
Kapitel 4

Simulationen

In diesem Kapitel wenden wir uns Modellbetrachtungen zum Verständnis der magnetischen Eigenschaften von FeBr_2 zu. Im Rahmen eines Ising-Modells kann zunächst unter Verwendung realistischer Systemparameter gezeigt werden, daß die im Experiment beobachteten nicht-kritischen Fluktuationen im Wesentlichen auf den feldinduzierten Zusammenbruch der Spin-Ordnung in einem der beiden magnetischen Untergitter zurückzuführen sind. Diese Vorstellung wird auch bei Verwendung eines klassischen anisotropen Heisenberg-Modells weitgehend bestätigt. Dieses hat den Vorteil, daß auch die experimentell relevanten transversalen Spin-Freiheitsgrade berücksichtigt werden. Es ist jedoch nicht in der Lage, den in der spezifischen Wärmekapazität beobachteten [7] zusätzlichen Phasenübergang zu beschreiben.

Wie auch bei den anderen Kapiteln bauen die hier gezeigten Ergebnisse auf einigen vorangehenden Arbeiten auf (Tab. 4.1). Im weiteren werden die Begriffe „Simulation“ und „Monte-Carlo-Simulation“ austauschbar verwendet werden, da hier ausschließlich Rechnungen vom Typ der Monte-Carlo-Simulation gemeint sind.

Man kann die aufgelisteten Arbeiten folgendermaßen zusammenfassen: Durch experimentelle Untersuchungen an verschiedenen Metamagneten (FeCl_2 , DAG, FeBr_2) wurde ein reges Interesse an dem multikritischen Verhalten von Modellsystemen geweckt [13, 20, 60]. Nicht wenige theoretische Betrachtungen befaßten sich daraufhin mit dem Thema des uniaxialen Heisenberg- oder Ising-Metamagneten und deren kritischem Verhalten, bzw. der Topologie ihres magnetischen Phasendiagramms. Immer wieder wurde FeBr_2 als besonderer Vertreter eines bestimmten Typus von multikritischem System hervorgehoben, wie es auch im Kapitel 2 beschrieben wurde. Somit tendierten in jüngster Zeit viele theoretische Arbeiten insbesondere dahin, FeBr_2 zu „verstehen“ oder „nachzusimulieren“ [5, 35, 36, 61]. Dies wurde stark gefördert durch einige neue experimentelle Entdeckungen, wie z.B. die Linien $H_c(T)$ und $H_1(T)$, d.i. die nicht-kritischen Fluktuationen [23] und der zusätzliche Phasenübergang in der antiferromagnetischen Phase [7, 29].

Zitat	Kommentar
A.R. Fert et al. (1973, 1974) [13, 60]	Theoretische Untersuchung des multikritischen Verhaltens von uniaxialen $S=1$ Heisenberg-Systemen mittels Molekularfeld-Theorie im Hinblick auf jüngste Experimente an FeBr_2 .
F. Harbus et al. (1973) [62]	Studie des trikritischen Verhaltens in Modell-Metamagneten mittels Hoch-Temperatur-Reihen-Entwicklung.
J.M. Kincaid et al. (1975) [3]	Allgemeine theoretische Betrachtung von multikritischen Systemen wie z.B. He^3 - He^4 -Gemische und Metamagnete, u.a. auch von solchen, die eine Aufspaltung des trikritischen Punktes in zwei kritische Endpunkte zeigen (vgl. Kap. 2.2).
I. Vilfan et al. (1986) [14]	Allgemeine theoretische Untersuchung des multikritischen Verhaltens von uniaxialen $S=1$ Heisenberg-Systemen mittels Molekularfeld-Theorie.
Y.-L. Wang et al. (1991) [63]	Simulationen eines $S=1$ Ising-Antiferromagneten (Blume-Capel-Modell) zur Untersuchung der möglichen Aufspaltung des trikritischen Punktes.
H.J. Herrmann et al. (1993) [32]	Simulationen eines $S=1/2$ Ising-Antiferromagneten zur Untersuchung der möglichen Aufspaltung des trikritischen Punktes.
W. Selke et al. (1995) [33]	Erste Simulations-Ergebnisse an einem Ising-Antiferromagneten zum Verständnis der nicht-kritischen Fluktuationen im FeBr_2 .
W. Selke (1996) [4]	Fortsetzung der vorangehenden Arbeit: Simulationen und Molekularfeld-Rechnungen an einem Ising-Antiferromagneten.
K. Held et al. (1997) [34]	Vergleich des Phasendiagramms des FeBr_2 mit Hubbard-Modell-Rechnungen an stark anisotropen Metamagneten.
M. Pleimling et al. (1997) [5]	Simulationen eines $S=1/2$ und $S=1$ Ising-Modells und eines $S=1$ semi-klassischen Modells mit realistischen Parametern, um das Phasendiagramm von FeBr_2 nachzubilden, jedoch noch ohne die Phasenlinie H_1 .
M. Pleimling et al. (1999) [35, 36]	Simulationen eines semi-klassischen Modells unter Berücksichtigung von nicht-diagonalen Austauschtermen zum Verständnis des Phasenübergangs bei $H_1(T)$ im FeBr_2 .
M. Acharyya et al. (1999) [61]	Simulationen eines schwach anisotropen klassischen Heisenbergmodells zum Verständnis des Phasenübergangs bei $H_1(T)$ im FeBr_2 .

Tab. 4.1 Wichtigste theoretische Arbeiten der Vergangenheit zum Thema „multikritisches Verhalten von Metamagneten“.

