1 - P) \epsilon_{\mathbf{k}}} . \quad (4.107)$$

Die Spektraldichte $S_{\mathbf{k}}^{\text{MF}}(E)$ ist also für kleine Energien näherungsweise eine Delta-Funktion:

$$S_{\mathbf{k}}^{\text{MKS}}(E) \approx 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_{\mathbf{k}}) \quad (4.108)$$

mit Anregungsenergien

$$E_{\mathbf{k}} \approx 2\hbar \langle S^z \rangle J^0 (1 - P) a^2 \mathbf{k}^2 . \quad (4.109)$$

Damit sind die nieder-energetischen Anregungen näherungsweise Spinwellen mit kleinem Wellenvektor und quadratischer Dispersion. Übersteigt die Unordnung aber ein gewisses Maß gekennzeichnet durch $P \geq 1$, so werden die Anregungsenergien negativ und damit das System instabil gegenüber Ausbildung langwelliger Spinwellen, was den Zusammenbruch des ferromagnetische Zustands bewirkt.

Eine Möglichkeit, die hier vorgestellte Näherung auf verdünnte Spinsysteme anzuwenden, besteht darin, wie in Abschnitt 2.2 eine Beschreibung zu wählen, in der nur besetzte Gitterplätze auftauchen. Eine Schwierigkeit dürfte dabei allerdings darin bestehen, den auf dem ursprünglichen Gitter verbliebenen Spins ein neues Gitter zuzuordnen. Als grobe Näherung könnte hier zum Beispiel eine einfach-kubische Gitterstruktur gewählt werden, auf der man sich die verbliebenen Spins regelmäßig angeordnet vorstellt, nun aber mit variierenden Austauschparametern. Die Größen J_{ij}^0 und σ_{ij}^2 könnten dann aus kombinatorischen Überlegungen gewonnen werden. Eine weitere Möglichkeit, die MKS-Näherung auf verdünnte Spinsysteme anzuwenden, besteht darin, wie im ersten Teil des Abschnitts 2.4 eine auf dem Modell einer binären Legierung basierenden Beschreibung zu wählen. Nimmt man eine binäre Legierung an mit einer Atomsorte A der Konzentration c , die mit J_{ij} untereinander koppelt, und einer Atomsorte B der Konzentration $1 - c$, die nicht koppelt, so ergibt sich:

$$J_{ij}^0 = c^2 J_{ij} \quad (4.110)$$

$$\text{und } \sigma_{ij}^2 = (c^2 - c^4) J_{ij}^2 . \quad (4.111)$$

Unberücksichtigt bleibt in diesem Fall, dass die nichtkoppelnden Gitterplätze in der Bewegungsgleichung für die Green-Funktion auf der rechten Seite als Inhomogenität eine Null statt $2\hbar^2 \langle S^z \rangle$ ergeben. Dies müsste man auch in Kauf nehmen, wollte man das Modell der Besetzungsindikatoren direkt mit der hier vorgestellten Methode verbinden. Die bereits in Abschnitt 4.3 vorgestellte Methode berücksichtigt dies hingegen und ist deshalb vorzuziehen.

4.5 Die Mean-Field-Näherung

Eine der einfachsten Näherungen zum Heisenberg-Modell stellt die Mean-Field-Näherung dar. Diese wird direkt am Hamilton-Operator des Heisenberg-Modells vorgenommen. Zwar liefert diese Näherung bereits bei einem voll besetzten Gitter schwache Ergebnisse, aber im Gegensatz zur Tyablikov-Näherung entfällt das Problem der Diagonalisierung der Bewegungsgleichung der Green-Funktion für teilweise besetzte Gitter.

Hier bietet es sich an, vom Hamilton-Operator (2.41) auszugehen, bei dem die unbesetzten Gitterplätze in der Beschreibung nicht auftauchen. Eine Mean-Field-Entkopplung

$$\mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j \longrightarrow \langle \mathbf{S}_i \rangle \cdot \mathbf{S}_j + \mathbf{S}_i \cdot \langle \mathbf{S}_j \rangle - \langle \mathbf{S}_i \rangle \cdot \langle \mathbf{S}_j \rangle \quad (4.112)$$

in (2.41) liefert folgenden Mean-Field-Hamilton-Operator:

$$H^\xi = -2 \sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \langle \mathbf{S}_j \rangle - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z + \sum_{i,j} J_{ij} \langle \mathbf{S}_i \rangle \cdot \langle \mathbf{S}_j \rangle . \quad (4.113)$$

Die Summen erstrecken sich nur über die besetzten Gitterplätze. Nimmt man ferner eine gitterplatzunabhängige Magnetisierung

$$\langle \mathbf{S}_i \rangle \equiv (0, 0, \langle S^z \rangle) \quad (4.114)$$

an und lässt die Konstante in (4.113) weg, da sie in keiner Bewegungsgleichung auftaucht, erhält man den Mean-Field-Hamilton-Operator

$$H^\xi = - \sum_i \left(2 \langle S^z \rangle \sum_n J_{in} + \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \right) S_i^z . \quad (4.115)$$

Für die Green-Funktion

$$G_{ij}^\xi(E) = \left\langle \left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret} \quad (4.116)$$

lautet damit die Bewegungsgleichung:

$$\frac{1}{\hbar} \sum_m \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} - \sum_n J_{in} \right) \delta_{im} G_{mj}^\xi = \delta_{ij} . \quad (4.117)$$

Diese Gleichung ist bereits im Ortsraum diagonal. Die elementaren Spinanregungen sind also lokalisiert. Damit ist die Green-Funktion \mathbf{G}^ξ auch diagonal im Ortsraum:

$$G_{ij}^\xi(E) = G_i(E)^\xi \delta_{ij} \quad (4.118)$$

mit

$$G_i^\xi(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - E_i^\xi + i0^+} \quad (4.119)$$

und den Anregungsenergien

$$E_i^\xi = g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \sum_n J_{in} . \quad (4.120)$$

Letztere können sich von Gitterplatz zu Gitterplatz unterscheiden, da sich die Summe nur über besetzte Gitterplätze erstreckt. Über das Spektraltheorem [21] lässt sich damit die Magnetisierung am i -ten Gitterplatz berechnen. Diese erweist sich natürlich als gitterplatzabhängig – im Gegensatz zur Annahme in der Ableitung.

Will man die Vereinfachung einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung nicht aufgeben, so bietet es sich wieder an, eine mittlere Magnetisierung aus einer gemittelten Spektraldichte zu berechnen. Benutzt man bei der Konfigurationsmittelung die Virtual-Crystal-Näherung, so erhält man Resultate, die abgesehen von einer wesentlich höheren Curie-Temperatur denen aus Abschnitt 4.2 gleichen. Da die Green-Funktion diagonal im Ortsraum ist, kann die Konfigurationsmittelung aber auch exakt vorgenommen werden. Dazu wird die Green-Funktion $G_i^\xi(E)$ eines besetzten Gitterplatzes über alle möglichen lokalen Konfigurationen α , das heißt über alle Anordnungen besetzter und unbesetzter Gitterplätze um diesen Gitterplatz, gemittelt:

$$G_i(E) = \left\langle G_i^\xi(E) \right\rangle_\xi = \sum_\alpha p^\alpha G^\alpha(E) . \quad (4.121)$$

Die Green-Funktion

$$G^\alpha(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - E^\alpha + i0^+} \quad (4.122)$$

enthält die der Konfiguration α entsprechende Anregungsenergie

$$E^\alpha = g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle J^\alpha \quad (4.123)$$

mit der über die besetzten Gitterplätze der lokalen Konfiguration gebildeten Summe

$$J^\alpha = \sum_{n^\alpha} J_{in} . \quad (4.124)$$

In Abwesenheit von chemischer Nahordnung ergeben sich die statistischen Gewichte p^α mittels kombinatorischen Überlegungen aus der Konzentration der besetzten Gitterplätze und der Zahl der besetzten und unbesetzten Gitterplätze der Konfiguration α innerhalb der Reichweite von J_{ij} .

Da für Konzentrationen $c < 1$ bei einer endlichen Reichweite der Austauschwechselwirkung die Konfiguration eines isolierten Spins mit verschwindender Anregungsenergie ein endliches Gewicht hat, erhält man aus der gemittelten Green-Funktion (4.121) keine spontane Magnetisierung. Eine Ursache dieses Problems liegt in der Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung. Während isolierte Spins keine spontane Magnetisierung zeigen, sorgt die Mean-Field-Näherung dafür, dass bereits Zwei-Spin-Cluster eine spontane Magnetisierung aufweisen können. Deshalb soll im folgenden die Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung schrittweise aufgegeben werden.

Mittelt man die Green-Funktion $G_i(E)$ zunächst über alle lokalen Konfigurationen außer der eines isolierten Spins, so berechnet sich die Magnetisierung $\langle S^z \rangle^{\text{Cluster}}$ für die Spins in größeren Clustern gemäß

$$\Phi^{\text{Cluster}} = \sum_{\alpha \neq 0} \frac{p^\alpha}{1 - p^0} \frac{1}{e^{\beta E^\alpha} - 1} \quad (4.125)$$

und Gleichung (2.29). Hierbei bezeichnet $\alpha = 0$ die Konfiguration eines isolierten Spins. Berücksichtigt man, dass die isolierten Spins, welche den Bruchteil p^0 aller Spins ausmachen, eine verschwindende Magnetisierung hat, so muss die aus Gleichung (4.125) und (2.29) resultierende Magnetisierung für die Spins in den größeren Clustern mit deren Gesamtgewicht $\sum_{\alpha \neq 0} p^\alpha = 1 - p^0$ multipliziert werden, um die über alle Spins gemittelte Magnetisierung zu erhalten:

$$\langle S^z \rangle = (1 - p^0) \langle S^z \rangle^{\text{Cluster}} . \quad (4.126)$$

Die Curie-Temperatur ergibt sich dann aus:

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\sum_{\alpha \neq 0} \frac{p^\alpha}{1 - p^0} \frac{1}{E^\alpha} \right)^{-1} . \quad (4.127)$$

Diese Näherung soll zunächst am Modell eines einfach-kubischen Gitters mit Spins der Größe $S = 1/2$ und Nächster-Nachbar-Wechselwirkung der Stärke J diskutiert werden. Für diesen Fall ergeben sich sieben inäquivalente lokale Konfigurationen, die in Tabelle 4.1 aufgelistet sind. Im Abbildung 4.7 ist die Magnetisierung der Spins für verschiedene Konzentrationen dargestellt. Die Magnetisierung geht für alle Temperaturen mit verschwindender Konzentration gegen Null, da die Spins zunehmend isoliert sind. Die in Abbildung 4.8 dargestellte Curie-Temperatur ist aber nicht nur für Konzentrationen unterhalb der Perkolkationskonzentration $c_p = 0.3$ endlich, sondern bleibt dies sogar für verschwindende Konzentration, wo sie gegen den Wert $\hbar^2 J / 2k_B$ strebt.

Möchte man auf eine Konfigurationsmittelung in einem Zwischenschritt bei der Berechnung der Magnetisierung verzichten, so liefert zunächst die Berücksichtigung der Gitterplatzabhängigkeit

Konfiguration α	Zahl besetzter Nachbarplätze	stat. Gewicht p^α	J^α	Anregungsenergie E^α
0	0	$(1 - c)^6$	0	$g_J \mu_B B$
1	1	$6c(1 - c)^5$	J	$g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle J$
2	2	$\binom{6}{2} c^2(1 - c)^4$	$2J$	$g_J \mu_B B + 4\hbar \langle S^z \rangle J$
3	3	$\binom{6}{3} c^3(1 - c)^3$	$3J$	$g_J \mu_B B + 6\hbar \langle S^z \rangle J$
4	4	$\binom{6}{4} c^4(1 - c)^2$	$4J$	$g_J \mu_B B + 8\hbar \langle S^z \rangle J$
5	5	$6c^5(1 - c)^1$	$5J$	$g_J \mu_B B + 10\hbar \langle S^z \rangle J$
6	6	c^6	$6J$	$g_J \mu_B B + 12\hbar \langle S^z \rangle J$

Tabelle 4.1: Die verschiedenen lokalen Konfigurationen für das einfach-kubische Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung.

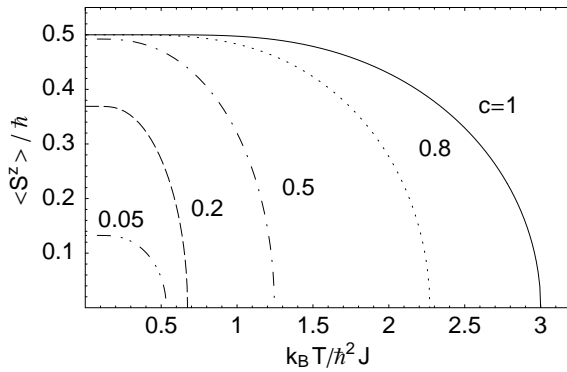


Abbildung 4.7: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ als Funktion der Temperatur für verschiedene Konzentrationen c .

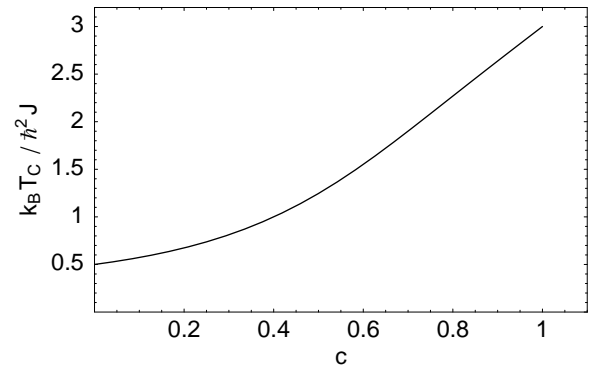


Abbildung 4.8: Die Curie-Temperatur T_C als Funktion der Konzentration c .

der Magnetisierung unter Beibehaltung der Annahme, dass die Magnetisierung ausschließlich in z -Richtung orientiert ist, für die Green-Funktion folgende Form:

$$G_i(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S_i^z \rangle}{E - E_i + i0^+}, \quad (4.128)$$

wobei die Anregungsenergien durch

$$E_i = g_J \mu_B B + 2\hbar \sum_n J_{in} \langle S_n^z \rangle \quad (4.129)$$

gegeben sind. Mit der gitterplatzabhängigen Besetzungszahl

$$\Phi_i = \frac{1}{e^{\beta E_i} - 1}, \quad (4.130)$$

kann dann die Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$ des Gitterplatzes i berechnet werden, indem man in Gleichung (2.29) die Größen $\langle S^z \rangle$ und Φ durch die gitterplatzabhängigen Größen $\langle S_i^z \rangle$ und Φ_i ersetzt. Allerdings erschwert die Kopplung der Gitterplätze untereinander über die $\langle S_n^z \rangle$ in den Anregungsenergien E_i eine iterative Lösung des resultierenden Gleichungssystems erheblich. Lässt man ferner zu, dass die Erwartungswerte der Spinoperatoren aller Gitterplätze nicht notwendig parallel zueinander sind, ergeben sich weitere Komplikationen, da zusätzliche Green-Funktionen für $\langle S_i^x \rangle$ und $\langle S_i^y \rangle$ bestimmt werden müssen.

In der Literatur finden sich Kaneyoshi [41] und Zhao und Huber [70] als Beispiele für die Behandlung verdünnter Spinsysteme in MFA mit gitterplatzabhängiger Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle$. Mit dem Verfahren können allerdings nur vorher festgelegte Konfigurationen endlich vieler Spins berechnet werden. Damit fällt diese Stufe der Näherung aber in den Bereich der numerischen Methoden. Im folgenden Kapitel wird jedoch eine auf der Tyablikov-Näherung basierende numerische Methode vorgestellt, welche den Modellrechnungen auf Grundlage der Gleichungen (4.129) und (4.130) überlegen sein sollte.

4.6 Weitere Ansätze

In der Literatur findet man weitere Ansätze zur Beschreibung verdünnter Spinsysteme, welche die Methoden der Konfigurationsmittelung benutzen. Davon sollen hier einige kurz vorgestellt werden, ohne Anspruch auf Vollständigkeit zu erheben.

Tahir-Kheli benutzt in den Arbeiten [34, 35] die Näherung freier Spinwellen statt der Tyablikov-Näherung als Ausgangspunkt. Die Verdünnung bringt er darüber ins Spiel, dass statt Spins aus dem Gitter zu entfernen, nur zufällig ausgewählte Verbindungen der Spins durch die Austauschparameter entfernt werden. Auf dieses *Bindungsproblem* wendet Tahir-Kheli dann eine CPA-ähnliche Methode des Effektiven Mediums an. Die Resultate der Näherung sind aber wenig zufriedenstellend [55].

Daher wird von Elliott und Pepper in Referenz [55] vorgeschlagen, die Beschreibung verdünnter Spinsysteme mittels Bindungsdefekten in der Arbeit [34] durch eine Beschreibung mittels Platzdefekten zu ersetzen. Ferner benutzen sie in ihrer Arbeit statt der Näherung freier Spinwellen, die Tyablikov-Näherung. Um die in ihrem Modell vorhandenen unphysikalischen Anregungen der unbesetzten Gitterplätze zu beseitigen, schlagen sie außerdem die Einführung eines lokalen Potentials an den unbesetzten Plätzen vor. Dieses sollte die unphysikalischen Anregungen zu sehr hohen Energien verschieben. Die daraus resultierende Näherung ist von Harris et al. in Referenz [39] ausführlich diskutiert. Dabei zeigt sich, dass das lokale Potential seinen Zweck nur unzureichend

erfüllt. Dies macht deutlich, wie wichtig eine korrekte Beschreibung der unbesetzten Gitterplätze in der Bewegungsgleichung ist.

Um sowohl qualitativ als auch quantitativ zu zufriedenstellenden Resultaten zu gelangen, sollte als Ausgangspunkt für Konfigurationsmittelung die Tyablikov-Näherung und eine korrekte Beschreibung der unbesetzten Gitterplätze, beispielsweise mittels Besetzungsindikatoren, verwendet werden. Die besten Ergebnisse bezüglich der Konfigurationsmittelung sind dann von der auf den Arbeiten von Yonezawa, Matsubara und Leath basierenden Kumulantenentwicklung [44, 54, 64–67] zu erwarten. Allerdings sind sowohl die analytischen als auch die numerischen Rechnungen bei dieser Methode recht aufwendig, insbesondere für langreichweitige Austauschwechselwirkung.

Kapitel 5

Numerische Modellrechnungen

In diesem Kapitel werden verdünnte Spinsysteme endlicher Ausdehnung mit Hilfe numerischer Methoden untersucht. Da der Rechenaufwand dieser Methoden recht groß ist, hängt ihre Anwendbarkeit stark von der Leistungsfähigkeit der zur Verfügung stehenden Computer ab. Wegen des geringeren Rechenaufwands im Vergleich zu dreidimensionalen Systemen beschränkten sich deshalb die ersten numerischen Untersuchungen zu verdünnten Spinsystemen in den Siebziger Jahren auf ein- und zweidimensionale Systeme (siehe beispielsweise Huber [76]). Mit Hilfe ausgefeilter numerischer Verfahren gelangen aber schon zu dieser Zeit Spindynamiksimulationen von Systemen mit bis zu 10 000 Spins [52].¹ Bereits Ende der Siebziger Jahre erlaubten Monte-Carlo-Methoden die Untersuchungen von Systemen mit 27 000 klassischen Spins auf einem einfach-kubischen Gitter mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung [77, 78]. Dabei zeigte die Curie-Temperatur als Funktion der Konzentration c oberhalb der kritischen Perkolkationskonzentration $c_p \approx 0.3$ näherungsweise eine lineare Abhängigkeit, während unterhalb c_p keine spontane Magnetisierung auftrat. In den Achtziger Jahren konzentrierten sich die meisten der numerischen Untersuchungen nicht auf ferromagnetische Spinsysteme, sondern auf Spingläser. Anfang der Neunziger Jahre erschienen Arbeiten [79, 80], in denen ausgehend von einer der Tyablikov-Näherung ähnlichen Methode die Magnetisierung von Spin-Clustern mit 9 bis 749 Spins berechnet wurden.²

¹Die Ergebnisse der Spindynamiksimulationen wurden in [52] allerdings nicht zur Berechnung von Magnetisierung und Curie-Temperatur verwendet.

²Die Untersuchungen in [80] ergaben ein ungewöhnliches Verhalten der Magnetisierung als Funktion der Clustergröße, was allerdings nach Ansicht des Autors der vorliegenden Arbeit auf Unzulänglichkeiten des verwendeten Modells zurückzuführen ist. Die in [79, 80] als Ausgangspunkt verwendete Theorie liefert für die untersuchten Spin-Cluster stets eine elementare Anregung, welche einer uniformen Rotation der Spins entspricht und eine Anregungsenergie $E = 0$ besitzt. Diese Anregung wurde aber in [79, 80] bei der Berechnung der Magnetisierung der

Neuere Arbeiten um die Jahrtausendwende benutzten neben analytischen Methoden in erster Linie Monte-Carlo-Simulationen mit klassischen Spins, um stark verdünnte Spinsysteme mit langreichweitiger magnetisierungs- und temperaturabhängiger Austauschwechselwirkung zu untersuchen [72, 81–85]. Die Arbeiten [81–84] bezogen eine selbstkonsistente Bestimmung der Austauschparameter direkt in die Monte-Carlo-Simulation ein, was allerdings die Größe der untersuchten Systeme wegen des hohen numerischen Aufwands auf maximal 600 Spins einschränkte. Dabei ergaben sich je nach dem zu Grunde liegenden Modell bei niedrigen Spinkonzentrationen eine lineare Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Konzentration [83] oder aber ein stark nichtlineares Verhalten mit einem Maximum der Curie-Temperatur bei sehr kleinen Konzentrationen [84]. Ferner konnte in der Arbeit [81] ein recht ungewöhnlicher Verlauf der Magnetisierung als Funktion der Temperatur beobachtet werden.