Von W. Selke et al. wurden wesentliche Erkenntnisse erzielt zu der Frage, *wann* ein Metamagnet vom Typ FeCl_2 und wann vom Typ FeBr_2 ist (Kap. 2.2), d.h. unter welcher Bedingung nicht-kritische Fluktuationen auftreten [4, 33]. M. Pleimling konnte durch seine Arbeiten an einem semi-klasischen Heisenberg-Modell den Einfluß der Frustration in den intra-planaren Wechselwirkungen beleuchten und darüberhinaus wichtige Ansätze zum Verständnis des Phasenübergangs bei H_1 liefern [5, 35, 36]. In Konkurrenz dazu traten Untersuchungen von M. Acharyya et al. an einem klassischen anisotropen Heisenberg-Modell [61]. Im Gegensatz zu M. Pleimling, der hauptsächlich die Entkopplung von xy - und z -Komponenten sowie den Einfluß einer nicht-diagonalen Austauschwechselwirkung für jenen Phasenübergang verantwortlich macht, interpretiert M. Acharyya die experimentellen Ergebnisse eher im Sinne eines Spin-Flop-Phasenübergangs eines klassischen Heisenberg-Systems mit schwacher Anisotropie (siehe auch Kap. 4.2.5).

4.1 Das Ising-Modell

4.1.1 Grundlagen

Wie bereits im Kapitel 2.1 beschrieben, ist das Ising-Modell ein Grenzfall des anisotropen Heisenberg-Modells. Man betrachtet ein d -dimensionales Gitter von Spins, S_i , mit $S_i = \pm 1/2$. Der Hamiltonoperator für ein solches System kann geschrieben werden als:

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} S_i S_j - g \mathbf{m}_B \mathbf{m}_0 H \sum_i S_i, \quad (4.1)$$

wobei J_{ij} die Wechselwirkungskonstanten und H die Feldstärke des angelegten Magnetfelds ist. Durch Minimierung der freien Energie $F = E - TS$, mit $E = \langle H \rangle$, kann z.B. die Magnetisierung, $M = -g \mathbf{m}_B \langle S_i \rangle$, berechnet werden.

Im Gegensatz zu einem analytischen Verfahren, das versucht durch mathematische Umformungen zu einem expliziten Formelausdruck zu gelangen, beschreitet die Monte-Carlo-Simulation einen anderen Weg. Es wird nämlich versucht, das Modell zu *simulieren*. D.h. man bildet die abstrakte physikalische Idee mit ihrem Grundgerüst (z.B. das Gitter von Spins) und ihren vermuteten mikroskopischen Gesetzmäßigkeiten (z.B. die Wechselwirkung jedes Spins mit den Nachbarn und dem Feld und der Temperatur) auf einen zellularen Automaten ab, welcher genau diese Eigenschaften aufweist. Die heute übliche Realisierung eines solchen Automaten ist ein Computer. Für die hier dargestellten Ergebnisse wurden unter den Betriebssystemen Unix oder Linux laufende RISC-Maschinen oder PC's genutzt. Es wurden ausschließlich nicht-parallele Algorithmen verwendet. Die Programme bestehen im Wesentlichen aus folgenden Elementen:

I) Das Modell-Grundgerüst:

Es wurde in der Regel ein 3-dimensionales Short-Integer-Array, $S(i, j, k)$ initialisiert, mit $(i, j, k) \in (d_a^{max}, d_b^{max}, d_c^{max})$, wobei $S = -1, 0$, oder 1 sein kann und d_a^{max} , d_b^{max} und d_c^{max} natürliche Zahlen sind, die die Gesamtgröße des Arrays festlegen. Der Fall $S = 0$ wird jedoch nur dann benötigt, wenn Fehlstellen simuliert werden sollen, z.B. für einen verdünnten Ising-Antiferromagneten. Die Tatsache, daß $S = \pm 1$ benutzt wird, anstelle von $S = \pm 1/2$, hat lediglich technische Gründe.

Weiterhin wurden für alle Simulationen periodische Randbedingungen verwendet. Um dies zu bewerkstelligen, muß das Spin-Array aus zwei Bestandteilen aufgebaut sein. Zum einen, benötigt man ein *reales* Spin-Array $(d_a, d_b, d_c) \subset (d_a^{max}, d_b^{max}, d_c^{max})$. Dies ist das Spin-Array, dessen Magnetisierung oder Suszeptibilität gemessen wird. Zum anderen, be-

nötigt man noch sogenannte *virtuelle* Spins. Die Differenz zwischen dem realen und gesamten Array ist für die virtuellen Spins reserviert. Für diese Arbeit gilt : $d_a^{max} = d_a + 4$ sowie für die anderen Dimensionen, d.h. es gibt auf jeder Seite zwei virtuelle Spin-Schichten.

Die periodischen Randbedingungen sind so realisiert, daß nach jedem Monte-Carlo-Schritt (s.u.) alle äußersten sowie zweit-äußersten Randschichten des realen Spin-Arrays auf die jeweils gegenüberliegende Seite in die zwei virtuellen Spin-Schichten kopiert werden. Dies gewährleistet, daß nun jeder Spin im realen Array die nötige Anzahl von Wechselwirkungsnachbarn besitzt und darüber hinaus, daß keine festen Randbedingungen das System vorprägen und die Physik verfälschen. Wieviele Randschichten virtuell sein und somit kopiert werden müssen, hängt von der Art des simulierten Systems und der Reichweite der Wechselwirkungen ab.

II) Die mikroskopischen Gesetzmäßigkeiten:

Den Kern der Monte-Carlo-Simulation bildet der sogenannte Update-Algorithmus. Die Hauptaufgabe des Simulationsprogramms besteht darin, das Spin-Array von seiner beliebigen Anfangskonfiguration aus in ein thermodynamisches Gleichgewicht zu bringen. Hier wurde durchgehend der sogenannte *Metropolis*-Algorithmus [64] verwendet, welcher auf folgendem Prinzip beruht:

1. Wähle einen Spin $S(i, j, k)$ aus. (Auch dazu gibt es auch verschiedene Varianten. Hier wurden jedoch die Zahlen (i, j, k) zufällig bestimmt.)
2. Führe einen Testflip, $S \rightarrow -S$, durch und bestimme den daraus resultierenden Energieunterschied, ΔE .
3. Falls $\Delta E \leq 0$ ist, dann soll der Spin $S(i, j, k)$ tatsächlich flippen. Falls $\Delta E > 0$, dann berechne den Boltzmann-Faktor, $p = \exp(-\Delta E / k_B T)$. Ferner ziehe eine Zufallszahl, $q \in [0,1)$. Wenn $p > q$ ist, dann führe einen Spin-Flip durch, ansonsten bleibt der Spin wie vorher. Dies hat den Effekt, daß ein Spinflip mit einer physikalisch sinnvollen Wahrscheinlichkeit durchgeführt wird, d.h. der sogenannten „Mastergleichung“ genügt [65].

Das Programm muß für jede einzelne dieser Metropolis-Abfragen ΔE berechnen. Zugrunde liegt der Hamiltonoperator (Gl. 4.1), welcher z.B. für einen Ising-Antiferromagneten mit Wechselwirkungen zu nur nächsten Nachbarn folgendermaßen aussehen kann:

$$H = -J \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - J' \sum_{\langle i,j \rangle} S_i S_j - H \sum_i S_i . \quad (4.2)$$

Hier wurde die Substitution, $g\mathbf{m}_B\mathbf{m}H \rightarrow H$, durchgeführt, d.h. H trägt nun die Einheit einer Energie. Ferner ist $J \geq 0$ die ferromagnetische Wechselwirkungskonstante mit z nächsten Nachbarn innerhalb der einzelnen Untergitter, z.B. der einzelnen Ebenen, $k \in [1, d_c]$. $J' < 0$ beschreibt die antiferromagnetische Wechselwirkung zu z' Nachbarn zwischen den einzelnen Ebenen. Üblicherweise setzt man in der Simulation zur Vereinfachung $k_B = 1$. Dies ist gleichbedeutend zu einer Substitution: $k_B T \rightarrow T$.

Dann gilt für einen ausgewählten Spin $S_i = S(i, j, k)$ mit Gl. 4.2 :

$$\Delta E_i = E(-S_i) - E(S_i) = 2S_i (J \sum_{j=1}^z S_j + J' \sum_{j=1}^{z'} S_j + H) . \quad (4.3)$$

Diese Berechnung und die darauf folgende Metropolis-Abfrage stellen das kleinste Programmfragment dar, welches in einer Schleife N_G -mal wiederholt, wobei $N_G = d_a \cdot d_b \cdot d_c$, die Gesamtzahl an realen Spins ist. Die Zahlen (i, j, k) werden jedesmal neu mit einem Zufallsgenerator gezogen. Ein solcher Durchlauf ist dann genau ein „Monte-Carlo-Schritt pro Gitterplatz“ (MCS). Für eine bestimmte Temperatur und Feldstärke wird dieser Schritt N_R -mal durchgeführt, um das System zu relaxieren und daraufhin N_M -mal durchgeführt, um einen brauchbaren Mittelwert, z.B. der Magnetisierung zu bestimmen. Für die hier gezeigten Ergebnisse wurden Werte für N_R und N_M , je nach Bedarf, im Bereich von 2000 bis 20000 MCS verwendet. Die Magnetisierung kann hier neu definiert werden als :

$$M = M(T, H) = \frac{1}{N_M} \sum_{q=1}^{N_M} M_q = \frac{1}{N_M N_G} \sum_{q=1}^{N_M} \sum_{i=1}^{N_G} S_{i,q} . \quad (4.4)$$

Speichert man die Zwischenwerte, M_q , jedes einzelnen Monte-Carlo-Schritts ab, so ist es auch möglich, die Suszeptibilität, c , als Quadratsumme der Magnetisierungsfluktuationen zu berechnen:

$$c = c(T, H) = \mathbf{b} \cdot \mathbf{d} M^2 = \mathbf{b} \langle (M - \langle M \rangle)^2 \rangle = \frac{1}{T} \frac{1}{N_M N_G^2} \sum_{q=1}^{N_M} (M_q - M)^2 . \quad (4.5)$$

Als ein letztes Detail sei noch der verwendete Zufallsgenerator erwähnt. Es wurde hauptsächlich der von R. Meyer und F. Hucht [66] implementierte Generator „`rnd250()`“ benutzt, welcher gleichverteilte Zufallszahlen im Bereich von 0 bis 2147483647 erzeugt.

4.1.2 Ergebnisse

Es wurde auf einem Dreiecksgitter simuliert mit einer Nachbarkonfiguration wie im FeBr_2 (siehe Abb. 2.9), wobei intraplanar nur nächste Nachbarn berücksichtigt wurden, d.h. $z = 6$ und $z_c = 20$. Ferner gilt: $J = 0,7 \text{ K}$ und $J_c = -0,5 \text{ K}$, so daß $|r| = zJ / |z_c J_c| = 0,42$. Dies erfüllt das Kriterium für den Fall (b) in Abb. 2.7 und somit auch für das Auftreten von nicht-kritischen Fluktuationen (Kap. 2.2). Das Dreiecksgitter läßt sich unter Verwendung eines schiefwinkligen Koordinatensystems auf ein kubisches Gitter abbilden. Die hier verwendete Gittergröße war $24 \times 24 \times 18$.

Abb. 4.1 zeigt das H - T -Phasendiagramm dieses Modellsystems. Im Vergleich zu dem des FeBr_2 (Abb. 2.10) sind einige Ähnlichkeiten aufzufinden. Zum einen das Auftauchen der Anomalie-Linien, H_- und $H_+(T)$, und zum anderen die Aufwölbung der kritischen Phasenlinie, $H_c(T)$. Es fehlt die Phasenlinie, $H_1(T)$, und die Mischphase (AF+PM), wobei letztere in dieser Simulation auch nicht zu erwarten ist, da ohne Dipolwechselwirkungen und freie Oberflächen gerechnet wurde (siehe Kap. 2.3). In Abb. 4.2 ist die Magnetisierung, M vs. T , und deren Ableitung für $H/|z_c J_c| = 0,95$ dargestellt. Man erkennt eine große Ähnlichkeit zu der gemessenen Kurve an FeBr_2 (Abb. 3.2).