In der vorliegenden Arbeit wird als Ausgangspunkt für die numerischen Modellrechnungen die Tyablikov-Näherung verwendet. Der Vorteil der in diesem Kapitel vorgestellten numerischen Methode gegenüber den im letzten Kapitel vorgestellten analytischen Methoden zur Konfigurationsmittelung besteht darin, dass bezüglich der aus der Verdünnung resultierenden Unordnung keine Näherungen erforderlich sind, um die Magnon-Green-Funktion und die Magnon-Spektraldichte zu berechnen. Gegenüber herkömmlichen Monte-Carlo-Methoden hat die nachfolgend verwendete Methode den Vorteil, dass man nicht auf die Näherung klassischer Spins angewiesen ist. Eine Einschränkung bildet die Notwendigkeit einer endlichen Größe der untersuchten Systeme.

Der weitere Teil des Kapitels ist folgendermaßen gegliedert: Im ersten Abschnitt werden die Gleichungen zur Berechnung der magnetischen Eigenschaften verdünnter Spinsysteme auf eine für die numerischen Rechnungen passende Form gebracht. Im zweiten Abschnitt wird die Vorgehensweise bei den Modellrechnungen skizziert. Es folgen etwas ausführlichere Erläuterungen zu einzelnen Schritten der Rechnungen. Als erstes Modell wird mit den numerischen Methoden das Heisenberg-Modell mit Nächster-Nachbar-Wechselwirkung auf einem einfach-kubischen Gitter untersucht. Die langreichweitige ferromagnetische Austauschwechselwirkung und insbesondere die Unterschiede zu Nächster-Nachbar-Modellen werden im darauf folgenden Abschnitt behandelt. Dabei werden auch andere Gittertypen in die Betrachtung einbezogen. Im Anschluss daran werden Modellrechnungen zu RKKY-artigen langreichweitigen oszillierenden Wechselwirkungen und die damit verbundenen Probleme diskutiert.

Cluster nicht berücksichtigt, ohne eine Begründung für diese Vorgehensweise anzugeben.

5.1 Analytische Vorbetrachtungen

In diesem Abschnitt werden zunächst die aus der Tyablikov-Näherung resultierenden Gleichungen zur Bestimmung der magnetischen Eigenschaften in eine Form gebracht, welche die numerische Behandlung erleichtert. Als Ausgangspunkt dient das Modell aus Abschnitt 2.2, in dem nur die besetzten Gitterplätze auftauchen. Die unbesetzten Gitterplätze werden der Einfachheit halber gänzlich aus der Betrachtung herausgehalten. Deshalb beziehen sich im folgenden die Gitterplatzindizes grundsätzlich nur auf besetzte Gitterplätze.

Für eine Konfiguration \mathcal{K}^ξ lautet der Hamilton-Operator dann

$$H^\xi = - \sum_{i,j} J_{ij} \mathbf{S}_i \cdot \mathbf{S}_j - \frac{1}{\hbar} g_J \mu_B B \sum_i S_i^z, \quad (5.1)$$

wobei die Gitterplatzindizes in den Summen nur über die in der Konfiguration \mathcal{K}^ξ besetzten Gitterplätze laufen. Die Green-Funktion $G_{ij}^\xi(E) = \left\langle \left\langle S_i^+; S_j^- \right\rangle \right\rangle_E^{ret}$ hat dann nach Tyablikov-Entkopplung mit der Näherung einer uniformen Magnetisierung die formale Lösung:

$$\mathbf{G}^\xi = (\mathbf{A}^\xi)^{-1} \quad (5.2)$$

mit

$$\mathbf{A}^\xi = \frac{1}{\hbar} \left(\frac{E - g_J \mu_B B}{2\hbar \langle S^z \rangle} \mathbf{1} - \mathbf{D}^\xi + \mathbf{J}^\xi \right) \quad (5.3)$$

und

$$D_{ij}^\xi = \sum_n J_{in} \delta_{ij}. \quad (5.4)$$

Für die Konfiguration \mathcal{K}^ξ , das heißt für eine gegebene Anordnung von N Spins auf einem Gitter, werden die Matrizen von den N^2 Matrixelementen, deren Indizes besetzte Gitterplätze bezeichnen, gebildet. Vom Standpunkt der Linearen Algebra sind dies die Matrixelemente von linearen Operatoren in einem N -dimensionalen Vektorraum bezüglich einer Basis, deren N Basisvektoren $|i\rangle$ durch die Indizes der besetzten Gitterplätze i^ξ gekennzeichnet sind und die als orthonormiert angenommen werden können.

Um die Green-Funktion $\mathbf{G}^\xi(E)$ zu berechnen, muss die Matrix $\mathbf{A}^\xi(E)$ invertiert werden. Dies funktioniert am einfachsten, wenn $\mathbf{A}^\xi(E)$ zuvor diagonalisiert wird. Zwar diagonalisiert eine Fourier-Transformation die Matrix für ein verdünntes Spinsystem wegen fehlender Translations-symmetrie nicht, für ein endliches System mit gegebener Verteilung der Spins auf dem Gitter lässt sich die Diagonalisierung aber – zumindest im Prinzip – numerisch durchführen, sofern konkrete Zahlenwerte für die Energie E , die Magnetisierung S^z und die Austauschwechselwirkungen J_{ij} vorliegen.

Für die numerischen Rechnungen ist es allerdings einfacher, nicht direkt die Matrix $\mathbf{A}^\xi(E)$ zu diagonalisieren, sondern die Hamilton-Matrix

$$\mathbf{H}^\xi = g_J \mu_B B \mathbf{1} + 2\hbar \langle S^z \rangle (\mathbf{D}^\xi - \mathbf{J}^\xi), \quad (5.5)$$

mit der sich die Matrix $\mathbf{A}^\xi(E)$ schreiben lässt als

$$\mathbf{A}^\xi(E) = \frac{1}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} (E \mathbf{1} - \mathbf{H}^\xi). \quad (5.6)$$

Da \mathbf{H}^ξ hermitesch ist, besitzt \mathbf{H}^ξ reelle Eigenwerte E_r^ξ . Die zugehörigen Eigenvektoren

$$|r\rangle^\xi = \sum_i r_i^\xi |i\rangle \quad (5.7)$$

mit den Koordinaten

$$r_i^\xi = \langle i | r \rangle^\xi \quad (5.8)$$

bezüglich der *Gitterplatzbasis* $\{|i\rangle\}$ bilden eine Orthonormalbasis, in der auch \mathbf{A}^ξ diagonal ist:

$$A_{rr'}^\xi = \frac{1}{2\hbar^2 \langle S^z \rangle} (E - E_r^\xi) \delta_{rr'}. \quad (5.9)$$

Die Green-Funktion in der Eigenbasis von \mathbf{H}^ξ ist somit:

$$G_{rr'}^\xi(E) = \frac{2\hbar^2 \langle S^z \rangle}{E - E_r^\xi + i0^+} \delta_{rr'}. \quad (5.10)$$

Damit ist die Spektraldichte durch

$$S_{rr'}^\xi(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_r^\xi) \delta_{rr'} \quad (5.11)$$

gegeben. Die Anregungsenergien E_r^ξ können wieder als die Teilchenenergien einer Spindeviation interpretiert werden. Wie beim konzentrierten Spinsystem sind diese Teilchen Bosonen mit Spin $S = 1$ und werden hier deshalb auch im verdünnten Fall als Magnonen bezeichnet. Die zu den Teilchenenergien E_r^ξ gehörenden Ein-Magnonzustände $\sum_i r_i^\xi S_i^- |S\rangle$ haben eine um Eins geringere Gesamtmagnetisierung als der total ausgerichtete Zustand $|S\rangle = |S_i^z = S \forall i \in \{1, \dots, N\}\rangle$, welcher den Grundzustand in ferromagnetischen Spinsystemen darstellt. Im verdünnten Spinsystem ist aber im Allgemeinen wegen fehlender Translationsinvarianz die Spinabweichung nicht gleichmäßig auf die Gitterplätze verteilt und hat auch nicht die Struktur einer ebenen Welle wie im konzentrierten Spinsystem.

Für die Berechnung der lokalen Spektraldichte

$$S_{ii}^{\xi}(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \sum_r |r_i^{\xi}|^2 \delta(E - E_r^{\xi}) \quad (5.12)$$

benötigt man explizit die Koordinaten r_i^{ξ} . Wegen fehlender Translationsinvarianz ergeben sich im Allgemeinen verschiedene $S_{ii}^{\xi}(E)$ für verschiedene Gitterplätze i und damit unterschiedliche Erwartungswerte $\langle S_i^z \rangle$. Dies steht im Widerspruch zur in der Bewegungsgleichung gemachten Näherung einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung $\langle S_i^z \rangle \equiv \langle S^z \rangle$.

Eine Möglichkeit, diesen Widerspruch zu lösen, besteht darin, die vereinfachende Annahme einer gitterplatzunabhängigen Magnetisierung in der Bewegungsgleichung aufzugeben. Dies bedeutet jedoch einen erheblichen Mehraufwand. Eine weitere Möglichkeit orientiert sich an der Vorgehensweise der Methoden zur Konfigurationsmittelung. Für die Berechnung von $\langle S^z \rangle$ wird als Näherung die gitterplatzgemittelte lokale Spektraldichte

$$\tilde{S}_{ii}^{\xi}(E) = \langle S_{ii}(E) \rangle_i = \frac{1}{N} \sum_i S_{ii}^{\xi}(E) \quad (5.13)$$

verwendet, welche sich wegen der Invarianz der Spur unter unitären Transformationen einfach schreiben lässt als:

$$\tilde{S}_{ii}^{\xi}(E) = \frac{1}{N} \sum_r 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \delta(E - E_r^{\xi}) . \quad (5.14)$$

Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ ergibt sich dann aus der mittleren Magnonzahl

$$\Phi = \frac{1}{N} \sum_r \frac{1}{e^{\beta E_r^{\xi}} - 1} . \quad (5.15)$$

mittels Gleichung (2.29). Somit reicht es für die Berechnung der Magnetisierung aus, die Eigenwerte von \mathbf{H}^{ξ} zu berechnen, die Eigenvektoren werden dafür nicht benötigt. Ebenso brauchen weder die Green-Funktion, noch die Spektraldichte explizit berechnet zu werden.

Weitere Vereinfachungen ergeben sich aus der Struktur der Hamilton-Matrix und damit der Struktur ihrer Eigenwerte. Diese sind von der Form:

$$E_r^{\xi} = g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \bar{E}_r^{\xi} , \quad (5.16)$$

wobei mit \bar{E}_r^{ξ} die Eigenwerte der reduzierten Hamilton-Matrix

$$\bar{\mathbf{H}}^{\xi} = \mathbf{D}^{\xi} - \mathbf{J}^{\xi} \quad (5.17)$$

bezeichnet sind. Somit lässt sich die mittlere Magnonzahl schreiben als

$$\Phi = \frac{1}{N} \sum_r \left\{ \exp \left[\beta \left(g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \bar{E}_r^\xi \right) \right] - 1 \right\}^{-1}. \quad (5.18)$$

Mit Hilfe der Eigenwerte \bar{E}_r^ξ ergibt sich analog zu Gleichung (2.30) für die Curie-Temperatur:

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\frac{1}{N} \sum_r \frac{1}{\bar{E}_r^\xi} \right)^{-1}. \quad (5.19)$$

5.2 Die Vorgehensweise bei den Modellrechnungen

Nun sollen die einzelnen Arbeitsschritte der numerischen Rechnungen in chronologischer Reihenfolge kurz erläutert werden. Als Erstes müssen die Parameter des Modellsystems festgelegt werden, um die numerischen Rechnungen durchführen zu können. Dies beinhaltet die Festlegung der Gitterstruktur, der Größe S der Spins und der Stärke der Austauschwechselwirkung $J(\mathbf{R})$ zwischen Gitterplätzen mit Abstand \mathbf{R} . Außerdem wird die Wahrscheinlichkeit $c \in [0, 1]$ festgelegt, mit der ein Gitterplatz mit einem Spin besetzt ist.

Da sich mit den hier vorgestellten Methoden nur endliche Systeme behandeln lassen, muss auch die räumliche Ausdehnung des Systems festgelegt werden. Für die numerischen Rechnungen bietet sich eine parallelepipedförmige Geometrie an, die sich an den primitiven Gittervektoren des Gittertyps orientiert. Für ein einfach-kubisches Gitter ist dann das System beispielsweise ein quaderförmiger Gitterabschnitt mit Kantenlängen L_x , L_y und L_z multipliziert mit der Gitterkonstanten und $L_x \times L_y \times L_z$ Gitterplätzen. Um Oberflächeneffekte zu vermeiden, wird der Parallelepiped zusätzlich zu einem Torus geschlossen.

Als nächstes muss die Anordnung der Spins auf dem Gitter festgelegt werden. Dazu wird für jeden Gitterplatz per Auswürfeln ermittelt, ob dieser besetzt ist. Beim Würfeln wird beachtet, dass die Wahrscheinlichkeit einer Besetzung gleich c ist. Damit sind alle Parameter des Systems festgelegt.

Sobald die Positionen \mathbf{R}_i^ξ der besetzten Gitterplätze bestimmt sind, kann mit Hilfe von $J(\mathbf{R})$ die Matrix \mathbf{J}^ξ mit $J_{ij}^\xi = J(\mathbf{R}_i^\xi - \mathbf{R}_j^\xi)$, $i, j = 1 \dots N$ aufgestellt werden. Mittels \mathbf{J}^ξ wird dann $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ bestimmt, und daraus werden dann mit einem geeigneten Algorithmus die Eigenwerte \bar{E}_r^ξ berechnet. Die Anzahl der Eigenwerte entspricht natürlich der Anzahl N der besetzten Gitterplätze, welche die Größe der Matrix $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ bestimmt. Für die weiteren Rechnungen werden die Eigenwerte in einer Liste $\mathcal{L}^\xi = \left\{ \bar{E}_1^\xi \dots \bar{E}_N^\xi \right\}$ gespeichert. Zur Visualisierung der Ergebnisse kann die Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ als normiertes Histogramm der Verteilung der berechneten Eigenwerte auf der Energieachse dargestellt werden.

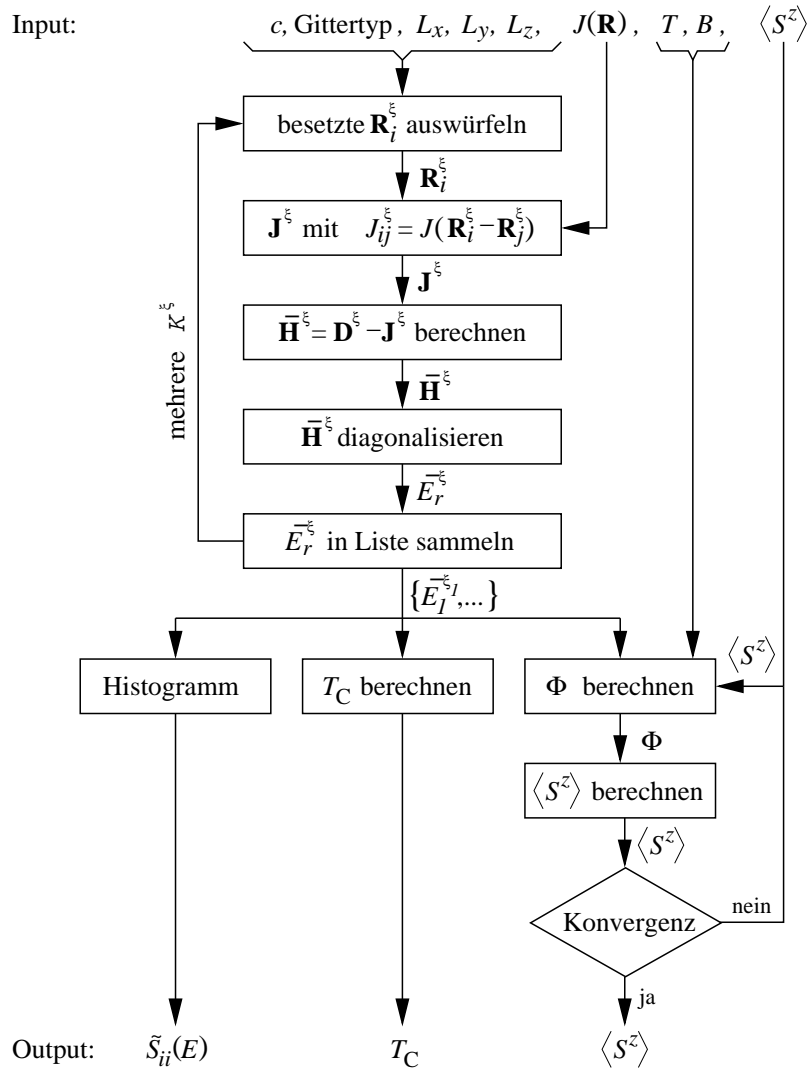


Abbildung 5.1: Der verwendete Algorithmus zur Berechnung der Spektraldichte, Magnetisierung und Curie-Temperatur.

In Anlehnung an die analytischen Methoden zur Konfigurationsmittelung kann $\tilde{S}_{ii}^\xi(E)$ nun über mehrere Konfigurationen gemittelt werden, um den Einfluss statistischer Schwankungen zu verringern. Am einfachsten werden dazu die Listen \mathcal{L}^ξ der Eigenwerte der n zur Mittelung verwendeten Konfigurationen \mathcal{K}^ξ mit gleichen Systemparametern zu einer Liste $\mathcal{L} = \mathcal{L}^1 \cup \mathcal{L}^2 \cup \dots \cup \mathcal{L}^n$ zusammengefasst, wobei als Wert N für die Zahl der Gitterplätze die Gesamtzahl der Eigenwerte in der zusammengesetzten Liste \mathcal{L} genommen wird. Physikalisch gesehen entsteht so ein neues System, welches aus den durch die \mathcal{K}^ξ definierten Systemen zusammengesetzt ist. Aus Sicht der Konfigurationsmittelung entspricht diese Vorgehensweise einer Mittelung der Spektraldichte

$\tilde{S}_{ii}^{\xi}(E)$ über mehrere Konfigurationen, deren jeweiliges statistisches Gewicht proportional zur Zahl ihrer besetzten Gitterplätze ist.

Nun können die Eigenwerte dazu verwendet werden, um mittels Iteration von Gleichung (2.29) unter Benutzung von Φ aus Gleichung (5.18) die Magnetisierung zu bestimmen. Im Falle eines verschwindenden externen Magnetfeldes stellen dabei allerdings nichtpositive Eigenwerte ein Problem dar, auf das speziell in Abschnitt 5.4 eingegangen wird. Auch die Bestimmung einer Curie-Temperatur mittels Gleichung (5.19) benötigt eine Modifikation bezüglich nichtpositiver Eigenwerte.

5.3 Kommentare zur Vorgehensweise

Das hier vorgestellte numerische Verfahren zur Bestimmung der magnetischen Eigenschaften wurde in einem ersten Schritt komplett als Mathematica-Programm implementiert und anhand kleinerer Systeme getestet [86]. Anschließend wurde das Verfahren als C++-Programm implementiert. Für die Handhabung der Matrizen wurde auf die Bibliothek Blitz++ zurückgegriffen [87,88]. Die Berechnung der Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^{\xi}$, welche die meiste Rechenzeit benötigt, erfolgte mit Routinen aus dem LAPACK-Paket [89,90]. Das Mathematica-Programm erlaubte eine Untersuchung von Systemen mit bis zu 1 000 Spins. Für größere Systeme schien die Diagonalisierung nicht in absehbarer Zeit zu Ergebnissen zu kommen, wobei die genaue Ursache nicht geklärt werden konnte. Mit dem C++-Programm konnten auf dem verwendeten PC (2GHz Athlon CPU, 1GB RAM) Spinsysteme mit bis zu 14 000 Spins untersucht werden. Der begrenzende Faktor war hierbei der Hauptspeicher, der die Einträge der Matrix $\bar{\mathbf{H}}^{\xi}$ während der Eigenwertberechnung fassen musste.

Das Auswürfeln zur Festlegung, ob in einer Konfiguration ein Gitterplatz mit einem Spin besetzt ist, wurde auf dem Computer – wie üblich – mittels eines Pseudozufallszahlengenerators simuliert. Dazu wurde ein vom Blitz++-Paket mitgelieferter Pseudozufallszahlengenerator verwendet, welcher der Dokumentation von Blitz++ zufolge alle gängigen statistischen Tests zufriedenstellend besteht [88].

Die in dieser Arbeit untersuchten Modelle beinhalten keine chemische Nahordnung. Deshalb hängt die Besetzungswahrscheinlichkeit im verwendeten Algorithmus allein von der Konzentration ab. Der Algorithmus ließe sich aber ohne weiteres dahingehend abändern, dass die Besetzungswahrscheinlichkeit eines Gitterplatzes auch von der Besetzung benachbarter Gitterplätze abhängt, um chemische Nahordnung zu simulieren.