Sie ermutigt zu einer detaillierteren Analyse der Simulations-Ergebnisse, deren experimentellen Entsprechungen nur schwer zugänglich sind. Zum Beispiel ist es in der Simulation ohne weiteres möglich, die Untergitter-Magnetisierungen, M_A und M_B , getrennt zu berechnen. Diese unterscheiden sich dabei vom Ausdruck 4.4 lediglich in der Summation über das Gitter $S(i, j, k)$, nämlich einmal nur über ungerade $k \in [1, d_c - 1]$ und zum anderen nur über gerade $k \in [2, d_c]$, wobei d_c gerade sein muß.

Es stellt sich heraus, daß der Wendepunkt dieser Anomalie von $M_B(T)$ gerade mit dem Maximum in dM/dT bei $T = T_-$ zusammenfällt, wobei $M := M_A + M_B$. Dieses Phänomen wird unter Annäherung an $H_{c0} := |z_c J_c|$ (d.i. die Feldstärke, bei der theoretisch bei $T = 0$ das B-Untergitter vollständig umklappen muß) immer ausgeprägter.

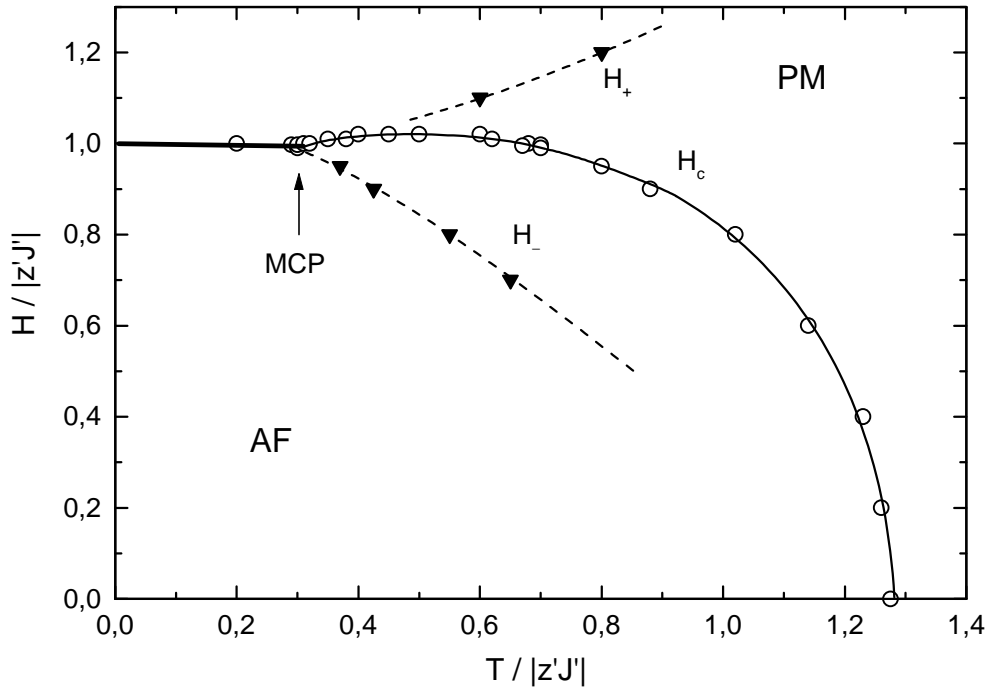


Abb. 4.1 H-T-Phasendiagramm des simulierten Ising-Modells auf einem Dreiecksgitter ($24 \times 24 \times 18$), mit $z\mathcal{J} = 6 \cdot 0,7$ K und $z\mathcal{J}\mathcal{C} = -20 \cdot 0,5$ K ($k_B = 1$). Unterhalb von T_{MCP} ist ein Phasenübergang erster Ordnung und oberhalb davon zweiter Ordnung von der antiferromagnetischen Phase (AF) in die paramagnetische Phase (PM) zu sehen. Die gestrichelten Linien, H_- und $H_+(T)$ deuten die Positionen der Maxima von nicht-kritischen Fluktuationen an (vgl. Abb. 4.2–4.5). Alle Linien sind hierbei nur Hilfslinien.

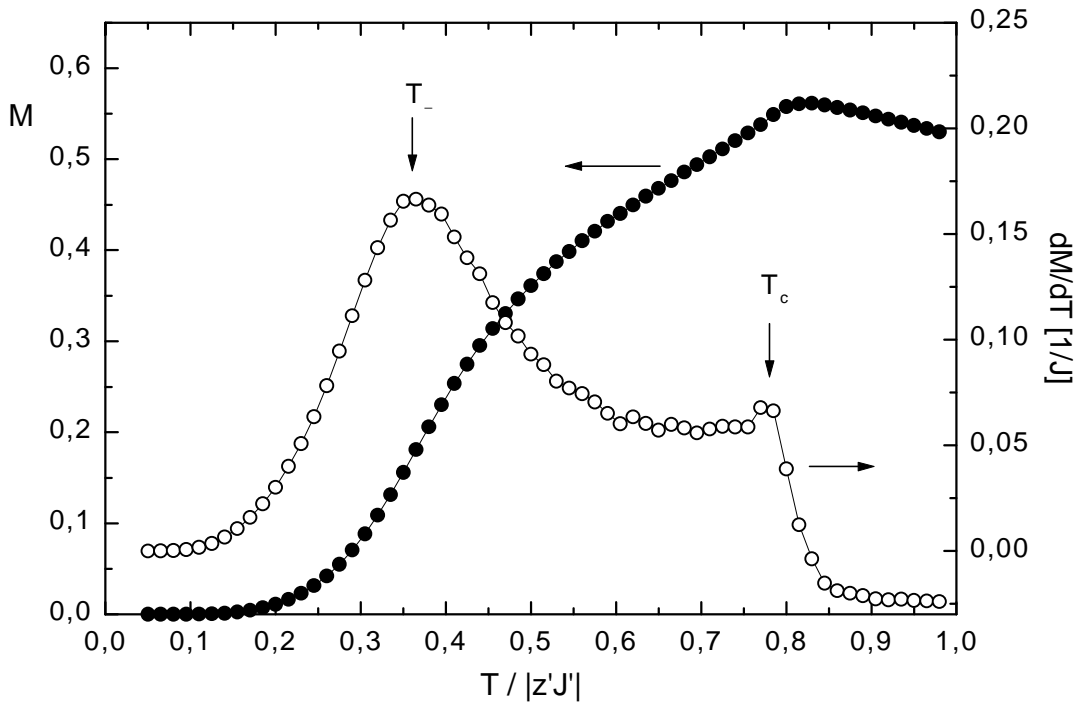


Abb. 4.2 Magnetisierung, M , und Ableitung, dM/dT vs. $T/|z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, für $H/|z\mathcal{J}\mathcal{C}| = 0,95$.

Abb. 4.3 zeigt eine Serie von M_A - und M_B -Kurven als Funktion der Temperatur, T , bei verschiedenen Feldstärken, H , zwischen 0 und $0,995 |z\mathcal{G}\mathcal{C}|$. Im Nullfeld sind erwartungsgemäß beide Kurven symmetrisch. Bei Senkung der Temperatur friert das System in einen langreichweitig geordneten Grundzustand ein, bei dem die k -Ebenen ferromagnetisch geordnet sind und eine alternierende Spin-Richtung zwischen den Ebenen besteht. $M_A = 0,5$ bzw. $M_B = -0,5$ bedeuten vollständig ausgerichtete Untergitter. Dann gilt für die gesamte Magnetisierung: $M := M_A + M_B = 0$ und für den antiferromagnetischen Ordnungsparameter: $f^{\text{AF}} := M_A - M_B = 1$. Deutlich ausgezeichnet ist auch die kritische Temperatur, $T_c \approx 1,3 |z\mathcal{G}\mathcal{C}|$.

Beim Anlegen eines homogenen Feldes, H , wird die Symmetrie im System gebrochen. Das A-Untergitter wird stabilisiert, während das B-Untergitter destabilisiert wird. Dementsprechend verschieben sich beide Kurven nach oben, während T_c zu niedrigeren Werten wandert (vgl. Phasendiagramm in Abb. 4.1). Eine zweite und eigentlich unerwartete Beobachtung macht man für relativ hohe Feldstärken $H > 0,8 |z\mathcal{G}\mathcal{C}|$. Es bildet sich in der B-Untergitter-Magnetisierung eine „Anomalie“, d.h. ein rasches Einbrechen der Magnetisierung schon deutlich unterhalb von T_c , aus, so daß in M_B scheinbar zwei Übergänge zu sehen sind.

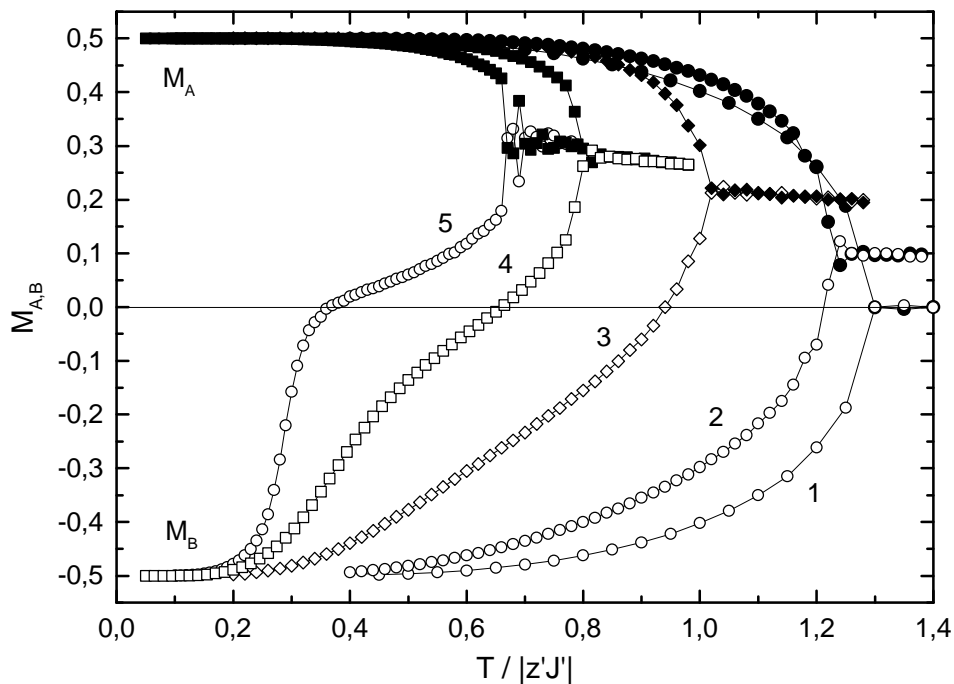


Abb. 4.3 Untergitter-Magnetisierungen, M_A und M_B vs. $T/|z\mathcal{G}\mathcal{C}|$, für $H/|z\mathcal{G}\mathcal{C}| = 0$ (1), 0,4 (2), 0,8 (3), 0,95 (4) und 0,995 (5).

In Anbetracht der Tatsache, daß das A-Untergitter über einen weiten Bereich der Temperatur konstant ist, scheint ausschließlich dieses Phänomen im B-Untergitter für die Anomalie in M und dM/dT vs. T (Abb. 4.2) verantwortlich zu sein. Betrachtet man zudem noch die Untergitter-Suszeptibilitäten, c_A und c_B , so zeigt sich, daß bei dieser Temperatur, $T \approx T_-$, zusätzliche Fluktuationen im B-Untergitter auftreten (Abb. 4.4). In dieser Abbildung zeigt sich deutlicher, wie M_A über den gesamten Temperaturbereich $0 < T < T_-$ konstant und vollständig magnetisiert bleibt. Die Fluktuationen in c_B haben ihr Maximum etwas oberhalb des Wendepunktes in M_B bzw. des Maximums in dM/dT bei $T = T_-$.