Die zur Berechnung der Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^{\xi}$ verwendeten LAPACK-Routinen lieferten die Ei-

genwerte von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ für die untersuchten Systeme in akzeptabler Zeit (ca. 30min für Systeme mit etwa 12 000 Spins). Deshalb wurde darauf verzichtet, eigene Routinen zur Eigenwertberechnung zu programmieren. Für Systeme mit kurzreichweitiger Austauschwechselwirkung $J(\mathbf{R})$ ist die Matrix $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ sehr dünn besetzt. Dafür könnte ein schnellerer Algorithmus zur Eigenwertberechnung entwickelt werden, welcher die spezielle Struktur der Matrix ausnutzt und die Lanczos-Methode [91] benutzt, die besonders für dünn besetzte Matrizen geeignet ist. Für Systeme mit langreichweitiger Austauschwechselwirkung, bei denen die Matrix $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ nicht mehr dünn besetzt ist, wäre diese Methode dagegen nicht geeignet.

Algorithmen, die auf dem Negative-Eigenwerte-Theorem [26,92,93] basieren, erlauben eine approximative Bestimmung der Eigenwerte. Derartige Algorithmen liefern für eine gewählte Energie E die Anzahl $n(E)$ der Eigenwerte \bar{E}_r mit $\bar{E}_r < E$. Falls $n(E)$ nur für relativ wenige E -Werte im Vergleich zur Gesamtzahl der Eigenwerte benötigt wird, sollten diese Algorithmen wesentlich schneller sein als das hier verwendete Verfahren, welches die Eigenwerte direkt berechnet. In einer späteren Arbeit wäre also die Verwendung eines solchen Algorithmus zu erwägen.

Die vorgenommene Konfigurationsmittelung von $\tilde{S}_{ii}^\xi(E)$ soll den Einfluss statistischer Schwankungen verringern. Die Mittelung über alle Konfigurationen ist nicht nur für größere Systeme praktisch unmöglich, sie ist auch nicht notwendig, da die Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}^\xi(E)$ die als *self-averaging* bezeichnete Eigenschaft besitzt [26]. Vereinfacht gesagt bedeutet dies: Je größer das System gewählt wird, desto ähnlicher werden die Spektraldichten $\tilde{S}_{ii}^\xi(E)$ unterschiedlicher Konfiguration einander. Für sehr große Systeme wird damit die Wahrscheinlichkeit sehr klein, eine deutlich vom Konfigurationsmittelwert abweichende Spektraldichte zu erhalten.

Um die Anzahl der zur Konfigurationsmittelung benötigten Konfigurationen abzuschätzen, wurden zunächst die Spektraldichten einiger Konfigurationen berechnet und nach dem oben beschriebenen Schema zu einer konfigurationsgemittelten Spektraldichte zusammengefasst. Anschließend wurde die gleiche Anzahl weiterer Konfigurationen berechnet und deren Spektraldichten ebenso zusammengefasst. Die beiden so entstandenen gemittelten Spektraldichten wurden miteinander verglichen. Bei den untersuchten Systemen mit je über 10 000 Spins war der Unterschied beider Spektraldichten bereits nach je 5 bis 10 zur Mittelung benutzten Konfigurationen so klein, dass bei der Berechnung der Magnetisierung kein Unterschied mehr festzustellen war.

Außerdem wurde der Einfluss der Systemgröße auf die Spektraldichte untersucht, indem Konfigurationen unterschiedlicher Größen berechnet und deren Spektraldichten miteinander verglichen wurden. Dabei zeichnete sich bei der Form der Spektraldichte bereits eine Sättigung ab etwa 5 000 Spins pro System ab. Insbesondere war bei den größten untersuchten Systemen mit 10 000 bis 14 000 Spins bezüglich der Form der Spektraldichte kein sichtbarer Größeneffekt mehr festzustel-

len. Eine ausgedehnte quantitative Analyse der statistischen Schwankungen der Spektraldichten verschiedener Konfigurationen und des Einflusses der endlichen Systemgröße wurde nicht vorgenommen. Allerdings wurden die Curie-Temperaturen von Systemen unterschiedlicher Größe berechnet. Dabei zeichnete sich bereits eine deutliche Sättigung für Systeme mit mehr als 5 000 Spins ab.

Mit dem numerischen Verfahren wurden ebenso konzentrierte Spinsysteme, das heißt $c = 1$, untersucht. Im Falle von $c = 1$ hat allerdings die Spektraldichte aufgrund der hohen Symmetrie des Systems auch für große Systeme noch eine sehr *peak*-artige Struktur. Die Ursache der starken Oszillationen der Spektraldichte liegt darin, dass für $c = 1$ Translationssymmetrie vorliegt. Die Eigenwerte \bar{E}_r^ξ ergeben sich in Folge dessen aus $\bar{E}_r^\xi = J(\mathbf{0}) - J(\mathbf{k})$, wobei als \mathbf{k} -Vektoren nur solche auftreten, welche mit den Systemabmessungen L_x, L_y und L_z verträglich sind, welche also $k_\alpha = \frac{2\pi n}{L_\alpha}$, $n \in \{0, 1, \dots, L_\alpha - 1\}$, $\alpha = x, y, z$, als Komponenten besitzen. Die Spektraldichte lässt sich deshalb etwas glätten, wenn man über mehrere Konfigurationen unterschiedlicher geometrischer Abmessungen mittelt [52].

Zur iterativen Berechnung der Magnetisierung aus Gleichung (2.29) wurde hier ein Verfahren benutzt, das für die ersten Iterationsschritte die direkte Iteration der Gleichung (2.29) und anschließend die Sekantenversion der Methode nach Newton-Raphson [94] verwendet. Die direkte Iteration von Gleichung (2.29) konvergiert in der Regel immer langsamer, je näher man an der Lösung ist, insbesondere für höhere Temperaturen. Die Newton-Raphson-Methode hingegen konvergiert in der Nähe einer Lösung sehr schnell, aber weit weg von der Lösung schlecht oder gar nicht. Daher ist eine Kombination beider Methoden sinnvoll. Die Sekantenversion der Newton-Raphson-Methode hat gegenüber der Tangentenversion den Vorteil, dass sie keine Ableitungen von Funktionen benötigt.

Da für die Bestimmung der Magnetisierung aus Gleichung (2.29) die mittlere Magnonbesetzung Φ mehrfach mittels Gleichung (5.18), welche eine Summation über alle Eigenwerte \bar{E}_r^ξ enthält, berechnet werden muss, wurde in dieser Arbeit die Berechnung von Φ beschleunigt, indem die Eigenwerte \bar{E}_r^ξ in einer Häufigkeitstabelle \mathcal{H}^ξ zusammengefasst wurden. Hierzu wurde zunächst der Teil der reellen Achse, in welchem die Eigenwerte \bar{E}^ξ liegen, in m Intervalle der Breite $\Delta\bar{E}$ mit Mittelpunkten \bar{E}_k ($k = 1 \dots m$) aufgeteilt. Anschließend wurden die Häufigkeiten

$$h_k^\xi = \# \left\{ \bar{E}_r^\xi \in \mathcal{L}^\xi \mid \bar{E}_r^\xi \in \left[\bar{E}_k - \frac{\Delta\bar{E}}{2}, \bar{E}_k + \frac{\Delta\bar{E}}{2} \right) \right\} \quad (5.20)$$

bestimmt und in die Häufigkeitstabelle

$$\mathcal{H}^\xi = \left(\left(\bar{E}_k, h_k^\xi \right), k = 1, \dots, m \right) \quad (5.21)$$

eingetragen. Unter Verwendung der Einträge (\bar{E}_k, h_k^ξ) kann die mittlere Magnonbesetzung durch

$$\Phi = \frac{1}{N} \sum_k \frac{h_k^\xi}{\exp[\beta(g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \bar{E}_k)] - 1} \quad (5.22)$$

angenähert werden. Die Curie-Temperatur berechnet man dann näherungsweise durch:

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\frac{1}{N} \sum_k \frac{h_k^\xi}{\bar{E}_k} \right)^{-1}. \quad (5.23)$$

Wählt man die Breite $\Delta \bar{E}$ der Intervalle so groß, dass die Anzahl der Tabelleneinträge m viel kleiner ist als die Zahl der Eigenwerte \bar{E}^ξ , dann ist die Berechnung von Φ und T_C mit diesen Gleichungen wesentlich schneller als mittels der Gleichungen (5.18) beziehungsweise (5.19). Allerdings bedeutet ein größeres $\Delta \bar{E}$ auch eine größere Ungenauigkeit für Φ und T_C . Hier wurde $\Delta \bar{E}$ so gewählt, dass bei etwa 10 000 Eigenwerten E_r^ξ in der Eigenwertliste \mathcal{L}^ξ die Tabelle rund 1 000 Einträge enthält.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden nur Systeme mit temperatur- und magnetisierungsunabhängigen Austauschintegralen $J(\mathbf{R})$ untersucht. In diesem Fall macht es die spezielle Struktur von \mathbf{H}^ξ unnötig, deren Eigenwerte für jede Temperatur und Magnetisierung einzeln zu bestimmen. Die einmal bestimmten Eigenwerte \bar{E}_r^ξ von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ können direkt dafür verwendet werden, die Magnetisierung mittels Gleichung (2.29) und Gleichung (5.18) oder (5.22) für jede gewünschte Temperatur zu bestimmen.

Schwieriger ist die iterative Bestimmung der Magnetisierung für den Fall, dass die Austauschintegrale temperatur- oder magnetisierungsabhängig sind, wie es bei einigen Modellen mit effektiver Austauschwechselwirkung vorkommt. Falls sich die Temperatur- und Magnetisierungsabhängigkeit separieren lässt, also die Austauschwechselwirkung von der Form $J(\mathbf{R}, \langle S^z \rangle, T) = \lambda(\langle S^z \rangle, T) J(\mathbf{R})$ ist, bestimmt man zunächst die Eigenwerte von $\tilde{\mathbf{H}}^\xi$ für ein geeignetes Wertepaar $(\langle S^z \rangle_0, T_0)$ und berechnet die Eigenwerte für beliebige $\langle S^z \rangle$ und T durch Skalieren der Eigenwerte mit $\lambda(\langle S^z \rangle, T) / \lambda(\langle S^z \rangle_0, T_0)$. Falls die Temperatur- oder Magnetisierungsabhängigkeit von J komplizierter ist, kommt man nicht darum herum, zur Berechnung der Magnetisierung die Eigenwerte von $\tilde{\mathbf{H}}^\xi$ in jedem Iterationsschritt neu zu berechnen, was sehr zeitaufwändig ist.

5.4 Nichtpositive Eigenwerte

Das hier verwendete isotrope Heisenberg-Modell zeigt keine spontane Magnetisierung für endliche Systeme. Eine spontane Magnetisierung und eine endliche Curie-Temperatur können streng

genommen nur für Systeme im thermodynamischen Limes mit anschließendem Grenzübergang $B \rightarrow 0^+$ auftreten [95,96]. In der Tyablikov-Näherung manifestiert sich dies in den Eigenschaften der reduzierten Hamilton-Matrix $\bar{\mathbf{H}}^\xi$. Deren Struktur beinhaltet, dass sie mindestens einen Null-Eigenwert besitzt. Da die hier betrachteten Systeme endlich sind, hat der Null-Eigenwert ein endliches spektrales Gewicht. Für ein verschwindendes äußeres Magnetfeld divergiert somit Φ nach Gleichung (5.18). Dies kann vermieden werden, indem immer ein positives Magnetfeld in der Berechnung der Magnetisierung verwendet wird. Allerdings ist so keine Curie-Temperatur definierbar.

Eine Möglichkeit, das Problem der Null-Eigenwerte bei der Berechnung der spontanen Magnetisierung und der Curie-Temperatur zu vermeiden, besteht darin, den isotropen Heisenberg-Hamilton-Operator (5.1) durch einen Anisotropieterm zu erweitern. Möchte man hingegen das isotrope Heisenberg-Modell nicht aufgeben, so muss man für die Berechnung der spontanen Magnetisierung und Curie-Temperatur zuvor von der ermittelten Spektraldichte eines endlichen Systems auf die Spektraldichte des entsprechenden unendlich ausgedehnten Systems schließen. Eine in dieser Arbeit verwendete Methode besteht darin, die berechneten Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ zu einer Häufigkeitstabelle (5.21) zusammenzufassen. Diese wird dann in den Gleichungen (5.22) und (5.23) als „Wertetabelle“ für die Spektraldichte des unendlich ausgedehnten Systems zur Berechnung der spontanen Magnetisierung und der Curie-Temperatur verwendet. Ursprünglicher Zweck des Zusammenfassens der Eigenwerte zu einer Häufigkeitstabelle war lediglich die Beschleunigung der numerischen Berechnung der Magnetisierung aus den Eigenwerten \bar{E}_r^ξ . Bei geeigneter Wahl der Intervallmittelpunkte \bar{E}_k für die Bestimmung der Häufigkeiten h_k kann jedoch auch das Auftreten eines Tabelleneintrages mit Null als Energiewert vermieden werden. Diese Methode entspricht der Annahme einer kleinen Anisotropieenergie für die energetisch niedrigsten Eigenwerte und macht es somit überflüssig, eine zusätzliche Anisotropie einzuführen.

Eine weitere Möglichkeit, das Problem mit den Null-Eigenwerten zu lösen, besteht darin, den niederenergetischen Teil der Spektraldichte, in dem die Endlichkeit des Systems entscheidend zum Tragen kommt, durch einen analytischen Ausdruck für das unendlich ausgedehnte System zu ersetzen. Ein solcher Ausdruck ist jedoch im Allgemeinen nicht exakt bekannt. Es existieren zwar verschiedene Näherungen (siehe Kapitel 4), diese sind aber je nach Modell recht aufwändig zu berechnen, ohne dass sich ihre Güte genau abschätzen lässt.

Die einfachste Variante, mit dem Problem der Null-Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ umzugehen, ist, diese aus den Summen in den Gleichungen (5.18) und (5.19) zu entfernen. Bezeichnet N_0 die Anzahl der

Null-Eigenwerte in \mathcal{L}^ξ , so ergibt sich dann für die mittlere Magnonzahl:

$$\Phi = \frac{1}{N - N_0} \sum_{E_r^\xi \neq 0} \left\{ \exp \left[\beta \left(g_J \mu_B B + 2\hbar \langle S^z \rangle \bar{E}_r^\xi \right) \right] - 1 \right\}^{-1} \quad (5.24)$$

und für die Curie-Temperatur:

$$k_B T_C = \frac{2}{3} \hbar^2 S(S+1) \left(\frac{1}{N - N_0} \sum_{E_r^\xi \neq 0} \frac{1}{\bar{E}_r^\xi} \right)^{-1}. \quad (5.25)$$

Diese Vorgehensweise wurde in der vorliegenden Arbeit ebenfalls getestet. Sie ließ sich technisch recht einfach umsetzen, indem alle $\bar{E}_r^\xi \approx 0$ aus der Eigenwertliste \mathcal{L}^ξ entfernt wurden.

Das Unterschlagen der Null-Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ bei der Berechnung der Magnetisierung und der Curie-Temperatur kann für Modelle mit ferromagnetischer langreichweitiger Austauschwechselwirkung, das heißt $J(\mathbf{R}) > 0 \forall \mathbf{R}$, damit begründet werden, dass für diese Modelle jedes zusammenhängende System genau einen Null-Eigenwert besitzt³. Mit zunehmender Systemgröße wird das spektrale Gewicht dieses Null-Eigenwertes immer kleiner. Im Grenzfall des unendlich ausgedehnten dreidimensionalen Systems geht dessen Gewicht gegen Null, während die anderen Eigenwerte ein kontinuierliches Spektrum mit endlicher Dichte ausbilden, für welches die positiven Eigenwerte des endlichen Systems eine vernünftige Näherung darstellen.

Für Modelle mit ferromagnetischer Wechselwirkung endlicher Reichweite besteht für größere Systeme mit Konzentrationen $c < 1$ eine endliche Wahrscheinlichkeit für das Auftreten mehrerer nicht durch die Wechselwirkung verbundener Cluster, von denen jeder genau einen Null-Eigenwert zu den Eigenwerten von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ beisteuert⁴. Im Grenzfall eines unendlich ausgedehnten Systems hat somit zwar der Null-Eigenwert für $c < 1$ ein endliches spektrales Gewicht, dieses stammt aber in dreidimensionalen Systemen nur von einer unendlichen Anzahl *endlicher* Cluster. Der oberhalb der Perkolkonzentration c_p vorhandene *unendlich ausgedehnte* Cluster \mathcal{C}^∞ , welcher das gesamte System durchdringt, trägt nicht dazu bei. Ferner kann nur der perkolierende Cluster \mathcal{C}^∞ eine spontane Magnetisierung aufweisen, die endlichen Cluster hingegen nicht. Somit sollte als Näherung für die lokale Spektraldichte $S_{ii}^\xi(E)$ der Gitterplätze i im perkolierenden Cluster \mathcal{C}^∞ nicht die über alle besetzten Gitterplätze gemittelte Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ verwendet werden, sondern nur die über alle Gitterplätze des unendlich ausgedehnten perkolierenden

³Dies zeigten alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Systeme mit langreichweitiger ferromagnetischer Wechselwirkung. Ferner wird in Anhang C gezeigt, dass die Zahl der Null-Eigenwerte gleich der Zahl der nicht durch die Austauschwechselwirkung verbundenen Cluster im System ist.

⁴Siehe Anhang C.

Clusters gemittelte Spektraldichte

$$\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E) := \langle S_{ii}(E) \rangle_{i \in \mathcal{C}^{\infty}} .$$

Bei Systemen endlicher Größe kann man nun das größte Cluster bestimmen. Oberhalb der Perkolkonzentration wird dieses im Grenzfall eines unendlich ausgedehnten Systems zum perkolierenden Cluster. Deshalb erscheint es plausibel, die über alle Gitterplätze des *größten* Clusters eines endlichen Systems gemittelte Spektraldichte als Näherung für $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E)$ zu verwenden.

Im hier vorgestellten Algorithmus erhält man die über die Gitterplätze des größten Clusters gemittelte Spektraldichte, indem man aus der Liste \mathcal{L}^{ξ} der Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^{\xi}$ alle von kleineren Clustern stammenden Eigenwerte entfernt. Die daraus resultierende Spektraldichte kann dann als Näherung für die Spektraldichte des unendlich ausgedehnten Clusters im unendlich ausgedehnten System verwendet werden, wenn man den letzten verbleibenden Null-Eigenwert in \mathcal{L}^{ξ} auch entfernt. Die Bestimmung der Eigenwerte, welche auf den größten Cluster zurückzuführen sind, ist jedoch recht aufwendig: Dazu müsste für alle besetzten Gitterplätze bestimmt werden, zu welchem Cluster sie gehören. Bereits dies ist keine leichte Aufgabe [97]. Dann müsste anhand der zu den berechneten Eigenwerten gehörenden Eigenvektoren bestimmt werden, welche Eigenwerte auf welchen Cluster zurückzuführen sind. Auch dies wäre nur mit viel Aufwand zu erreichen. Deshalb wurden in den Rechnungen für diese Arbeit lediglich alle Null-Eigenwerte aus der Eigenwertliste \mathcal{L}^{ξ} entfernt, nicht aber die übrigen zu den kleineren Clustern gehörenden Eigenwerte. Bei geringen Konzentrationen erzeugt diese Vorgehensweise aber erhebliche Fehler, da dort der größte Anteil oder sogar die gesamte Spektraldichte von kleineren Clustern stammt. Im folgenden Abschnitt wird dies insbesondere am Verhalten der nach Gleichung (5.25) berechneten Curie-Temperatur für kleine Konzentrationen deutlich.

Für Modelle mit einer Austauschwechselwirkung, die nicht für alle Abstände ferromagnetisch ist, können bei Konzentrationen $c < 1$ negative Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}^{\xi}$ auftreten, selbst wenn das konzentrierte System ferromagnetisch ordnet. Diese werden durch Konfigurationen hervorgerufen, in denen für einige Spins eine antiferromagnetische Kopplung zu den anderen Spins überwiegt. Solche Systeme können im Rahmen der hier verwendeten Methoden nicht zufriedenstellend behandelt werden, wie Abschnitt 5.7 zeigen wird.

5.5 Kurzreichweitige Wechselwirkung

Nun soll die im Abschnitt 5.2 skizzierte Methode auf das Heisenberg-Modell mit Nächste-Nachbar-Wechselwirkung der Stärke J^0 auf einem einfach-kubischen Gitter angewendet werden.

Sofern nicht anders angegeben, wird stets $B = 0^+$ angenommen. Für das Heisenberg-Modell mit Nächste-Nachbar-Wechselwirkung können die Ergebnisse der numerischen Rechnungen mit einer ganzen Reihe bereits bekannter Ergebnisse verglichen werden. Dies ermöglicht eine Bewertung der Brauchbarkeit der numerischen Rechnungen.

Zunächst sollen einige technische Aspekte der Methode illustriert werden. Dazu wird als Erstes das konzentrierte Spinsystem, also der Fall $c = 1$, betrachtet. In Abbildung 5.2 ist die Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}^{\xi}(E)$ für ein konzentriertes Spinsystem von 12672 Spins auf einem Gitter mit $22 \times 24 \times 24$ Gitterplätzen als Histogramm über die Eigenwerte E_r^{ξ} von \mathbf{H}_r^{ξ} dargestellt. Trotz der recht hohen Zahl der Spins hat die Spektraldichte eine stark variierende Struktur. Mittelt man hingegen die Spektraldichte über mehrere Konfigurationen unterschiedlicher geometrischer Abmessungen, so erhält man eine wesentlich glattere Spektraldichte (Abbildung 5.3), deren Form bereits sehr gut mit der Spektraldichte des unendlich ausgedehnten Systems übereinstimmt (siehe zum Vergleich Abbildung 2.3).

Zur Abschätzung der statistischen Schwankungen der Spektraldichte für $c < 1$ sind in Abbildung 5.4 vier verschiedene Konfigurationen eines Spinsystems mit $c = 0.7$ dargestellt, je zwei mit etwa 700 Spins und zwei mit 12 300 Spins. Während zwischen den Spektraldichten der beiden kleineren Systeme noch größere Unterschiede zu erkennen sind, stimmen die Spektraldichten der größeren Systeme bereits sehr gut überein. Insbesondere unterscheiden sich die Curie-Temperaturen der beiden größeren Konfigurationen kaum.

Zur Abschätzung des Einflusses der Systemgröße auf die magnetischen Eigenschaften ist in Abbildung 5.5 die Curie-Temperatur für Systeme unterschiedlicher Größe dargestellt. Die Curie-

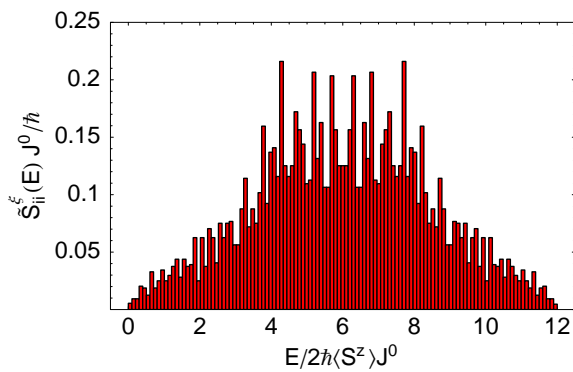


Abbildung 5.2: Die als Histogramm über die Eigenwerte E_r^{ξ} dargestellte Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}^{\xi}(E)$ für eine Konfiguration mit $c = 1$ und $22 \times 24 \times 24$ Gitterplätzen.

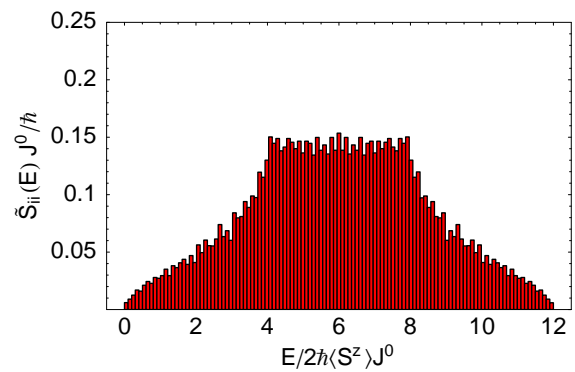


Abbildung 5.3: Die über mehrere Konfigurationen gemittelte Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ für $c = 1$. Verwendet wurden 8 Konfigurationen unterschiedlicher geometrischer Abmessungen von $8 \times 24 \times 38$ bis $22 \times 24 \times 24$ Gitterplätzen.

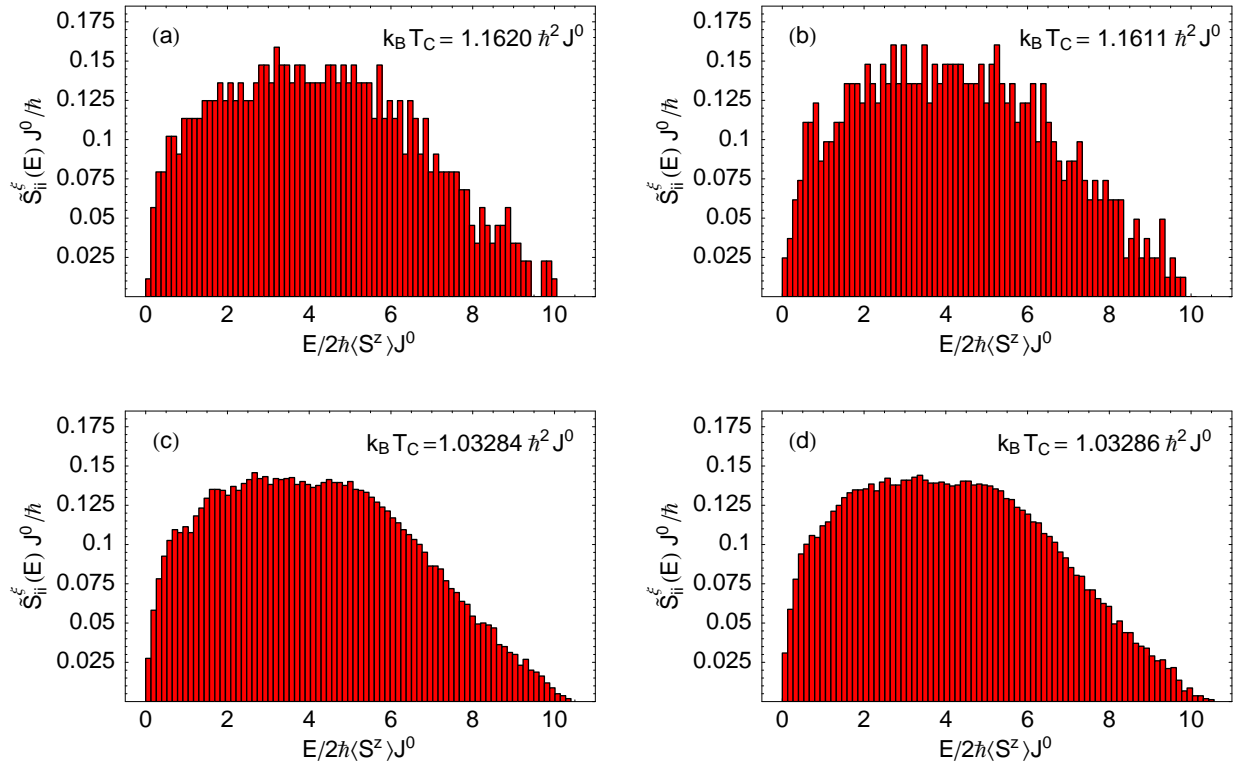


Abbildung 5.4: Die Spektraldichten und berechneten Curie-Temperaturen verschiedener Konfigurationen für $c = 0.7$ im Vergleich: (a) und (b) sind kleine Systeme mit nur ca. 700 Spins, (c) und (d) Systeme mit ca. 12 300 Spins. Die Curie-Temperaturen wurden mittels Gleichung (5.25) berechnet.

Temperatur wurde für jede Konfiguration auf zwei Arten berechnet: Bei der einen Variante wurden die Null-Eigenwerte aus der Eigenwertliste entfernt und die Gleichung (5.25) angewendet, bei der zweiten Variante wurde die Gleichung (5.25) zur Berechnung von T_C benutzt. Die mit Gleichung (5.23) berechnete Curie-Temperatur liegt in allen Fällen unterhalb der mit Gleichung (5.23) berechneten. Eine Sättigung in Bezug auf die Systemgröße ist bei beiden Varianten bereits ab einer Systemgröße von etwa 5 000 Spins zu erkennen. Ab dieser Systemgröße betragen die Abweichungen der Curie-Temperaturen unterschiedlich großer Systeme weniger als zwei Prozent bei der ersten Variante und weniger als vier Prozent bei der zweiten.

Nachdem einige technische Aspekte der Modellrechnungen erläutert wurden, soll nun anhand der Modellrechnungen der Einfluss der Verdünnung auf die magnetischen Eigenschaften verdünnter Spinsysteme mit kurzreichweitiger Austauschwechselwirkung diskutiert werden. Dazu wird zunächst die Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ bei unterschiedlichen Konzentrationen c betrachtet (Abbildung 5.6). Für alle Konzentrationen ist die Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E) = 0$ außerhalb von $0 \leq E / (2\hbar \langle S^z \rangle J^0) \leq 12$. Verringert man ausgehend von $c = 1$ die Konzentration, so de-

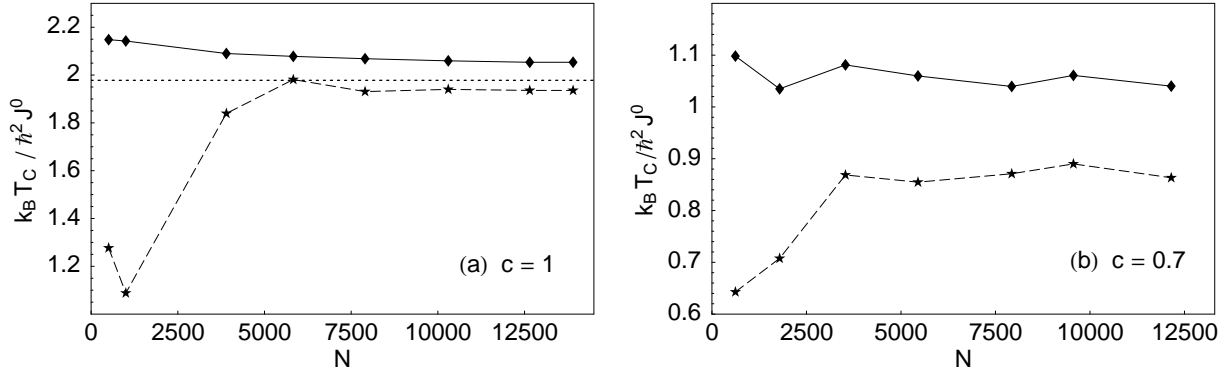


Abbildung 5.5: Die berechnete Curie-Temperatur T_C für verschiedene Systemgrößen N und $S = 1/2$ nach Gleichung (5.25) (durchgezogene Linie) und nach Gleichung (5.23) mit $\Delta \bar{E} = 0.01$ für die Konzentration $c = 1$ (a) und $c = 0.7$ (b). Für jede Konzentration und Systemgröße wurden 3 Konfigurationen zur Konfigurationsmittelung verwendet. Die gestrichelte Linie in (a) markiert den „exakten“ Wert nach Gleichung (2.40).

formiert sich zunächst die Spektraldichte derart, dass ihre Werte bei niedrigen Energien zunehmen, während die Spektraldichte für hohe Energien abnimmt. Ferner verringert sich die maximale Energie, bei der die Spektraldichte noch merklich von Null verschieden ist. Dabei behält die Spektraldichte oberhalb von $c = 0.5$ noch einen ziemlich glatten Verlauf. Bei Konzentrationen $c \leq 0.5$ treten jedoch immer stärker Peaks bei bestimmten Energien (insbesondere für $E / (2\hbar \langle S^z \rangle J^0) = 0, 1, 2$) hervor. Unterhalb von $c = 0.3$ besteht die Spektraldichte praktisch nur noch aus einer Reihe scharfer Peaks.

Das Verhalten der Spektraldichten der hier untersuchten endlichen Systeme lässt sich gut erklären, wenn man annimmt, dass diese Spektraldichten bereits sehr gut die Spektraldichten unendlich ausgedehnter Systeme wiedergeben. In solchen Systemen setzt sich die Spektraldichte aus zwei qualitativ verschiedenen Anteilen zusammen:

$$\tilde{S}_{ii}(E) = \tilde{S}_{ii}^{\text{finit}}(E) + \tilde{S}_{ii}^{\infty}(E) .$$

Der erste Anteil $\tilde{S}_{ii}^{\text{finit}}(E)$ stammt von Clustern endlicher Größe, welche für alle Konzentrationen $c < 1$ einen endlichen Anteil der Spins enthalten. Dieser Anteil wird bei niedrigen und hohen Konzentrationen von Delta-Peaks dominiert, die bei den Anregungsenergien der kleineren Cluster liegen:

$$\tilde{S}_{ii}^{\text{finit}}(E) \approx 2\hbar \langle S^z \rangle \sum_{\mathcal{C} \text{ klein}} \sum_{r=1}^{N^{\mathcal{C}}} p^{\mathcal{C}}(c) \delta(E - E_r^{\mathcal{C}}) .$$

Hierbei bezeichnet \mathcal{C} die topologisch verschiedenen Cluster, $N^{\mathcal{C}}$ die Größe des Clusters \mathcal{C} , $p^{\mathcal{C}}(c)$ das von der Konzentration c abhängende statistische Gewicht des Clusters \mathcal{C} und die $E_r^{\mathcal{C}}$ mit

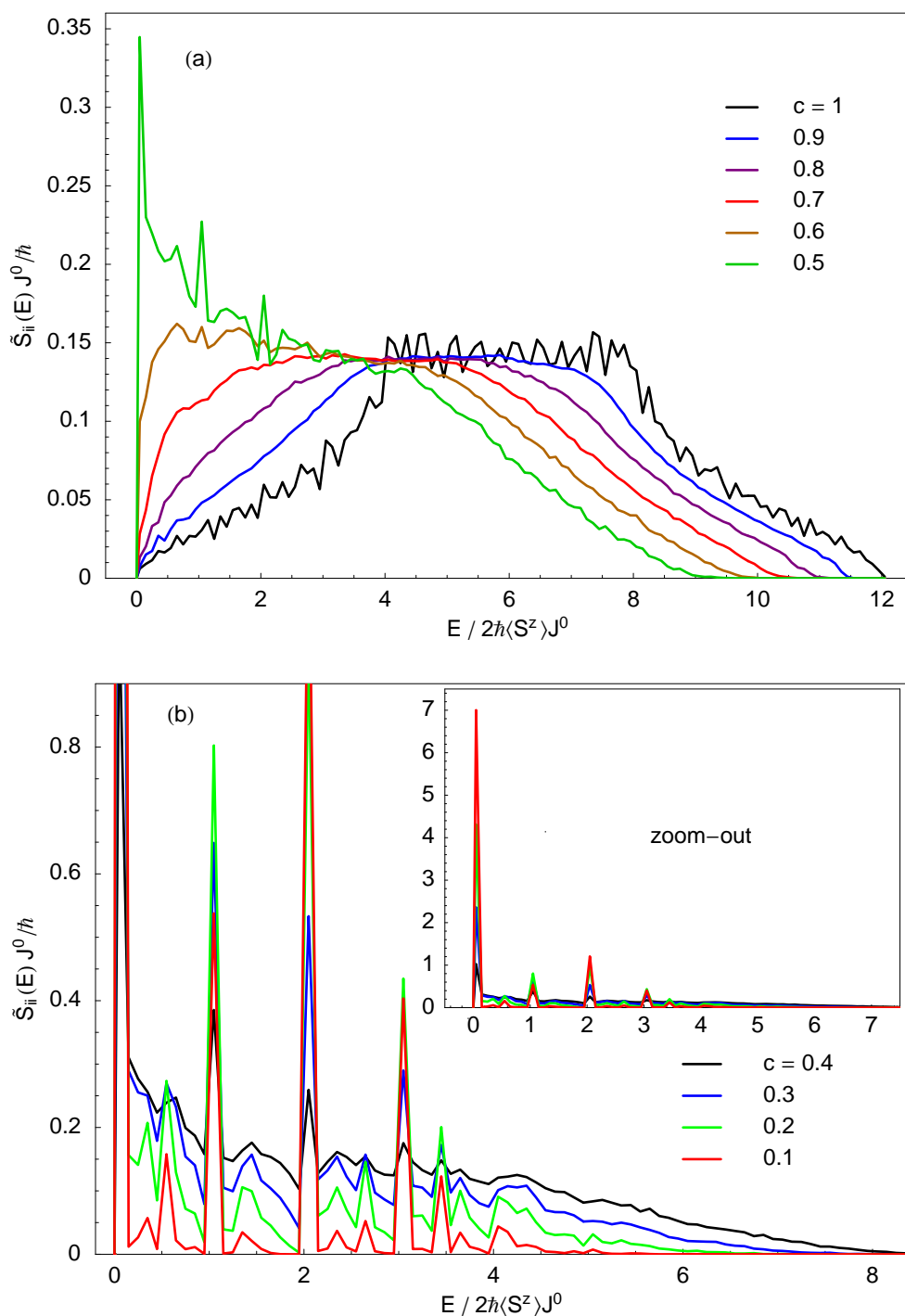


Abbildung 5.6: Spektraldichten $\tilde{S}_{ii}(E)$ für verschiedene Konzentrationen c : (a) $c = 1$ bis $c = 0.5$, (b) $c = 0.4$ bis $c = 0.1$. Zur Erstellung der hier dargestellten Daten wurden für jede Konzentration die Eigenwerte \bar{E}_r^ξ von 6 bis 12 Konfigurationen mit je 9 000 bis 13 000 Spins berechnet und in eine Häufigkeitstabelle eingetragen, wobei eine Intervallbreite von $\Delta \bar{E} / J^0 = 0.1$ verwendet wurde.






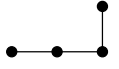
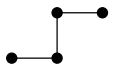

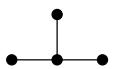
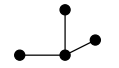

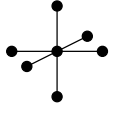
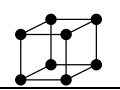
Cluster \mathcal{C}	$N^{\mathcal{C}}$	$p^{\mathcal{C}}(c)$	$p^{\mathcal{C}}(c = 0.3)$	$E_r^{\mathcal{C}} / (2\hbar \langle S^z \rangle J^0)$
	1	$(1 - c)^6$	0.11764	0
	2	$3c(1 - c)^{10}$	0.02542	0, 2
	3	$3c^2(1 - c)^{14}$	0.00183	0, 1, 3
	3	$8c^2(1 - c)^{13}$	0.00698	0, 1, 3
	4	$3c^3(1 - c)^{18}$	0.00013	0, 2, $-\sqrt{2}$, 2, $2+\sqrt{2}$
	4	$24c^3(1 - c)^{17}$	0.00151	0, 2, $-\sqrt{2}$, 2, $2+\sqrt{2}$
	4	$12c^3(1 - c)^{16}$	0.00108	0, 2, $-\sqrt{2}$, 2, $2+\sqrt{2}$
	4	$24c^3(1 - c)^{16}$	0.00215	0, 2, $-\sqrt{2}$, 2, $2+\sqrt{2}$
	4	$15c^3(1 - c)^{16}$	0.00135	0, 1, 1, 4
	4	$8c^3(1 - c)^{15}$	0.00103	0, 1, 1, 4
	4	$3c^3(1 - c)^{16}$	0.00027	0, 2, 2, 4
	7	$c^6(1 - c)^{18}$	1.2×10^{-6}	0, 1, 1, 1, 1, 1, 7
	8	$c^7(1 - c)^{24}$	4.3×10^{-8}	0, 2, 2, 2, 4, 4, 4, 6

Tabelle 5.1: Kleine Cluster \mathcal{C} und ihre Anregungsenergien $E_r^{\mathcal{C}}$. Neben der Zahl der Spins pro Cluster $N^{\mathcal{C}}$ und den Anregungsenergien $E_r^{\mathcal{C}}$ sind die aus den Häufigkeiten der Cluster resultierenden spektralen Gewichte $p^{\mathcal{C}}$ der Anregungsenergien als Funktion der Konzentration c angegeben. Es sind alle topologisch verschiedenen Cluster mit bis zu vier Spins und je ein Cluster mit sieben und acht Spins aufgelistet.

$r = 1, \dots, N^C$ die Anregungsenergien des Clusters \mathcal{C} (siehe Tabelle 5.1). Zusätzlich zu den von den kleineren Clustern stammenden Anteilen enthält $\tilde{S}_{ii}^{\text{fnit}}(E)$ noch einen quasikontinuierlichen Beitrag, der auf größere Cluster zurückzuführen ist. Deren Häufigkeit ist jedoch für Konzentrationen $c \approx c_p$ sehr klein.

Von tatsächlicher Bedeutung ist $\tilde{S}_{ii}^{\text{fnit}}(E)$ nur für kleinere Konzentrationen. Insbesondere unterhalb der kritischen Perkolkationskonzentration $c_p \approx 0.3$, wenn nur endliche Cluster im System vorliegen, gilt exakt $\tilde{S}_{ii}^{\text{fnit}}(E) \equiv \tilde{S}_{ii}(E)$. Weit oberhalb der kritischen Perkolkationskonzentration ist der Anteil der Spins in endlichen Clustern hingegen sehr gering und damit auch der von ihnen stammende Anteil $\tilde{S}_{ii}^{\text{fnit}}(E)$ an der Spektraldichte. Im konzentrierten System mit $c = 1$ ist $\tilde{S}_{ii}^{\text{fnit}}(E) \equiv 0$.

Der zweite Anteil der Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E)$ stammt vom oberhalb der kritischen Perkolkationskonzentration c_p existierenden unendlich ausgedehnten Cluster. Dieser Anteil ist für alle Konzentrationen $c > 0.3$ kontinuierlich und hat bei kleinen Energien E näherungsweise einen wurzelförmigen Verlauf. Für $c = 1$, wo das System allein aus dem unendlich ausgedehnten Cluster besteht, fällt $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E)$ mit der Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ zusammen, also $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E) \equiv \tilde{S}_{ii}(E)$. Bei endlicher Verdünnung macht \tilde{S}_{ii}^{∞} für Konzentrationen oberhalb von $c = 0.5$ immer noch den größten Teil der Spektraldichte aus: $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E) \approx \tilde{S}_{ii}(E)$. Sinkt jedoch die Konzentration unter 0.5 so nimmt dieser Anteil rasch ab und fällt bei der kritischen Perkolkationskonzentration $c_p \approx 0.3$ auf Null. Unterhalb der kritischen Perkolkationskonzentration c_p ist $\tilde{S}_{ii}^{\infty}(E) \equiv 0$, da dort nur Cluster endlicher Größe existieren. Im konzentrierten System hat \tilde{S}_{ii}^{∞} eine um $E/2\hbar \langle S^z \rangle J^0 = 6$ symmetrische Form. Die Verschiebung des Schwerpunktes von \tilde{S}_{ii}^{∞} zu kleineren Energien bei Verdünnung kann man damit erklären, dass mit fortschreitender Verdünnung die effektive Koordinationszahl, also die durchschnittliche Zahl der Nachbarspins, die ein Spin im unendlichen Cluster hat, abnimmt. Damit sinken aber auch die Anregungsenergien des unendlichen Clusters, da diese in etwa proportional zur Koordinationszahl sind.