Die Höhe des Peaks von $c_B(T)$ nimmt für sinkende Feldstärken ab, bis für $H < 0,8 |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$ gar kein Maximum mehr auftritt (ohne Abbildung). Hingegen zeigt die A-Untergitter-Suszeptibilität überhaupt keine nennenswerten Beiträge, abgesehen von den kritischen Fluktuationen bei T_c . Diese kritischen Fluktuationen bewirken dort ein ständiges Wechseln der Untergitter-Identität, so daß insbesondere in der Nähe von T_c die Kurven sehr verrauscht sind. Die kritische Temperatur unterliegt dabei natürlich dem finite-size scaling, während die *nicht*-kritischen Fluktuationen per Definition nicht mit der System-Größe skalieren. Es wurde verzichtet, diesen Punkt im Rahmen dieser Arbeit näher zu untersuchen, da M. Pleimling und W. Selke diese Details bereits intensiv studiert haben [67].

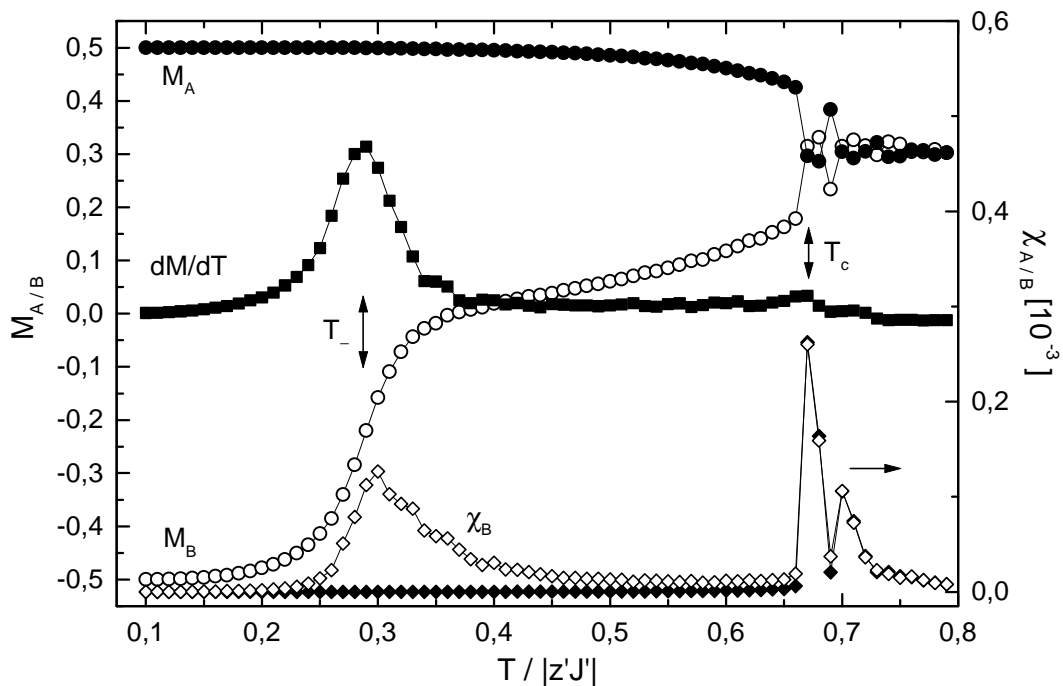


Abb. 4.4 Untergitter-Magnetisierungen, M_A und M_B , und Suszeptibilitäten, c_A und c_B vs. $T/|z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, für $H = 0,995 \cdot |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$. Der Pfeil bei T_- deutet auf den Wendepunkt in $M_B(T)$ bzw. das Maximum in dM/dT (Quadrate) hin.

Bevor zu einer Deutung dieses Befundes gegangen wird, sollen noch weitere Eigenschaften dieses Modell-Systems diskutiert werden. Abb. 4.5 zeigt die Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. T , für zwei Feldstärken $H \geq H_{c0} = |z\mathcal{C}\mathcal{C}|$, d.h. in einem Feldstärkebereich, in dem das System eigentlich schon in der paramagnetischen Phase sein müßte, da das äußere Feld, H , die antiferromagnetische Kopplung der Untergitter überwunden hat. Überraschenderweise wird die Beobachtung gemacht, daß das System in dem Intervall $T_{c,u} < T < T_{c,o}$ geordnet ist. Beide Untergitter sind positiv magnetisiert, jedoch mit unterschiedlichem Betrag. Dieser Bereich ist somit ähnlich einer *ferrimagnetischen* Phase, wobei es jedoch keinen sichtbaren Phasenübergang zwischen diesem Bereich und der regulären antiferromagnetischen Phase (AF) gibt.

Das Bemerkenswerte ist, daß bei Temperaturerhöhung ein Übergang von einer ungeordneten Phase in eine geordnete Phase stattfindet. Offenbar befindet man sich hier in dem aufgewölbten Teil des antiferromagnetischen Phasengebietes, in dem das A-Untergitter stark magnetisiert ist ($M_A \approx 0,5$) und das B-Untergitter eher zu $M_B = 0$ tendiert.