Als Nächstes soll der Einfluss der Verdünnung auf die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ untersucht werden. Hierzu ist die Magnetisierung als Funktion der Temperatur T für verschiedene Konzentrationen c in Abbildung 5.7 für $S = 1/2$ und in Abbildung 5.8 für $S = 5/2$ dargestellt ⁵. Die Magneti-

⁵Bezüglich der Effekte der Verdünnung auf die magnetischen Eigenschaften können bei der hier verwendeten numerischen Methode qualitativ keine Unterschiede zwischen verschiedenen S -Werten festgestellt werden. Insbesondere hängt in den Gleichungen (5.23) und (5.25) die Curie-Temperatur nur über den Vorfaktor $S(S+1)$ von der Größe der Spins S ab. Somit ergeben sich die Curie-Temperaturen eines $S > 1/2$ -Spinsystems einfach durch Multiplikation der Curie-Temperaturen der hier näher untersuchten $S = 1/2$ -Systeme mit dem entsprechenden Faktor. Deshalb wird in der weiteren Diskussion weitgehend darauf verzichtet, explizit Ergebnisse für Systeme mit $S > 1/2$ zu diskutieren.

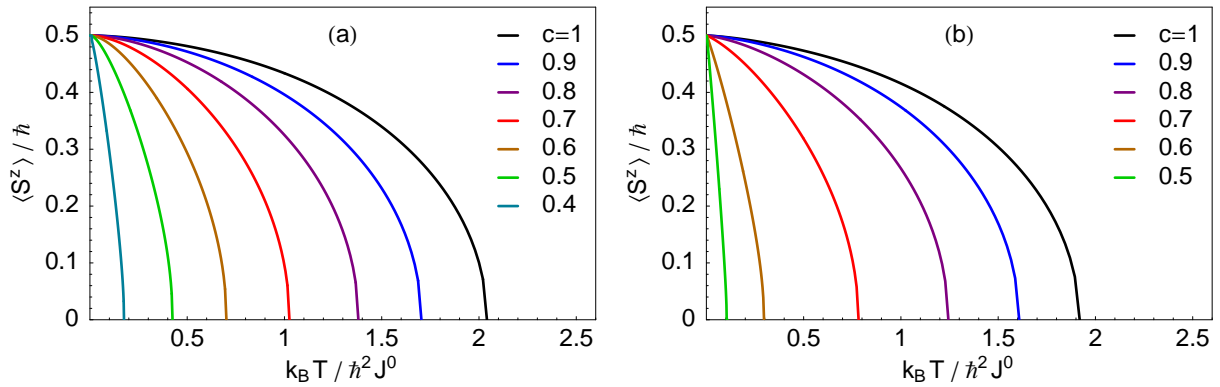


Abbildung 5.7: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ in Abhängigkeit von der Temperatur T für verschiedene Konzentrationen c und $S = 1/2$. (a) mittels Φ nach Gleichung (5.24), (b) mittels Φ nach Gleichung (5.22).

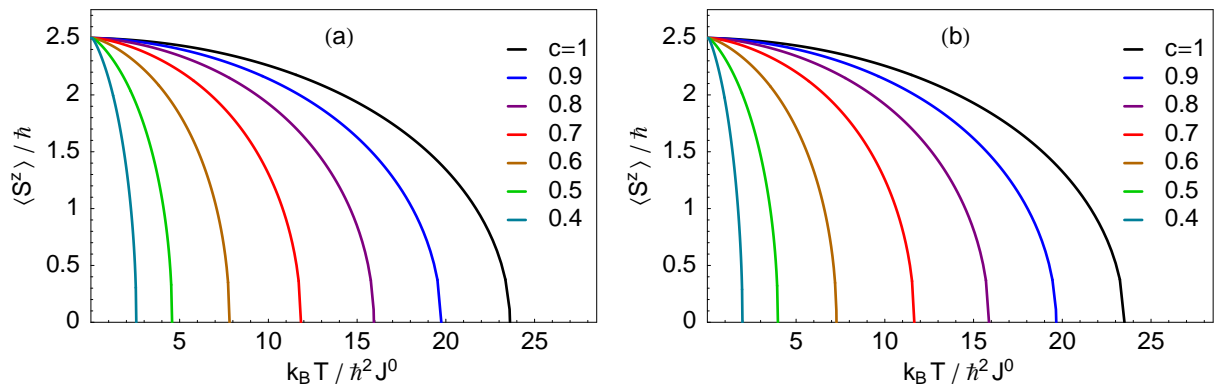


Abbildung 5.8: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ in Abhängigkeit von der Temperatur T für verschiedene Konzentrationen c und $S = 5/2$. (a) mittels Φ nach Gleichung (5.24), (b) mittels Φ nach Gleichung (5.22).

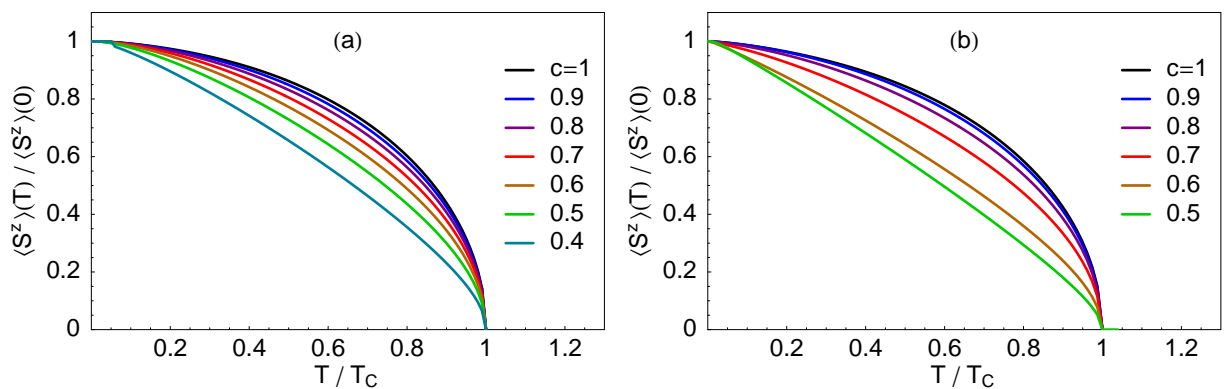


Abbildung 5.9: Die reduzierte Magnetisierung $\langle S^z \rangle / \langle S^z \rangle(T = 0)$ in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur T/T_C für verschiedene Konzentrationen c und $S = 1/2$. (a) mittels Φ nach Gleichung (5.24), (b) mittels Φ nach Gleichung (5.22).

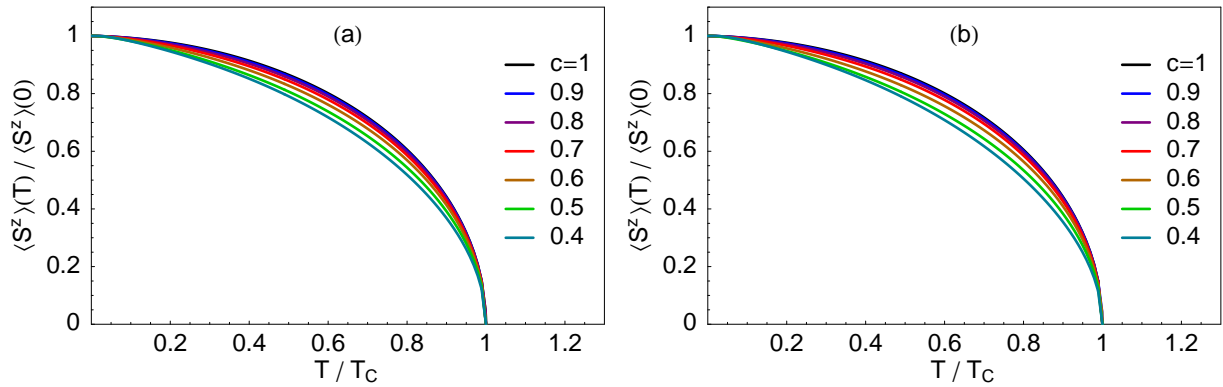


Abbildung 5.10: Die reduzierte Magnetisierung $\langle S^z \rangle / \langle S^z \rangle (T = 0)$ in Abhängigkeit von der reduzierten Temperatur T/T_C für verschiedene Konzentrationen c und $S = 5/2$. (a) mittels Φ nach Gleichung (5.24), (b) mittels Φ nach Gleichung (5.22).

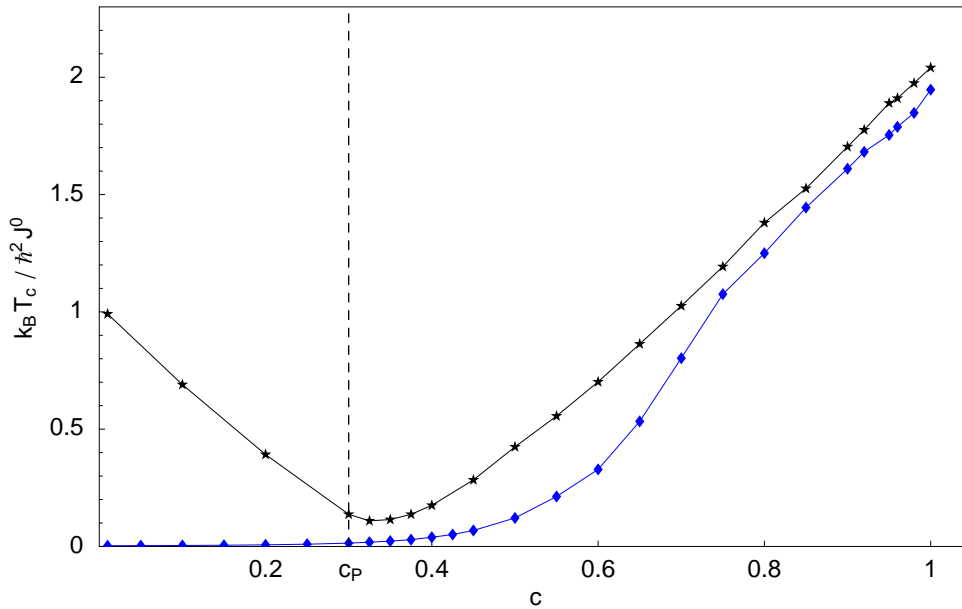


Abbildung 5.11: Die Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Konzentration c für den Fall $S = 1/2$ berechnet mittels Gleichung (5.25) (schwarze Linie) und mittels Gleichung (5.23) (blaue Linie). Die gestrichelte Linie kennzeichnet die kritische Perkolationskonzentration $c_p \approx 0.3$.

sierung wurde sowohl mit Hilfe von Gleichung (5.24), als auch mit Hilfe von Gleichung (5.22) aus den Eigenwerten E_r^ξ von $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ berechnet. Für die dargestellten Konzentrationen zeigen beide Berechnungsmethoden mit zunehmender Verdünnung eine deutliche Abnahme der Temperatur, oberhalb derer keine spontane Magnetisierung mehr auftritt. Dabei liegt die nach Gleichung (5.24) berechnete Magnetisierung etwas höher als die mittels Gleichung (5.22) berechnete. Aus den Abbildungen 5.9 und 5.10 ist ersichtlich, dass die reduzierte Magnetisierung $\langle S^z \rangle / \langle S^z \rangle (T = 0)$

als Funktion der reduzierten Temperatur T/T_C mit sinkender Konzentration immer geradliniger verläuft. Dieser Effekt ist für kleinere S etwas stärker. Ansonsten sind keine Auffälligkeiten bezüglich des Verlaufs der Magnetisierung festzustellen.

Die Abhängigkeit der Curie-Temperatur T_C von der Konzentration c ist in Abbildung 5.11 dargestellt. Die mittels Gleichung (5.25) berechnete Curie-Temperatur zeigt für Konzentrationen oberhalb $c = 0.3$ einen nahezu geradlinigen Verlauf mit $T_C \propto (c - c_p)$. Unterhalb von c_p sinkt sie allerdings nicht auf Null sondern steigt für sinkende Konzentration nahezu geradlinig wieder an bis auf $T_C = \hbar^2 J^0$ bei $c = 0$. Dies ist ein Artefakt der Näherung, die darin besteht, dass in Gleichung (5.25) einfach alle Null-Eigenwerte, welche bei niedrigen Konzentration ein großes spektrales Gewicht haben, nicht berücksichtigt werden. Ein solches unphysikalisches Verhalten zeigt die mittels Gleichung (5.23) berechnete Curie-Temperatur nicht. Diese ist unterhalb der kritischen Perkulationskonzentration c_p praktisch Null, steigt oberhalb c_p zunächst langsam und dann schneller an, bis sie bei $c = 1$ einen Wert knapp unterhalb der mittels Gleichung (5.25) berechneten Curie-Temperatur erreicht.

Die beiden Gleichungen (5.25) und (5.23) zur Berechnung der Curie-Temperatur zeigen recht deutlich einen Wechsel im magnetischen Verhalten des Systems beim Durchlaufen der kritischen Perkulationskonzentration. Dieser Wechsel lässt sich zwar nicht exakt bei einer Konzentration festmachen, da den hier diskutierten Berechnungen endliche Systeme zu Grunde liegen, er ist aber bereits auf einen sehr engen Bereich um die Perkulationskonzentration eingeschränkt. Oberhalb der kritischen Perkulationskonzentration liefern die beiden Näherungen (5.25) und (5.23) vergleichbare Werte für die Curie-Temperatur. Da die Näherung (5.25) jedoch für Konzentrationen unterhalb der kritischen Perkulationskonzentration unphysikalisches Verhalten für die Curie-Temperatur zeigt, ist die Näherung (5.23) vorzuziehen.

5.6 Langreichweitige ferromagnetische Wechselwirkung

Um auch bei niedrigen Konzentrationen im hier verwendeten verdünnten Heisenberg-Modell Ferromagnetismus zu erhalten, muss die Reichweite der Austauschwechselwirkung mindestens so groß sein, dass die mit der Reichweite zusammenhängende kritische Perkulationskonzentration noch unterhalb der untersuchten Konzentration liegt. Im Extremfall einer ferromagnetischen Austauschwechselwirkung mit unbegrenzter Reichweite ist somit eine endliche Curie-Temperatur für alle Konzentrationen $c > 0$ zu erwarten. „Unbegrenzte Reichweite“ bedeutet hier, dass die Austauschparameter $J(\mathbf{R})$ zwischen Spins mit Abstand \mathbf{R} für alle Abstände größer als Null sind. Zur Untersuchung der Effekte der Verdünnung auf Spinsysteme mit langreichweitiger ferroma-

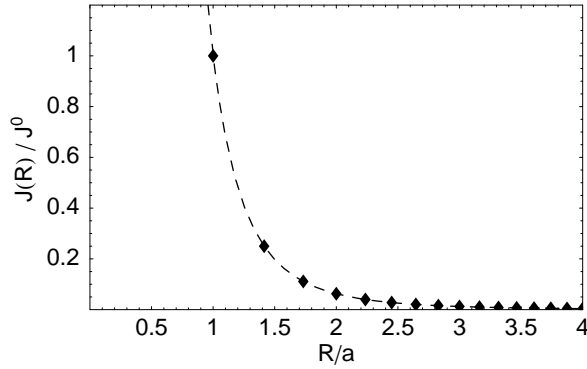


Abbildung 5.12: Die durch Gleichung (5.26) gegebene Austauschwechselwirkung J als Funktion des Abstandes R zwischen den Spins.

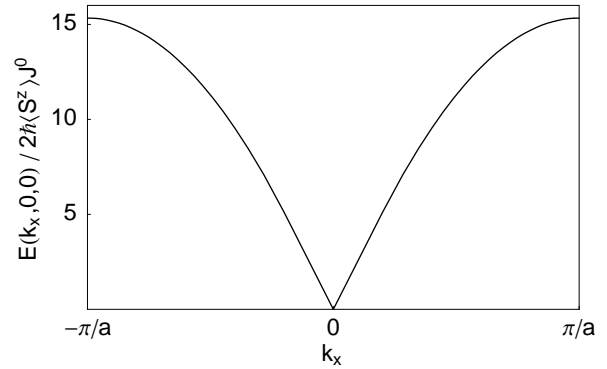


Abbildung 5.13: Die Magnondispersion entlang der k_x -Achse für das konzentrierte Spinsystem auf einem einfach-kubischen Gitter mit durch Gleichung (5.26) gegebenen Austauschparametern.

gnetischer Wechselwirkung mit den hier vorgestellten numerischen Methoden wird zunächst für die Austauschparameter

$$J(\mathbf{R}) = \begin{cases} J^0 \left(\frac{a}{|\mathbf{R}|}\right)^{-4} & a \leq |\mathbf{R}| \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} \quad (5.26)$$

gewählt, wobei a den Abstand und J^0 die Stärke des Austausches zwischen Nächsten Nachbarn bezeichnet (Abbildung 5.12). Die Austauschparameter sind für alle Abstände größer als Null; damit ist die Wechselwirkung zwischen den Spins immer ferromagnetisch. Jedoch fällt die Funktion (5.26) mit dem Abstand $|\mathbf{R}|$ schnell genug ab, damit für das Spinsystem das Goldstone-Theorem [73, 74] gilt. Hingegen sind durch (5.26) die Voraussetzungen für das Mermin-Wagner-Theorem [98], welches unter anderem für das isotrope Heisenberg-Modell in ein- und zweidimensionalen Systemen mit hinreichend schnell abfallenden Austauschparametern eine spontane Magnetisierung ausschließt, nicht mehr erfüllt. Die Langreichweitigkeit der Wechselwirkung kommt auch in der Dispersionsrelation der Magnonen im konzentrierten Spinsystem zum Tragen: Diese ist für kleine Wellenvektoren nicht quadratisch wie bei Systemen mit Wechselwirkung begrenzter Reichweite, sondern linear. Ebenso manifestiert sich die Langreichweitigkeit in der Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$, welche in Abbildung 5.14 dargestellt ist. Dort steigt für $c = 1$ die Spektraldichte \tilde{S}_{ii} für kleine Energien quadratisch mit der Energie. Für eine Austauschwechselwirkung mit begrenzter Reichweite, wie im Beispiel des letzten Abschnittes, wäre der Verlauf immer wurzelförmig. Den quadratischen Anstieg für kleine Energien behält die Spektraldichte auch für $c < 1$ bei. Ein weiterer Unterschied zu den Systemen mit kurzreichweitiger Wechselwirkung im letzten Abschnitt ist, dass die Spektraldichte selbst bei niedrigen Konzentrationen einen relativ

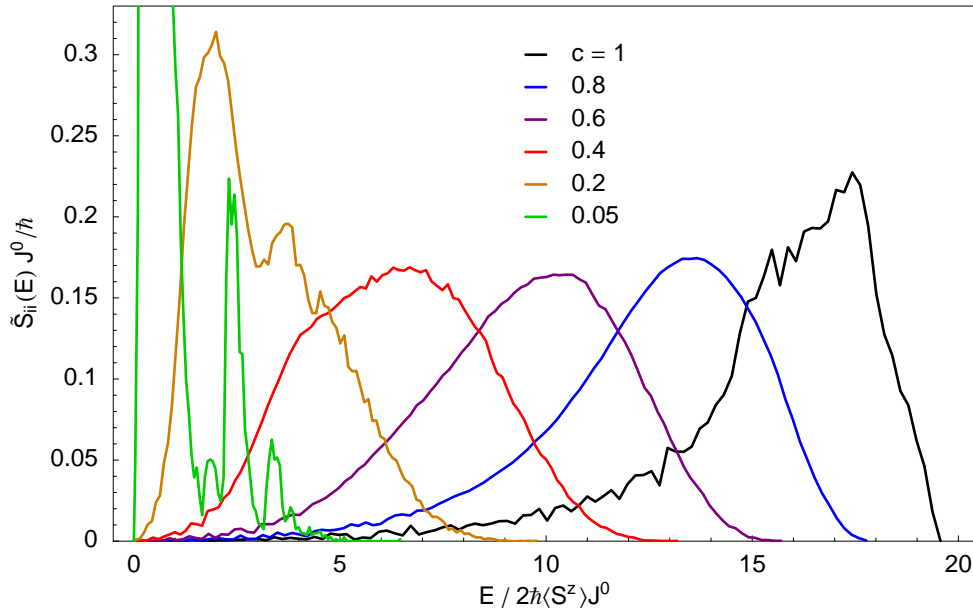


Abbildung 5.14: Die Spektraldichten $\tilde{S}_{ii}(E)$ für verschiedene Konzentrationen c für eine langreichweitige ferromagnetische Austauschwechselwirkung der Form (5.26). Dazu wurden für jede Konzentration 5 bis 8 Konfigurationen mit je 8 000 bis 12 000 Spins berechnet.

glatten Verlauf hat und keine scharfen Peaks zu beobachten sind. Dies ist darauf zurückzuführen, dass wegen der Langreichweitigkeit der Wechselwirkung für alle Konzentrationen keine kleinen isolierten Cluster existieren, sondern nur ein großer unendlich ausgedehnter Cluster.

Das Fehlen einer kritischen Perkolkationskonzentration wird auch am Verlauf der Curie-Temperatur als Funktion der Konzentration deutlich, welche in Abbildung 5.16 dargestellt ist. Bis hinunter zu $c = 0$ ist die Curie-Temperatur linear in der Konzentration. Somit existiert bei niedrigen Temperaturen auch für sehr geringe Konzentrationen der lokalisierten magnetischen Momente im System eine ferromagnetische Phase.

Die scheinbar perfekte lineare Abhängigkeit der Curie-Temperatur von der Konzentration ist eine Besonderheit der durch Gleichung (5.26) gegebenen Wechselwirkung. In Abbildung 5.17 ist die Curie-Temperatur als Funktion der Konzentration für ein Spinsystem auf einem einfach-kubischen Gitter mit

$$J(\mathbf{R}) = \begin{cases} J^0 \exp\left(1 - \frac{|\mathbf{R}|^2}{a^2}\right) & a \leq |\mathbf{R}| \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} \quad (5.27)$$

dargestellt. Die Curie-Temperatur für das System mit der Wechselwirkung verläuft dort nicht linear für sehr kleine Konzentrationen. Jedoch unterstützt die Abbildung die These, dass für alle

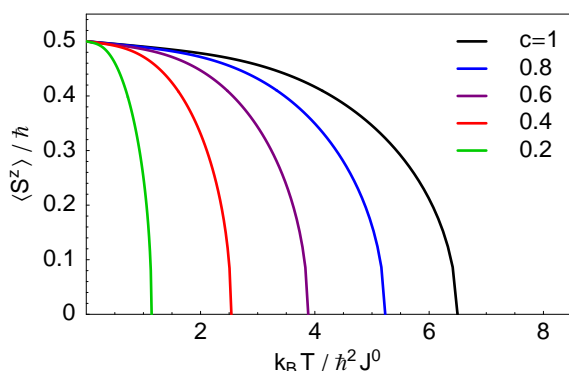


Abbildung 5.15: Die Magnetisierung $\langle S^z \rangle$ in Abhängigkeit von der Konzentration c für langreichweitige ferromagnetische Austauschwechselwirkung (5.26) und $S = 1/2$ (berechnet mittels Φ nach Gleichung (5.22)).

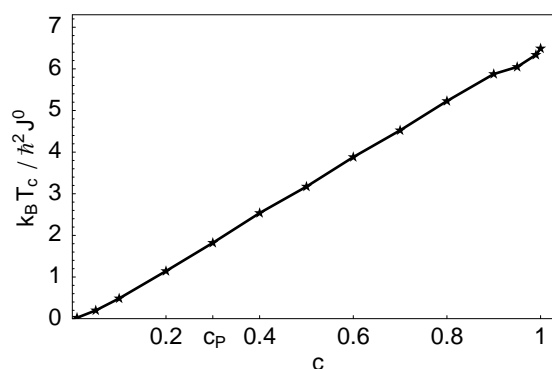


Abbildung 5.16: Die Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Konzentration c für langreichweitige ferromagnetische Austauschwechselwirkung (5.26) und $S = 1/2$ (berechnet mittels Gleichung (5.23)).

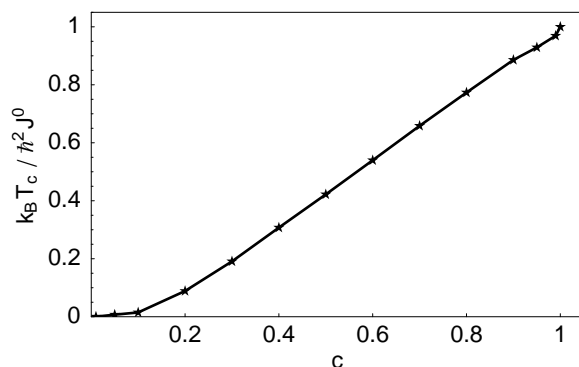


Abbildung 5.17: Die Curie-Temperatur T_C in Abhängigkeit von der Konzentration c für langreichweitige ferromagnetische Austauschwechselwirkung der Form (5.27) und $S = 1/2$ (berechnet mittels Gleichung (5.23)).

Formen einer langreichweitigen ferromagnetischen Austauschwechselwirkung, also für Systeme mit $J(|\mathbf{R}|) > 0$ für alle $|\mathbf{R}| \neq 0$, bei allen Konzentrationen $c > 0$ eine Curie-Temperatur $T_C > 0$ hat.

Um den Übergang von Systemen mit kurzreichweitiger Wechselwirkung zu Systemen mit langreichweitiger Wechselwirkung zu betrachten, wird im Folgenden die langreichweitige Austauschwechselwirkung (5.26) für Abstände größer als $\sqrt{n}a$, also oberhalb der n -ten Schale, abgeschnitten:

$$J(\mathbf{R}) = \begin{cases} J^0 \left(\frac{a}{|\mathbf{R}|} \right)^{-4} & a \leq |\mathbf{R}| \leq \sqrt{n}a \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} \quad (5.28)$$

Wird $n = 1$ gewählt, so erhält man Nächste-Nachbar-Wechselwirkung wie im letzten Abschnitt. Wählt man $n = 2$, so erstreckt sich die Wechselwirkung auch auf Übernächste Nachbarn. Wählt man hingegen $n = \infty$, so erhält man wieder die Wechselwirkung (5.26) mit unbegrenzter Reich-

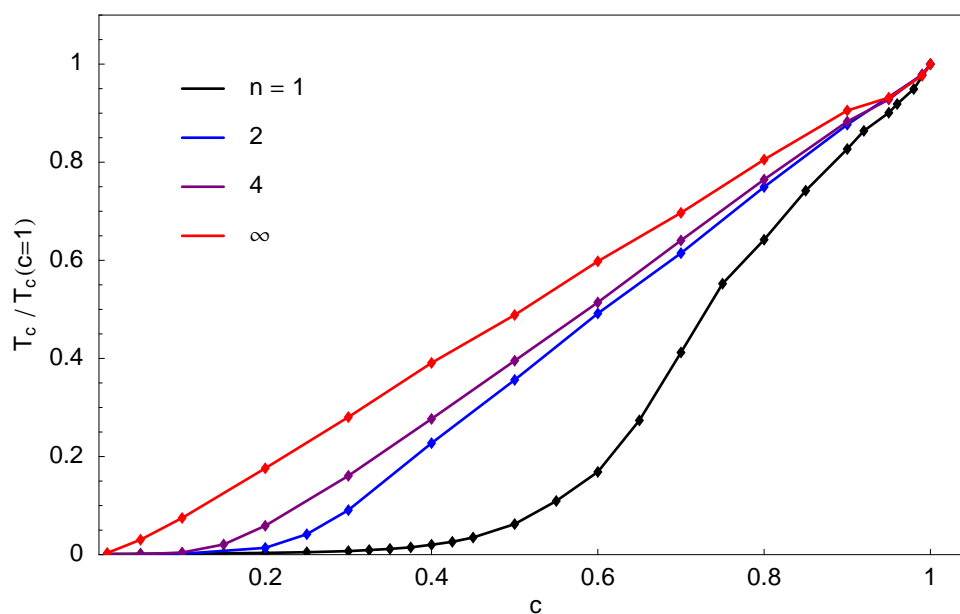


Abbildung 5.18: Die reduzierte Curie-Temperatur in Abhängigkeit von der Konzentration c für verschiedene Reichweiten n der Austauschwechselwirkung (5.28) auf einem einfach-kubischen Gitter berechnet mittels Gleichung (5.23).

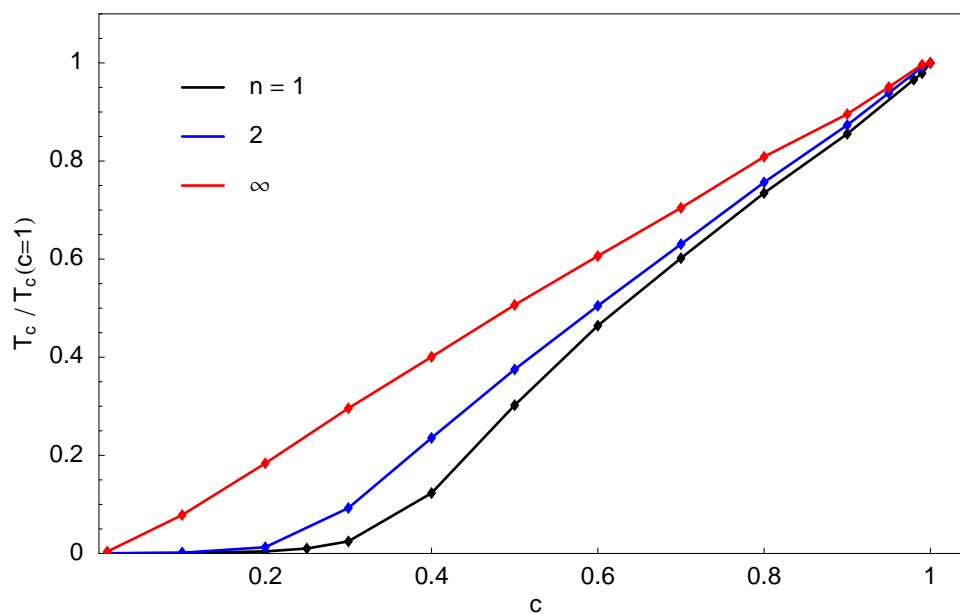


Abbildung 5.19: Die reduzierte Curie-Temperatur in Abhängigkeit von der Konzentration c für verschiedene Reichweiten n der Austauschwechselwirkung (5.28) auf einem fcc-Gitter berechnet mittels Gleichung (5.23).

weite. Da für $c = 1$ die Curie-Temperaturen für verschiedene Parameter n verschieden sind, wird zum Vergleich die reduzierte Curie-Temperatur $T_C^{\text{red}}(c) = T_C(c)/T_C(c = 1)$ verwendet. Diese ist in Abbildung 5.18 für verschiedene Werte n dargestellt. Dort ist deutlich zu erkennen, wie sich die minimale Konzentration, bei der noch eine merklich von Null verschiedene Curie-Temperatur auftritt, für größere n zu kleineren Konzentrationen verschiebt. Während für $n = 1$ keine endliche Curie-Temperatur für Konzentrationen unterhalb $c \approx 0.3$ zu finden ist, hat man für $n = 2$ bereits eine endliche Curie-Temperatur oberhalb von $c \approx 0.15$ und für $n = 4$ oberhalb von $c \approx 0.05$. Für Materialien mit Konzentrationen unterhalb von $c = 0.05$ für die lokalisierten magnetischen Momente auf einem einfach-kubischen Gitter bedeutet dieses Ergebnis, dass in einer sinnvollen Beschreibung der magnetischen Eigenschaften dieser Materialien die Austauschwechselwirkung für Abstände über $2a$, also über die vierte Schale hinaus, mit einbezogen werden müssen.

Für andere Gittertypen lassen sich die qualitativen Ergebnisse des einfach-kubischen (sc-) Gitters in Hinblick auf die Reichweite der Austauschwechselwirkung und die damit verbundene minimale Konzentration c_c , die für Ferromagnetismus im System notwendig ist, übertragen. Um dies zu illustrieren, ist die reduzierte Curie-Temperatur in Abhängigkeit von der Konzentration in der Abbildung 5.19 für Spinsysteme mit kubisch-flächenzentrierter (fcc-) Gitterstruktur und Austauschparametern (5.28) mit unterschiedlicher Reichweite n dargestellt. Für $n = 1$ ist die gegenüber dem sc-Gitter geringere minimale Konzentration, ab der die Curie-Temperatur merklich von Null verschieden ist, deutlich zu erkennen. Ursache dafür ist die höhere Koordinationszahl des fcc-Gitters gegenüber dem sc-Gitter. Bei der fcc-Gitterstruktur findet man für Nächste-Nachbar-Wechselwirkung ab Konzentrationen $c \approx 0.2$ eine von Null verschiedene Curie-Temperatur, was sehr gut mit der kritischen Perkolkationskonzentration $c_p = 0.2$ des fcc-Gitters [59] übereinstimmt.

5.7 Langreichweitige oszillierende Wechselwirkung

Bisher ist der Wechselwirkungsmechanismus zwischen den lokalisierten Momenten der Mangan-Atome in den ferromagnetischen DMS noch nicht vollständig aufgeklärt. Unter anderem wird in der Literatur [10] angenommen, dass die Wechselwirkung zwischen den Mangan-Momenten durch einen dem RKKY-Austausch ähnlichen Mechanismus vermittelt wird. Der RKKY-Austausch ist dadurch gekennzeichnet, dass er eine große Reichweite hat, aber nicht für alle Abstände zwischen Spins ferromagnetisch ist, sondern als Funktion des Abstandes vielfach das Vorzeichen wechselt. Daher sollen nun Systeme mit einer Austauschwechselwirkung

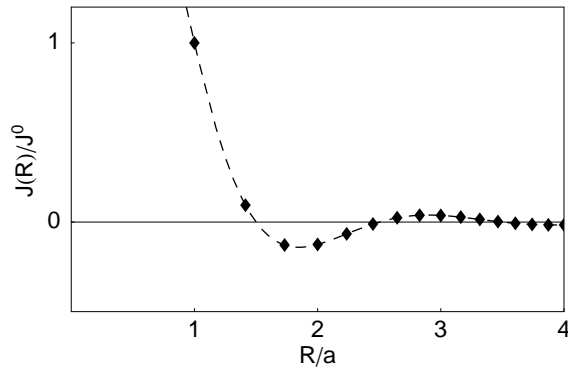


Abbildung 5.20: Die durch Gleichung (5.29) gegebene Austauschwechselwirkung J als Funktion des Abstandes R zwischen den Spins.

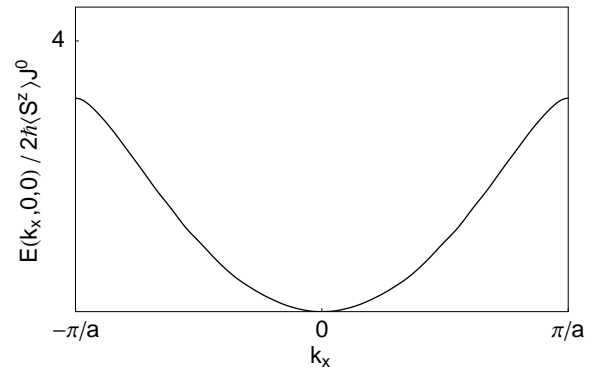


Abbildung 5.21: Die Magnondispersion entlang der k_x -Achse für das konzentrierte Spinsystem auf einem einfach-kubischen Gitter mit durch Gleichung (5.29) gegebenen Austauschparametern.

der Form

$$J(\mathbf{R}) = \begin{cases} J^0 \left(\frac{|\mathbf{R}|}{a}\right)^{-3} \cos\left(\pi\left(\frac{|\mathbf{R}|}{a} - 1\right)\right) & a \leq |\mathbf{R}| \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} \quad (5.29)$$

untersucht werden, wobei a den Abstand und J^0 die Stärke des Austausches zwischen Nächsten Nachbarn bezeichnet. Die Abstandsabhängigkeit dieser Austauschwechselwirkung ist in Abbildung 5.20 dargestellt. Die Wechselwirkung zwischen den Spins ist ferromagnetisch für Nächste und Übernächste Nachbarn, jedoch antiferromagnetisch für Dritt- bis Sechsnächste Nachbarn. Für das konzentrierte Spinsystem auf einem einfach-kubischen Gitter ergibt sich die in Abbildung 5.21 dargestellte Dispersionsrelation für die Magnonen.

In Abbildung 5.22 sind die aus der Wechselwirkung (5.29) resultierenden Spektraldichten $\tilde{S}_{ii}(E)$ für verschiedene Konzentrationen c dargestellt. Während für $c = 1$ die Spektraldichte für Energien $E < 0$ verschwindet, treten bei Konzentrationen $c \leq 0.8$ bereits deutlich nichtverschwindende Anteile bei negativen Energien auf. Bei einer Konzentration von $c = 0.2$ hat bereits knapp die Hälfte aller elementaren Anregungen eine negative Energie. Für solche Systeme kann mit der Tyablikov-Näherung keine spontane Magnetisierung mehr berechnet werden. Die Tyablikov-Näherung setzt nämlich voraus, dass der Grundzustand des Systems der total ausgerichtete Zustand $|S\rangle = |\langle S_i^z \rangle = S \forall i \in \{1, \dots, N\}\rangle$ ist. Wenn dies nicht der Fall ist, ergibt die Tyablikov-Näherung Anregungen mit negativen Anregungsenergien, welche den Zustand $|S\rangle$ instabil werden lassen. Für Systeme mit einer räumlich oszillierenden Austauschwechselwirkung (5.29) können bei Konzentrationen $c < 1$ lokale Konfigurationen auftreten, in denen bei einigen Spins die antiferromagnetische Kopplung zu den übrigen Spins überwiegt. Diese Spins bevorzugen dann eine

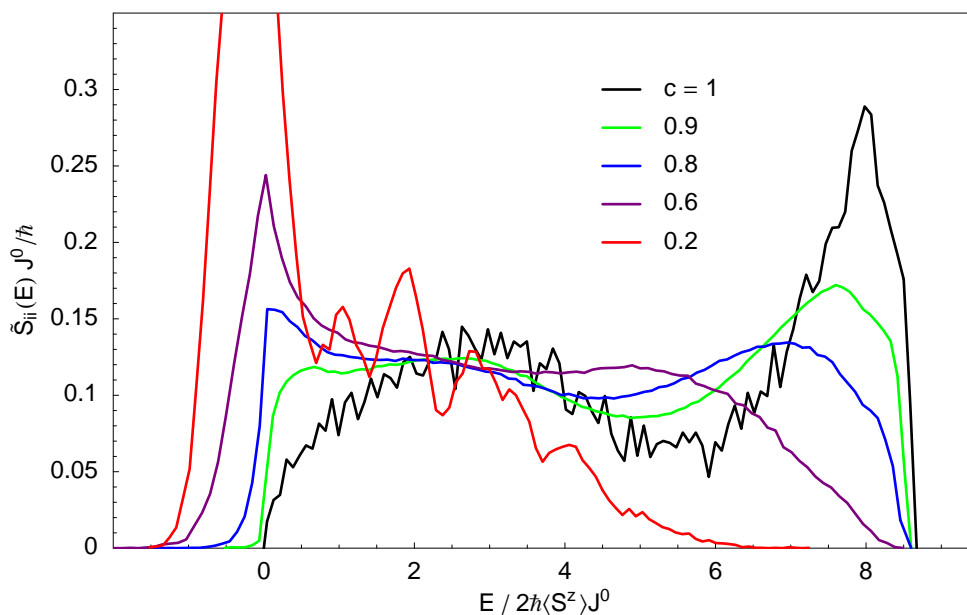


Abbildung 5.22: Die Spektraldichten $\tilde{S}_{ii}(E)$ für verschiedene Konzentrationen c für langreichweitige stark oszillierende Austauschwechselwirkung (5.29). Es wurden für jede Konzentration 5 bis 8 Konfigurationen mit je 8 000 bis 12 000 Spins berechnet.

antiparallele Ausrichtung zu den übrigen Spins und damit ist der Zustand $|S\rangle$ nicht mehr der Grundzustand des Systems. Bei hohen Konzentrationen mag dies in endlichen Systemen praktisch keine Rolle spielen, bei einer so stark oszillierenden Wechselwirkung wie (5.29) ist dieser Effekt jedoch bereits bei mittleren Konzentrationen nicht mehr vernachlässigbar. Insbesondere kann für Systeme, die bei sehr geringen Konzentrationen Ferromagnetismus zeigen, ausgeschlossen werden, dass in diesen Systemen die Austauschwechselwirkung so stark oszilliert wie die Wechselwirkung (5.29).

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschäftigte sich mit der Untersuchung magnetischer Eigenschaften von verdünnten Spinsystemen. Ein Hauptgrund für die Wahl des Themas war das derzeit bestehende große materialwissenschaftliche Interesse an der Theorie ferromagnetischer verdünnter magnetischer Halbleiter (DMS). Insbesondere ist für diese Klasse von Materialien noch nicht hinreichend geklärt, ob sie auch Curie-Temperaturen oberhalb der Raumtemperatur aufweisen können.

Da der Magnetismus in DMS von lokalisierten magnetischen Momenten getragen wird, stellte das Heisenberg-Modell den Ausgangspunkt der Betrachtungen dar. Dieses Modell, wie auch alle dafür bisher bekannten Näherungslösungen, wurde jedoch ursprünglich für konzentrierte Spinsysteme entwickelt. Deshalb beschäftigte sich das zweite Kapitel dieser Arbeit zunächst mit verschiedenen Ansätzen zur Verallgemeinerung des Heisenberg-Modells auf verdünnte Spinsysteme. Dabei erwies sich die Tyablikov-Näherung in Verbindung mit der in Abschnitt 2.3 vorgestellten Methode der Besetzungsindikatoren als am besten geeignet hinsichtlich einer späteren Konfigurationsmittelung. Letztere stand im Mittelpunkt der beiden folgenden Kapitel 3 und 4. Während sich Kapitel 3 mit den Grundlagen der Konfigurationsmittelung befasste, fand diese in Kapitel 4 konkrete Anwendung. Hierbei zeigte sich, dass die in Abschnitt 4.2 diskutierte Virtual-Crystal Approximation (VCA), welche die einfachste Näherung zur Konfigurationsmittelung darstellt, das magnetische Verhalten verdünnter Spinsysteme – insbesondere bei niedrigen Konzentrationen – nur unzureichend beschreibt. Bessere Ergebnisse ergeben sich hingegen bei Verwendung einer quadratischen Näherung [47], welche in Abschnitt 4.3 diskutiert wurde. Beispielsweise erfüllt diese Näherung die aus der Perkolationstheorie bekannte Tatsache, dass bei Modellen mit begrenzter Reichweite der Wechselwirkung keine spontane Magnetisierung unterhalb einer kritischen Konzentration auftritt. Dies wird von der VCA nicht geleistet, da dort die Curie-Temperatur grundsätzlich linear von der Konzentration abhängt. Die quadratische Näherung scheint auch den anderen im Kapitel

4 vorgestellten Näherungen überlegen. Allein die in Abschnitt 4.6 erwähnte Kumulantenentwicklung [44, 54, 64–67] könnte eine noch bessere Beschreibung liefern; diese erfordert jedoch sowohl einen höheren analytischen als auch numerischen Aufwand.