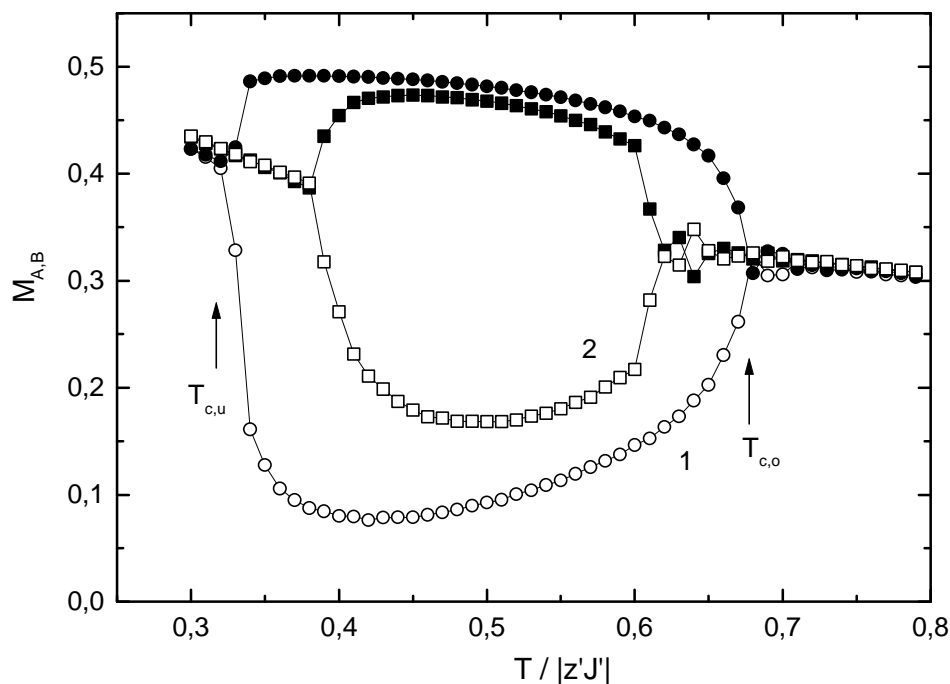


Abb. 4.5 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. $T/|z'\mathcal{C}\mathcal{C}|$, für $H/|z\mathcal{C}\mathcal{C}| = 1,0$ (1) und $1,01$ (2). Die Systemgröße war hier ausnahmsweise $30 \times 30 \times 30$. Die Pfeile markieren die beiden Temperaturen, $T_{c,u}$ und $T_{c,o}$, zwischen denen Ordnung auftritt.

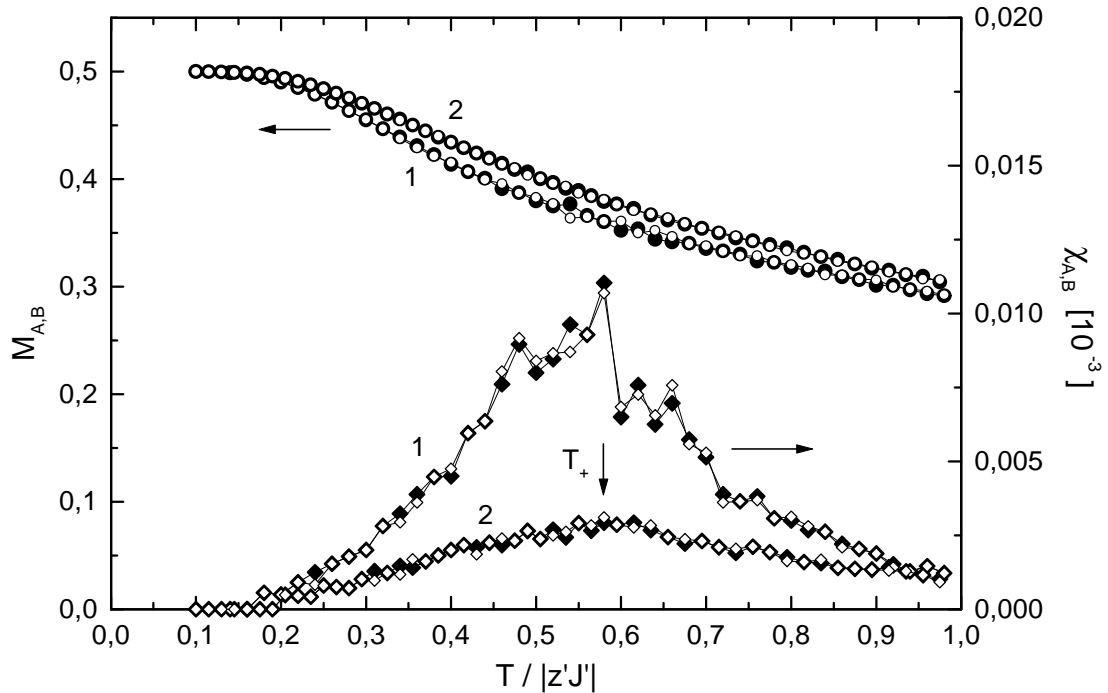


Abb. 4.6 Untergitter-Magnetisierungen, M_A (schwarze Symbole, teilweise verdeckt) und M_B (offene Symbole), und Suszeptibilitäten, χ_A und χ_B vs. $T/|z'J|$, für $H/|z\mathcal{C}| = 1,05$ (1) und 1,1 (2). Die Temperatur T_+ ist definiert durch das Maximum in $\chi_{A,B}(T)$.

Für weiter steigende Feldstärken verläßt man auch diese Region und bleibt für jede Temperatur in der paramagnetischen Phase (PM, vgl. Abb. 4.1). Abb. 4.6 zeigt zwei Kurvenpaare, $M_{A,B}$ vs. T und die dazugehörige Suszeptibilität, $\chi_{A,B}$ vs. T , für $H/|z\mathcal{C}| = 1,05$ und 1,1. Man beobachtet einerseits, daß die Untergitter nicht mehr zu unterscheiden sind, und andererseits, daß in der Suszeptibilität ein breites Maximum auftritt. Dessen Position definiert die Temperatur $T_+ = T(H_+)$. Das Maximum wird für steigende Feldstärken immer kleiner, während es sich dabei zu höheren Temperaturen verschiebt (vgl. Phasendiagramm, Abb. 4.1). Offensichtlich spiegelt dieses Maximum keinen Phasenübergang wider, sondern ebenfalls nur *nicht*-kritische Fluktuationen.