Gegenstand des fünften Kapitels bildeten numerische Untersuchungen von Spinsystemen endlicher Größe. Gegenüber Methoden der Konfigurationsmittelung besitzt die numerische Analyse den Vorteil, dass sie bezüglich der durch die Verdünnung auftretenden Substitutionsunordnung nicht auf Näherungen angewiesen ist. Für Spinsysteme mit einer kurzreichweitigen ferromagnetischen Austauschwechselwirkung, die ausschließlich zwischen Nächsten Nachbarn wirkt, ergab sich aus den Modellrechnungen, dass unterhalb der von der Gitterstruktur abhängigen kritischen Perkolkationskonzentration keine spontane Magnetisierung auftritt. Erweitert man hingegen sukzessive die Reichweite der Austauschwechselwirkung, so verschiebt sich die minimale Konzentration, oberhalb derer noch eine endliche Curie-Temperatur zu finden ist, zu immer kleineren Werten. Im Spezialfall einer Wechselwirkung mit unbegrenzter Reichweite zeigen Spinsysteme eine nichtverschwindende Curie-Temperatur bei beliebigen positiven Konzentrationen. Diese Ergebnisse bedeuten beispielsweise, dass es für die theoretische Beschreibung von Materialien, die Ferromagnetismus bei einer geringen Konzentration magnetischer Atome von etwa fünf Prozent zeigen, *nicht* ausreicht, lediglich die Austauschwechselwirkung zwischen Nächsten Nachbarn zu berücksichtigen.

Weiterhin wurden in Kapitel 5 Systeme mit einer langreichweitigen Wechselwirkung untersucht, welche bei bestimmten Abständen zwischen den Spins ferromagnetisch, bei anderen Abständen hingegen antiferromagnetisch ist. Für derartige Systeme konnte mit den verwendeten numerischen Methoden bei endlicher Verdünnung allerdings keine spontane Magnetisierung oder Curie-Temperatur identifiziert werden, selbst wenn das korrespondierende konzentrierte Spinsystem eine spontane Magnetisierung zeigt. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass bei solchen Systemen die Verdünnung dazu führt, dass der Grundzustand nicht mehr ferromagnetisch ist. Ein ferromagnetischer Grundzustand ist jedoch eine Voraussetzung für die Anwendbarkeit der in dieser Arbeit verwendeten Methoden.

In dieser Diplomarbeit wurde eine eventuell vorhandene Magnetisierungs- und Temperaturabhängigkeit der Austauschparameter nicht berücksichtigt. Derartige Abhängigkeiten sind charakteristisch für ferromagnetische DMS, da in diesen Materialien der Austausch zwischen den lokalisierten magnetischen Momenten durch itinerante Ladungsträger vermittelt wird. Die hier für das Heisenberg-Modell vorgestellten Methoden zur Beschreibung verdünnter Spinsysteme könnten jedoch dahingehend erweitert werden. Zum Beispiel könnte eine selbstkonsistente Bestimmung

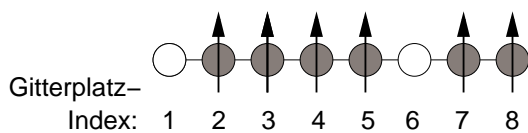
der Austauschparameter aus den Eigenschaften eines an die lokalisierten Momente gekoppelten elektronischen Systems in die Berechnung der magnetischen Eigenschaften einbezogen werden [99,100]. Zieht man dafür die in Kapitel 5 vorgestellten numerischen Methoden in Betracht, so böte es sich an, diese vorher in Bezug auf die Geschwindigkeit der numerischen Rechnungen zu optimieren. Beispielsweise könnte die Bestimmung der Eigenwerte der Hamilton-Matrix durch die Verwendung spezieller Algorithmen, welche auf dem Negative-Eigenwerte-Theorem [92,93] basieren, beschleunigt werden. Ferner könnten Effekte einer chemischen Nahordnung, wie sie in ferromagnetischen DMS vermutet wird [81], in zukünftigen Modellrechnungen berücksichtigt werden.

Anhang A

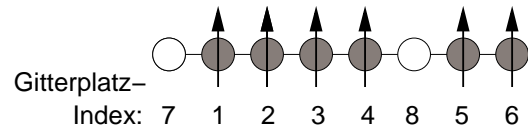
Umordnen der Gitterplatzindizes

Im folgenden wird die in Kapitel 2 verwendete alternative Nummerierung der Gitterplätze an einem einfachen Beispiel erläutert. Gegeben sei ein *Kristallgitter* bestehend aus einer Kette von acht Gitterplätzen, die wie üblich der Reihe nach durchnummeriert seien (siehe Abbildung A.1(a)). Die Gitterplätze 2 bis 5 sowie 7 und 8 seien mit einem Spin besetzt, die Plätze 1 und 6 hingegen nicht. Für die Austauschwechselwirkung zwischen den Spins gelte:

$$J_{ij} = \begin{cases} J^{|i-j|} & 1 \leq |i-j| \leq 3 \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} . \quad (\text{A.1})$$



(a) normale Indizierung



(b) Indizierung nach Umordnen

Abbildung A.1: Ein System von sechs Spins auf einem Kristall mit acht Gitterplätzen. In (a) sind alle Gitterplätze der Reihe nach durchnummeriert. In (b) haben zuerst alle besetzten Gitterplätze und dann die unbesetzten Gitterplätze ihren Index erhalten.

Damit ist die in der Bewegungsgleichung (2.56) vorkommende Matrix **PJP**:

$$\begin{array}{r}
 \text{Gitterplatz-Index:} \\
 \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \\
 \mathbf{PJP} = \begin{pmatrix}
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & J^1 & J^2 & J^3 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & J^1 & 0 & J^1 & J^2 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & J^2 & J^1 & 0 & J^1 & 0 & J^3 & 0 \\
 0 & J^3 & J^2 & J^1 & 0 & 0 & J^2 & J^3 \\
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 0 & J^3 & J^2 & 0 & 0 & J^1 \\
 0 & 0 & 0 & 0 & J^3 & 0 & J^1 & 0
 \end{pmatrix} \begin{array}{l} \leftarrow 1 \\ \leftarrow 2 \\ \leftarrow 3 \\ \leftarrow 4 \\ \leftarrow 5 \\ \leftarrow 6 \\ \leftarrow 7 \\ \leftarrow 8 \end{array}
 \end{array} \quad (\text{A.2})$$

Nun wird eine neue Nummerierung der Gitterplätze verwendet, bei der zuerst alle besetzten Gitterplätze nummeriert werden und anschließend die unbesetzten (Abbildung A.1(b)). Danach hat **PJP** folgende Gestalt:

$$\begin{array}{r}
 \text{alter Index:} \\
 \text{neuer Index:} \\
 \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \downarrow \\
 \mathbf{PJP} = \begin{pmatrix}
 0 & J^1 & J^2 & J^3 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 J^1 & 0 & J^1 & J^2 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 J^2 & J^1 & 0 & J^1 & J^3 & 0 & 0 & 0 \\
 J^3 & J^2 & J^1 & 0 & J^2 & J^3 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & J^3 & J^2 & 0 & J^1 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 0 & J^3 & J^1 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\
 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0
 \end{pmatrix} \begin{array}{l} \leftarrow 1 \\ \leftarrow 2 \\ \leftarrow 3 \\ \leftarrow 4 \\ \leftarrow 5 \\ \leftarrow 6 \\ \leftarrow 7 \\ \leftarrow 8 \end{array}
 \end{array} \quad \begin{array}{l} \text{neu:} \\ \text{alt:} \\ 1 \ 2 \\ 2 \ 3 \\ 3 \ 4 \\ 4 \ 5 \\ 5 \ 7 \\ 6 \ 8 \\ 7 \ 1 \\ 8 \ 6 \end{array} \quad (\text{A.3})$$

Gegenüber der Matrix (A.2) sind die Zeilen und Spalten neu angeordnet. Damit lässt sich **PJP** folgendermaßen in Blöcke aufteilen:

$$\mathbf{PJP} = \begin{pmatrix} \mathbf{J}^{11} & \mathbf{J}^{10} \\ \mathbf{J}^{01} & \mathbf{J}^{00} \end{pmatrix} \quad (\text{A.4})$$

mit

$$\mathbf{J}^{11} = \begin{pmatrix} 0 & J^1 & J^2 & J^3 & 0 & 0 \\ J^1 & 0 & J^1 & J^2 & 0 & 0 \\ J^2 & J^1 & 0 & J^1 & J^3 & 0 \\ J^3 & J^2 & J^1 & 0 & J^2 & J^3 \\ 0 & 0 & J^3 & J^2 & 0 & J^1 \\ 0 & 0 & 0 & J^3 & J^1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{J}^{10} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (\text{A.5})$$

$$\mathbf{J}^{01} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \mathbf{J}^{00} = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 0 \end{pmatrix}.$$

Eine derartige Blockform ergibt sich bei der alternativen Nummerierung auch für die anderen in der Bewegungsgleichung (2.56) vorkommenden Matrizen.

Anhang B

Fourier-Transformationen

Für eine Konfiguration \mathcal{K} sei das Störpotential im Ortsraum gegeben als:

$$V_{ij} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} \rho_n - \rho_j J_{ij} . \quad (\text{B.1})$$

Dabei indizieren i und j die Gitterplätze, von denen es insgesamt N gibt. Die Austauschparameter sind translationsinvariant:

$$J_{ij} = J(\mathbf{R}_i - \mathbf{R}_j) . \quad (\text{B.2})$$

Dabei ist \mathbf{R}_i der Gittervektor des i -ten Gitterplatzes. Die modifizierten Besetzungsindikatoren sind gegeben durch

$$\rho_i = p - c \quad (\text{B.3})$$

mit den Besetzungsindikatoren

$$p_i = \begin{cases} 1 & \text{Gitterplatz } i \text{ besetzt} \\ 0 & \text{Gitterplatz } i \text{ unbesetzt} \end{cases} . \quad (\text{B.4})$$

Nun soll die Fourier-Transformierte

$$V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} = \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} V_{ij} e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \quad (\text{B.5})$$

des Störpotentials V_{ij}^ξ berechnet werden. Als Ausgangspunkt hat man die Fourier-Transformierte der modifizierten Besetzungsindikatoren

$$\rho_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N} \sum_i e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} \rho_i \quad (\text{B.6})$$

und die Fourier-Transformierte der Austauschparameter

$$J_{\mathbf{k}} = \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} J_{ij} = \sum_i e^{-i\mathbf{k}\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} J_{ij} . \quad (\text{B.7})$$

Für die Berechnung wird das Störpotential in die zwei Teile

$$V_{ij}^{(1)} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} \rho_n \quad \text{und} \quad V_{ij}^{(2)} = \rho_j J_{ij} \quad (\text{B.8})$$

zerlegt, für welche die Fourier-Transformierten separat berechnet werden:

$$\begin{aligned} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{(1)} &= \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} V_{ij}^{(1)} e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} \delta_{ij} \sum_n J_{in} \rho_n e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{in} e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}_i} J_{in} \rho_n \\ &= \frac{1}{N} \sum_n e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}_n} \rho_n \sum_i e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_n)} J_{in} \\ &= \frac{1}{N} \sum_n e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}_n} \rho_n J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \\ &= \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} \end{aligned} \quad (\text{B.9})$$

$$\begin{aligned} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{(2)} &= \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} V_{ij}^{(2)} e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \\ &= \frac{1}{N} \sum_{ij} e^{-i\mathbf{k}\cdot\mathbf{R}_i} \rho_i J_{ij} e^{i\mathbf{k}'\cdot\mathbf{R}_j} \\ &= \frac{1}{N} \sum_i e^{-i(\mathbf{k}-\mathbf{k}')\cdot\mathbf{R}_i} \rho_i \sum_j e^{-i\mathbf{k}'\cdot(\mathbf{R}_i-\mathbf{R}_j)} J_{ij} \\ &= \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} J_{\mathbf{k}'} \end{aligned} \quad (\text{B.10})$$

Insgesamt ergibt sich also:

$$\begin{aligned} V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'} &= V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{(1)} - V_{\mathbf{k}\mathbf{k}'}^{(2)} \\ &= \rho_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} (J_{\mathbf{k}-\mathbf{k}'} - J_{\mathbf{k}'}). \end{aligned} \quad (\text{B.11})$$

Anhang C

Cluster und Eigenwerte

Bei den in Kapitel 5 vorgestellten numerischen Methoden spielen die Eigenwerte der reduzierten Hamilton-Matrix eine wichtige Rolle. Im Folgenden sollen kurz einige in jenem Kapitel benutzte Aussagen über den Zusammenhang zwischen den Eigenwerten und den im Spinsystem vorhandenen Clustern näher erläutert werden. Dazu sei ein Spinsystem mit N von Spins besetzten Gitterplätzen gegeben. Die besetzten Gitterplätze werden zunächst mit $i = 1, \dots, N$ durchnummeriert. Für die Austauschparameter J_{ij} zwischen den Spins an den Gitterplätzen i und j gelte

$$J_{ii} = 0, \quad J_{ij} = J_{ji} \quad \text{und} \quad J_{ij} \geq 0 \quad \forall i, j = 1, \dots, N. \quad (\text{C.1})$$

Dies schränkt die Diskussion auf Systeme mit ferromagnetischer Wechselwirkung ein.

Mit Hilfe der Austauschparameter kann man den Begriff „Cluster“ genauer festlegen. Hierzu wird auf der Menge der Gitterplatzindizes folgende Äquivalenzrelation definiert:

$$\begin{aligned} i \sim j & \quad :\iff i = j \vee \\ & \quad J_{ij} \neq 0 \vee \\ & \quad \exists k, l, \dots, w \in \{1, \dots, N\} : J_{ik} \neq 0 \wedge J_{kl} \neq 0 \wedge \dots \wedge J_{wj} \neq 0. \end{aligned} \quad (\text{C.2})$$

Die Äquivalenzklassen

$$i_{\sim} := \{j \in \{1, \dots, N\} : j \sim i\}, \quad i \in \{1, \dots, N\} \quad (\text{C.3})$$

dieser Äquivalenzrelation werden *Cluster* genannt. Damit gibt es im System mindestens einen und maximal N verschiedene Cluster. Im Weiteren sei die Zahl der Cluster mit m bezeichnet.

Als nächstes soll gezeigt werden, dass man jedem Eigenwert \bar{E}_r , $r = 1, \dots, N$ der durch die Matrixelemente

$$\bar{H}_{ij} = \delta_{ij} \sum_n J_{in} - J_{ij} \quad (\text{C.4})$$

definierten reduzierten Hamilton-Matrix $\bar{\mathbf{H}}^\xi$ eindeutig ein Cluster zuordnen kann. Dazu werden zunächst die m verschiedenen Cluster folgender Maßen bezeichnet:

$$\begin{aligned} \mathcal{C}_1 &:= 1\sim \\ \mathcal{C}_2 &:= \min \{i \in \{1, \dots, N\} : i\sim \neq \mathcal{C}_1\sim \\ &\vdots \\ \mathcal{C}_m &:= \min \{i \in \{1, \dots, N\} : i\sim \neq \mathcal{C}_1 \wedge \dots \wedge i\sim \neq \mathcal{C}_{m-1}\sim \end{aligned} \quad (\text{C.5})$$

Die Nummerierung der besetzten Gitterplätze des Spinsystems kann man nun so wählen, dass

$$\forall \alpha \in \{1, \dots, m\} \quad \forall \beta \in \{\alpha + 1, \dots, m\} \quad \forall i \in \mathcal{C}_\alpha \quad \forall j \in \mathcal{C}_\beta \quad i < j, \quad (\text{C.6})$$

also die ersten Indizes die Gitterplätze des Clusters \mathcal{C}_1 bezeichnen, die nächsten Indizes die Gitterplätze von \mathcal{C}_2 und so weiter. Damit nimmt die reduzierte Hamilton-Matrix $\bar{\mathbf{H}}$ folgende Blockform an:

$$\bar{\mathbf{H}} = \begin{pmatrix} \bar{\mathbf{H}}^1 & \mathbf{0} & \dots & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \bar{\mathbf{H}}^1 & & \vdots \\ \vdots & & \ddots & \mathbf{0} \\ \mathbf{0} & \dots & \mathbf{0} & \bar{\mathbf{H}}^m \end{pmatrix}, \quad (\text{C.7})$$

wobei im Block $\bar{\mathbf{H}}^\alpha$ die Matrixelemente \bar{H}_{ij} mit $i, j \in \mathcal{C}_\alpha$ enthalten sind. Die Eigenvektoren

$$|r\rangle = \sum_{i=1}^N r_i |i\rangle, \quad r = 1, \dots, N \quad (\text{C.8})$$

von $\bar{\mathbf{H}}$ mit den Koordinaten

$$r_i^\xi = \langle i | r \rangle^\xi \quad (\text{C.9})$$

bezüglich der Gitterplatzbasis $\{|i\rangle\}$ können deshalb so gewählt werden, dass

$$\forall r \in \{1, \dots, N\} \quad \exists! \alpha \in \{1, \dots, m\} : \forall i \in \mathcal{C}_\alpha^C \quad r_i = 0, \quad (\text{C.10})$$

wobei \mathcal{C}_α^C das Komplement $\{1, \dots, N\} \setminus \mathcal{C}_\alpha$ von \mathcal{C}_α in der Menge $\{1, \dots, N\}$ der Gitterplatzindizes bezeichnet. Damit kann man jedem Eigenwert \bar{E}_r von $\bar{\mathbf{H}}$ mittels des zugehörigen Eigenvektors $|r\rangle$ einen der m verschiedenen Cluster zuordnen.

Als nächstes soll die Zahl der Null-Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}$ bestimmt werden. Aus der Definition (C.4) der Matrixelemente von $\bar{\mathbf{H}}$ folgt die Summenregel

$$\sum_{j=1}^N \bar{H}_{ij} = 0 \quad \forall i \in \{1, \dots, N\}. \quad (\text{C.11})$$

Zusammen mit (C.7) folgt aus der Summenregel (C.11), dass die Vektoren

$$|v^\alpha\rangle = \sum_{i=1}^N v_i^\alpha |i\rangle \quad \text{mit} \quad v_i^\alpha = \begin{cases} 1 & i \in C^\alpha \\ 0 & \text{andernfalls} \end{cases} \quad \alpha = 1, \dots, m \quad (\text{C.12})$$

Eigenvektoren von $\bar{\mathbf{H}}$ mit dem Eigenwert Null sind. Ferner sind alle $|v^\alpha\rangle$ zueinander orthogonal. Somit hat $\bar{\mathbf{H}}$ mindestens m Null-Eigenwerte.

Für einen beliebigen Vektor $|v\rangle = \sum_{i=1}^N v_i |i\rangle$ erhält man mittels (C.1) und (C.4) für den Erwartungswert

$$\langle v | \bar{\mathbf{H}} | v \rangle = \sum_{i,j=1}^N v_i^* \bar{H}_{ij} v_j = \frac{1}{2} \sum_{i,j=1}^N J_{ij} |v_i - v_j|^2 \geq 0. \quad (\text{C.13})$$

Daran kann man zunächst ablesen, dass $\bar{\mathbf{H}}$ positiv semidefinit ist und damit alle Eigenwerte \bar{E}_r nichtnegativ sind. Außerdem folgt daraus zusammen mit (C.1), (C.2), (C.3), (C.5) und (C.12), dass

$$\begin{aligned} \langle v | \bar{\mathbf{H}} | v \rangle = 0 & \stackrel{(\text{C.1}), (\text{C.13})}{\iff} \forall i, j \in \{1, \dots, N\} (J_{ij} = 0 \vee v_i = v_j) \\ & \stackrel{(\text{C.2}), (\text{C.3})}{\iff} \forall i \in \{1, \dots, N\} \forall j \in i \sim v_i = v_j \\ & \stackrel{(\text{C.5}), (\text{C.12})}{\iff} |v\rangle \in \text{span} \{|v^1\rangle, \dots, |v^m\rangle\}. \end{aligned} \quad (\text{C.14})$$

Somit existiert kein Null-Eigenvektor von $\bar{\mathbf{H}}$, der linear unabhängig zu den in (C.12) definierten Vektoren $|v^\alpha\rangle$ ist. Also hat $\bar{\mathbf{H}}$ keine weiteren Null-Eigenwerte, als jene, die zu den Eigenvektoren (C.12) gehören. *Damit ist die Zahl der Null-Eigenwerte von $\bar{\mathbf{H}}$ gleich der Zahl der Cluster des Spinsystems.*

Für Spinsysteme mit langreichweitiger ferromagnetischer Austauschwechselwirkung ist $J_{ij} > 0 \forall i, j = 1, \dots, N$. Damit bestehen solche Systeme aus einem einzigen Cluster. Somit hat die reduzierte Hamilton-Matrix $\bar{\mathbf{H}}$ genau einen Null-Eigenwert. In Kapitel 5 ergibt sich die gitterplatzgemittelte Spektraldichte $\tilde{S}_{ii}(E)$ in Abwesenheit eines externen Magnetfeldes aus den Eigenwerten \bar{E}_r von $\bar{\mathbf{H}}$ mittels

$$\tilde{S}_{ii}(E) = 2\hbar^2 \langle S^z \rangle \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \delta(E - 2\hbar \langle S^z \rangle \bar{E}_r). \quad (\text{C.15})$$

Somit hat die Energie $E = 0$ das spektrale Gewicht $g_0 = 1/N$. Daraus folgt, dass im Grenzfall eines unendlich ausgedehnten Systems $N \rightarrow \infty$ das spektrale Gewicht g_0 von $E = 0$ gegen Null geht.

Literaturverzeichnis

- [1] Galazka, R. R., Shoichi Nagata und P. H. Keesom: *Paramagnetic-spin-glass-antiferromagnetic phase transitions in $Cd_{1-x}Mn_xTe$ from specific heat and magnetic susceptibility measurements*. Phys. Rev. B, 22:3344, 1980.
- [2] Ohno, H., H. Munekata, T. Penney, S. von Molnár und L. L. Chang: *Magnetotransport properties of p-type (In,Mn)As diluted magnetic III-V semiconductors*. Phys. Rev. Lett., 68:2664, 1992.
- [3] Ohno, H., A. Shen, F. Matsukura, A. Endo A. Oiwa, S. Katsumoto, und Y. Iye: *(Ga,Mn)As: A new diluted magnetic semiconductor based on GaAs*. Appl. Phys. Lett., 69:363, 1996.
- [4] Reed, M. L., N. A. El-Masry, H. H. Stadelmaier, M. K. Rittums, M. J. Reed, C. A. Parker, J. C. Roberts und S. M. Bedair: *Room temperature ferromagnetic properties of (Ga, Mn)N*. Appl. Phys. Lett., 79:3473, 2001.
- [5] Shi, J., S. Gider, K. Babcock und D. D. Awschalom: *Magnetic Clusters in Molecular Beams, Metals, and Semiconductors*. Science, 271:937, 1996.
- [6] Ohno, H.: *Making nonmagnetic semiconductor magnetic*. Science, 281:951, 1998.
- [7] Prinz, G. A.: *Magnetoelectronics*. Science, 282:1660, 1998.
- [8] DiVincenzo, David P.: *Quantum computing and single-qubit measurements using the spin-filter effect (invited)*. J. Appl. Phys., 85:4785, 1999.
- [9] Wolf, S. A., D. D. Awschalom, R. A. Buhrmann, J. M. Daughton, S. von Molnar, M. L. Roukes, A. Y. Chtchelkanova und D. M. Treger: *Spintronics: A Spin-Based Electronic Vision for the Future*. Science, 294:1488, 2001.
- [10] Matsukura, F., H. Ohno, A. Shen und Y. Sugawara: *Transport properties and origin of ferromagnetism in (Ga,Mn)As*. Phys. Rev. B, 57:R2037, 1998.

- [11] Beschoten, B., P. A. Crowell, I. Malajovich, D. D. Awschalom, F. Matsukura, A. Shen und H. Ohno: *Magnetic Circular Dichroism Studies of Carrier-Induced Ferromagnetism in $(Ga_{1-x}Mn_x)As$* . Phys. Rev. Lett., 83:3073, 1999.
- [12] Ohno, H. und F. Matsukura: *A ferromagnetic III-V semiconductor: $(Ga,Mn)As$* . Solid State Commun., 117:179, 2001.
- [13] Ku, K. C., S. J. Potashnik, R. F. Wang, S. H. Chun, P. Schiffer, N. Samarth, M. J. Seong, A. Mascarenhas, E. Johnston-Halperin, R. C. Myers, A. C. Gossard und D. D. Awschalom: *Highly enhanced Curie temperature in low-temperature annealed $[Ga,Mn]As$ epilayers*. Appl. Phys. Lett., 82:2302, 2003.
- [14] Edmonds, K. W., K. Y. Wang, R. P. Campion, A. C. Neumann, N. R. S. Farley, B. L. Gallagher und C. T. Foxon: *High-Curie-temperature $Ga_{1-x}Mn_xAs$ obtained by resistance-monitored annealing*. Appl. Phys. Lett., 81:4991, 2002.
- [15] Ohno, H. und F. Matsukura: *Zener Model Description of Ferromagnetism in Zinc-Blende Magnetic Semiconductors*. Science, 287:1019, 2000.
- [16] Dietl, T.: *Ferromagnetic Semiconductors*. Semicond. Sci. Technol., 17:377, April 2002.
- [17] Sonoda, Saki, Saburo Shimizua, Takahiko Sasakib, Yoshiyuki Yamamotob und Hidenobu Hori: *Molecular beam epitaxy of wurtzite $(Ga,Mn)N$ films on sapphire(0001) showing the ferromagnetic behaviour at room temperature*. Journal of Crystal Growth, 237-239:1358–1362, 2002.
- [18] Heisenberg, W.: *Zur Theorie des Ferromagnetismus*. Zeits. f. Physik, 49:619, 1928.
- [19] Nolting, W.: *Quantentheorie des Magnetismus 1*. Teubner Studienbücher: Physik. B. G. Teubner, Stuttgart, 1986.
- [20] Nolting, W.: *Quantentheorie des Magnetismus 2*. Teubner Studienbücher: Physik. B. G. Teubner, Stuttgart, 1986.
- [21] Nolting, W.: *Viel-Teilchen-Theorie*, Band 7 der Reihe *Grundkurs Theoretische Physik*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg New York, 5. Auflage, 2002.
- [22] Holstein, T. und H. Primakoff: *Field Dependence of the Intrinsic Domain Magnetization of a Ferromagnet*. Phys. Rev., 58:1098, 1940.

- [23] Bogolyubov, A. A. und S. V. Tyablikov. Dokl. Akad. Nauk SSSR, 126:53, 1959.
- [24] Dyson, Freeman J.: *General Theory of Spin-Wave Interactions*. Phys. Rev., 102:1217, 1965.
- [25] Dyson, Freeman J.: *Thermodynamic Behavior of an Ideal Ferromagnet*. Phys. Rev., 102:1230, 1965.
- [26] Gonis, Antonios: *GREEN FUNKTIONS FOR ORDERED AND DISORDERED SYSTEMS*, Band 4 der Reihe *STUDIES IN MATHEMATICAL PHYSICS*. North-Holland Elsevier Science Publishers B.V., Amsterdam, 1992.
- [27] Elliot, R. J., J. A. Krumhansl und P. L. Leath: *The theory and properties of randomly disordered crystals and related physical systems*. Rev. Mod. Phys., 46:465, 1974.
- [28] Tahir-Kheli, R. A. und D. ter Haar: *Use of Green Functions in the Theory of Ferromagnetism. I. General Discussion of the Spin-S Case*. Phys. Rev., 127:88, 1962.
- [29] Praveczi, E.: *Free spin-wave theory renormalised in respect of temperature*. Phys. Lett., 6:147, 1963.
- [30] Callen, H. B.: *Green Function Theory of Ferromagnetism*. Phys. Rev., 130:890, 1963.
- [31] Callen, H. B. und S. Shtrikman: *A probability density common to molecular field and collective excitation theories of ferromagnetism*. Solid State Commun., 3:5, 1965.
- [32] Tyablikov, S. V.: *Quantentheoretische Methoden des Magnetismus*. Teubner, Stuttgart, 1968.
- [33] Jelitto, R. J.: *THE DENSITY OF STATES OF SOME SIMPLE EXCITATIONS IN SOLIDS*. J. Phys. Chem. Solids, 30:609, 1969.
- [34] Tahir-Kheli, Raza A.: *Spatially Random Heisenberg Spins at Very Low Temperatures. I. Dilute Ferromagnet*. Phys. Rev. B, 6:2808, 1972.
- [35] Tahir-Kheli, Raza A.: *Spatially Random Heisenberg Spins at Very Low Temperatures. II. Dilute Antiferromagnet with Nearest-Neighbor Substitutional Short-Range Order*. Phys. Rev. B, 6:2826, 1972.

- [36] Tahir-Kheli, Raza A.: *Spattially Random Heisenberg Spins at Very Low Temperatures. III. Multicomponent Ferromagnetic Alloy with Substitutional Short-Range Order*. Phys. Rev. B, 6:2838, 1972.
- [37] Manohar, C.: *Spin Waves in Disordered Antiferromagnets*. Phys. Rev. B, 7:1128, 1973.
- [38] Kumar, Deepak und A. Brooks Harris: *Spin Waves and Long-Range Order in the Diluted Heisenberg Ferromagnet at Zero Temperature*. Phys. Rev. B, 8:2166, 1973.
- [39] Harris, A. B., P. L. Leath, B. G. Nickel und R. J. Elliot: *Excitations in the dilute Heisenberg ferromagnet using the coherent potential approximation*. J. Phys. C: Solid State Phys., 7:1693, 1974.
- [40] Nickel, B. G.: *A method of moments applied to the diluted ferromagnet*. J. Phys. C: Solid State Phys., 7:1719, 1974.
- [41] Kaneyoshi, T.: *Contribution to effective field theories of disordered magnets*. J. Phys. C: Solid State Phys., 8:3415, 1975.
- [42] Theumann, Alba und Raza A. Tahir-Kheli: *Excitations in randomly diluted ferromagnets*. Phys. Rev. B, 12:1796, 1975.
- [43] Kirkpatrick, S. und A. B. Harris: *Theory of the spin excitations of $Rb_2Mn_xNi_{1-x}F_4$* . Phys. Rev. B, 12:4980, 1975.
- [44] Lage, E. J. S. und R. B. Stinchcombe: *A generalized coherent-potential approximation for site-disordered spin systems*. J. Phys. C, 10:295, 1977.
- [45] Harris, A. Brooks und Scott Kirkpatrick: *Low-frequency response functions of random magnetic systems*. Phys. Rev. B, 16:542, 1977.
- [46] Tahir-Kheli, Raza A.: *Effects of randomness on three-dimensional magnetic ordering of quasi-low-dimensional spin-systems*. Phys. Rev. B, 16:2239, 1977.
- [47] Dvey-Aharon, H. und M. Fibich: *Magnetic properties of a disordered substitutional alloy-Heisenberg model*. Phys. Rev. B, 18:3491, 1978.
- [48] Tahir-Kheli, Raza A.: *Effects of randomness on n-layer Heisenberg magnets*. Phys. Rev. B, 19:4622, 1979.

- [49] Tahir-Kheli, R. A.: *Small-dilution correction to the spin-wave dispersion in the Heisenberg ferromagnet with first-, second- and third-neighbor exchange coupling*. Phys. Rev. B, 29:1362, 1983.
- [50] Kawasaki, Kazuko, Keiko Tanaka, Chiyo Hamamura und R. A. Tahir-Kheli: *Magnetic phase transitions in randomly diluted fcc spin system with competing interactions: The case with ferromagnetic J_1 and arbitrary J_2* . Phys. Rev. B, 45:5321, 1992.
- [51] Foo, El-Ni und Der-Hsueh Wu: *Coherent Potential Approximation for Disordered Ferromagnetic binary alloys*. Phys. Rev. B, 5:98, 1972.
- [52] Alben, R., S. Kirkpatrick und D. Beeman: *Spin waves in random ferromagnets*. Phys. Rev. B, 15:346, 1977.
- [53] Kaneyoshi, T. und M. Maskur: *Ferrimagnetism in a disordered binary alloy*. J. Phys.: Condens. Matter, 5:3253, 1993.
- [54] Bouzerar, G. und P. Bruno: *RPA-CPA theory for magnetism in disordered Heisenberg binary systems with long-range exchange integrals*. Phys. Rev. B, 66:014410, 2002.
- [55] Elliot, R. J. und D. E. Pepper: *Excitations in Dilute Magnets Using the Coherent-Potential Approximation*. Phys. Rev. B, 8:2374, 1973.
- [56] Blackman, J. A., D. M. Esterling und N. F. Berk: *Generalized Locator-Coherent-Potential Approach to Binary Alloys*. Phys. Rev. B, 4:2412, 1971.
- [57] Stauffer, Dietrich: *Perkolationstheorie: eine Einführung*. VCH Verlagsgesellschaft mbH, Weinheim (Deutschland), 1995.
- [58] Elliott, R. J., B. R. Heap, D. J. Morgan und G. S. Rushbrooke: *EQUIVALENCE OF THE CRITICAL CONCENTRATIONS IN THE ISING AND HEISENBERG MODELS OF FERROMAGNETISM*. Phys. Rev. Lett., 5:366, 1960.
- [59] Kirkpatrick, Scott: *Percolation and Conduction*. Rev. Mod. Phys., 45:574, 1973.
- [60] Montgomery, C. G., J. I. Krugler und R. M. Stubbs: *GREEN'S-FUNCTION THEORY OF A DISORDERED HEISENBERG FERROMAGNET*. Phys. Rev. Lett., 25:669, 1970.
- [61] Soven, P.: *Coherent-Potential Model of Substitutional Disordered Alloys*. Phys. Rev., 156:809, 1967.

- [62] Taylor, D. W.: *Vibrational Properties of Imperfect Crystals with Large Defect Concentrations*. Phys. Rev, 156:1017, 1967.
- [63] Velický, B., S. Kirkpatrick und H. Ehrenreich: *Single-Site Approximations in the Electronic Theory of Simple Binary Alloys*. Phys. Rev, 175:747, 1968.
- [64] Yonezawa, F. und T. Matsubara: *Note on Electronic State of Random Lattice*. Prog. Theor. Phys., 35:357, 1966.
- [65] Yonezawa, F.: *A Systematic Approach to the Problem of Random Lattices*. Prog. Theor. Phys., 40:734, 1968.
- [66] Leath, P. L.: *Self-Consistent-Field Approximations in Disordered Alloys*. Phys. Rev., 171:725, 1968.
- [67] Whitelaw, D. J.: *A single-site theory for binary alloys with environmental and off-diagonal disorder*. J. Phys. C, 14:2871, 1981.
- [68] Brout, R.: *Statistical Mechanical Theory of a Random Ferromagnetic System*. Phys. Rev., 115:824, 1959.
- [69] Matthias, B. T., H. Suhl und E. Corenzwit: *Spin Exchange in Superconductors*. Phys. Rev. Lett., 1:92, 1958.
- [70] Zhao, D. und D. L. Huber: *Matrix mean-field theory for the paramagnetic susceptibility of disordered magnets*. Phys. Rev. B, 53:14 223, 1996.
- [71] Bouzerar, G. und T. P. Pareek: *Carrier-induced ferromagnetism in diluted magnetic semiconductors*. Phys. Rev. B, 65:154203, 2002.
- [72] Bouzerar, G., J. Kudrnovský, L. Bergqvist und P. Bruno: *Ferromagnetism in diluted magnetic semiconductors: A comparison between ab initio mean-field, RPA, and Monte Carlo treatments*. Phys. Rev. B, 68:081203(R), 2003.
- [73] Goldstone, J., A. Salam und S. Weinberg: *Broken Symmetry*. Phys. Rev, 127:965, 1962.
- [74] Lange, Robert V.: *Nonrelativistic Theorem Analogous to the Goldstone Theorem*. Phys. Rev., 146:301, 1966.
- [75] Lange, Robert V.: *Interaction Range, The Goldstone Theorem, and Long-Range Order in the Heisenberg Ferromagnet*. Phys. Rev., 156:630, 1967.

- [76] Huber, D. L.: *Distribution of magnon modes in dilute two-dimensional ferromagnets and antiferromagnets*. Phys. Rev. B, 10:4621, 1974.
- [77] Klenin, M. A. und M. Blume: *Computer experiments on the dilute three-dimensional Heisenberg magnet: infinite temperature*. Phys. Rev. B, 14:235, 1976.
- [78] Klenin, M. A.: *Computer experiments on the dilute three-dimensional Heisenberg magnet II. Static Behavior at finite temperature*. Phys. Rev. B, 19:3586, 1979.
- [79] Hendriksents, P. V., S. Linderothts und P.-A. Lindgard: *Magnetic properties of Heisenberg clusters*. J. Phys.: Condens. Matter, 5:5675, 1993.
- [80] Hendriksents, P. V., S. Linderothts und P.-A. Lindgard: *Finite-size modifications of magnetic properties of clusters*. Phys. Rev. B, 48:7259, 1993.
- [81] Berciu, M. und R. N. Bhatt: *Effects on Disorder in Diluted Magnetic Semiconductors*. Phys. Rev. B, 87:107203, 2001.
- [82] Schliemann, John, Jürgen König und A. H. MacDonald: *Monte Carlo study of ferromagnetism in (III,Mn)V semiconductors*. Phys. Rev. B, 64:165201, 2001.
- [83] Calderón, M.J., G. Gómez-Santos und L. Brey: *Impurity-semiconductor band hybridization effects on the critical temperature of diluted magnetic semiconductors*. Phys. Rev. B, 66:075218, 2002.
- [84] Alvarez, Gonzalo, Matthias Mayr und Elbio Dagotto: *Phase Diagram of a Model for Diluted Magnetic Semiconductors Beyond Mean-Field Approximations*. Phys. Rev. Lett., 89:277202, 2002.
- [85] Brey, L. und G. Gómez-Santos: *Magnetic Properties of GaMnAs from an effective Heisenberg-Hamiltonian*. Phys. Rev. B, 68:115206, 2003.
- [86] Wolfram Research, Inc.: *Mathematica 4.1.0.0*. <http://www.wolfram.com>, 1988-2000.
- [87] Veldhuizen, Todd und andere: *Blitz++*. <http://oonumerics.org/blitz/>, 2003.
- [88] Veldhuizen, Todd: *Blitz++ User's Guide*. <http://oonumerics.org/blitz/manual/>, 2001.
- [89] Anderson, E., Z. Bai, C. Bischof, S. Blackford, J. Demmel, J. Dongarra, J. Du Croz, A. Greenbaum, S. Hammarling, A. McKenney und D. Sorensen: *LAPACK – Linear Algebra PACKage*. <http://www.netlib.org/lapack/>, 2003.

- [90] Anderson, E., Z. Bai, C. Bischof, S. Blackford, J. Demmel, J. Dongarra, J. Du Croz, A. Greenbaum, S. Hammarling, A. McKenney und D. Sorensen: *LAPACK Users' Guide*. Society for Industrial and Applied Mathematics, Philadelphia, PA, 3. Auflage, 1999.
- [91] Lanczos, C. J. Res. Nat. Bur. Stand., 45:255, 1950.
- [92] Dean, P. und J. L. Martin: *A method of determining the frequency spectra of disordered lattices in two-dimensions*. Proc. Roy. Soc., A 259:409, 1960.
- [93] Dean, P.: *The Vibrational Properties of Disordered Systems: Numerical Studies*. Rev. Mod. Phys., 44:127, 1972.
- [94] Press, William H., Saul A. Teukolsky, William T. Vetterling und Brian P. Flannery: *Numerical Recipes in C*. Cambridge University Press, Cambridge (UK), New York (USA), Oakleigh (AUS), 2. Auflage, 1992.
- [95] Bogoliubov, N. N.: *ON SOME PROBLEMS OF THE THEORY OF SUPERCONDUCTIVITY*. Physica (Suppl.), 26:S 1, 1960.
- [96] Bogoliubov, N. N. Phys. Abh. Sowjetunion, 6:1,113,229, 1962.
- [97] Hoshen, J. und R. Kopelman: *Percolation and cluster distribution. I. Cluster multiple labeling technique and critical percolation concentration algorithm*. Phys. Rev. B, 14:3438, 1976.
- [98] Mermin, N. D. und H. Wagner: *Absence of Ferromagnetism or Antiferromagnetism in One- or Two-Dimensional Isotropic Heisenberg Models*. Phys. Rev. Lett., 17:1133, 1966.
- [99] Santos, C. und W. Nolting: *Ferromagnetism in the Kondo-lattice model*. Phys. Rev. B, 65:144419, 2002.
- [100] Santos, C. und W. Nolting: *Erratum: Ferromagnetism in the Kondo-lattice model [Phys. Rev. B 65, 144419 (2002)]*. Phys. Rev. B, 66:019901(E), 2002.

Danksagung

Mein Dank gilt allen, die mich beim Schreiben dieser Diplomarbeit unterstützt haben.

Ich danke Prof. Dr. Wolfgang Nolting für die exzellente Betreuung. Auch den übrigen MitarbeiterInnen der Arbeitsgruppe Theoretische Festkörperphysik möchte ich für ihre kameradschaftliche fachliche und sachliche Hilfe danken. Hierbei soll insbesondere Carlos Santos erwähnt werden.

Natürlich möchte ich auch meiner Familie und meinen Freunden danken, die mir nicht nur moralischen und emotionalen Beistand gegeben, sondern auch so manche Sorge im Alltag abgenommen haben.

Besonders möchte ich mich bei Jörn bedanken, und natürlich bei Annette.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich diese Arbeit ohne unerlaubte fremde Hilfe angefertigt habe. Alle Entlehnungen aus anderen Arbeiten sind an den betreffenden Stellen kenntlich gemacht. Alle verwendeten Quellen sind angegeben.

Stefan Hilbert

Berlin, 01. Dezember 2003