Um diesen Überblick abzurunden, folgt noch eine Darstellung der Untergitter-Magnetisierung als Funktion der Feldstärke. Abb. 4.7 zeigt $M_{A,B}$ vs. $H/|z\mathcal{C}|$ für $T = 0,27$ und $0,5 |z\mathcal{C}|$. Die erste Temperatur ist knapp unterhalb derjenigen des multikritischen Punktes (MCP, vgl. Abb. 4.1) bei $T_{\text{MCP}} \approx 0,3 |z\mathcal{C}|$. Hier ist ein deutlicher sprunghafter Anstieg von M_B bei $H = 1,0 |z\mathcal{C}| = H_{c0}$ zu sehen. Oberhalb dieser Feldstärke befindet man sich in der paramagnetischen Phase.

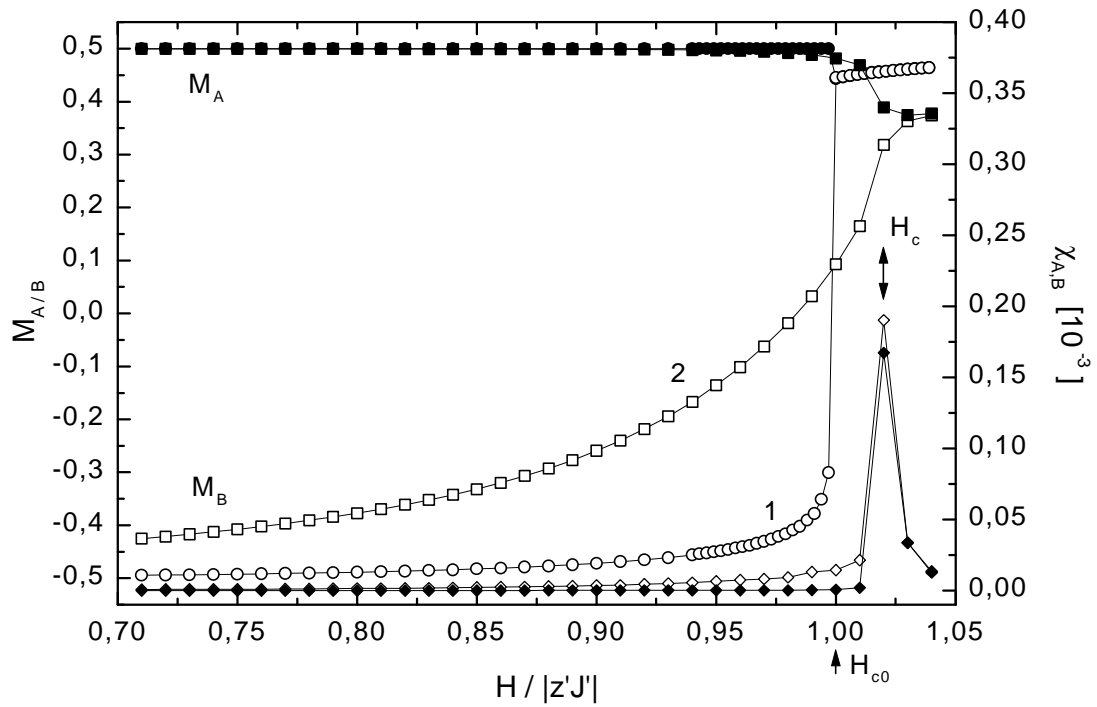


Abb. 4.7 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. $H/|zJ'|$, für $T = 0,27$ (1) und $0,5 |zJ'|$ (2). Die Untergitter-Suszeptibilitäten, χ_A (schwarze Rauten) und χ_B (offene Rauten), ist nur für $T = 0,5 |zJ'|$ gezeigt.

Die zweite Temperatur, $T = 0,5 |zJ'|$ liegt oberhalb von T_{MCP} , und zwar dort, wo sowohl die Überhöhung der Phasenlinie H_c , als auch die nicht-kritischen Fluktuationen bei H_c zu sehen sein müßten. Tatsächlich ist $H_c \approx 1,02 |zJ'| > H_{c0}$. Für diese Temperatur sind auch die Suszeptibilitäten, $\chi_{A,B}$, dargestellt, die jedoch keinerlei Hinweise auf ein anomales Verhalten bei $H = H_c(T)$ zeigen. Vielmehr ist nur ein schwacher Anstieg in χ_B und ein scharfes Maximum bei $H = H_c$ zu sehen. Auch diese Beobachtung korrespondiert mit den Experimenten an FeBr_2 . In Abb. 3.3 ist zu erkennen, daß der Realteil der Suszeptibilität, χ' ebenfalls nur einen Peak bei H_c zeigt, während die nicht-kritischen Fluktuationen dort hauptsächlich im Imaginärteil, χ'' auftauchen. Der Imaginärteil spiegelt dissipative Effekte im System wider und ist in einer Simulation nicht ohne weiteres zugänglich.

Es sind also im Wesentlichen drei Phänomene, die einer Erklärung bedürfen. Erstens, die nicht-kritischen Fluktuationen bei $H = H_c(T)$. Zweitens, die nicht-kritischen Fluktuationen bei $H = H_+(T)$, und drittens, die gegen das Feld stabilisierte Ordnung bei $H \geq H_{c0}$ und $T_{c,u} < T < T_{c,o}$ (Abb. 4.5). Für das erste kann hier eine Deutung angeboten werden. Für die zwei anderen Phänomene existiert zur Zeit kein handfestes Verständnis.

4.1.3 Deutung der Anomalie bei $H = H_-(T)$

Man betrachte die A-Untergitter-Magnetisierung, M_A (Abb. 4.3 und 4.4). Wie oben bereits erwähnt, bleibt in allen Fällen M_A im Temperaturbereich $0 < T < T_-$ konstant und gesättigt, wenn $H < H_{c0}$ ist. Es drängt sich der Verdacht auf, daß die beiden Untergitter in diesem Bereich entkoppelt sind. Während das A-Untergitter durch das Feld stabilisiert und gesättigt bleibt, wird sich das B-Untergitter wie ein zwei-dimensionaler Ferromagnet in einem effektiven Feld, H_{eff} , verhalten. Dieses effektive Feld setzt sich aus dem äußeren angelegten Feld, H , und einem Molekularfeld, nämlich dem Austauschfeld des A-Untergitters, H_A , zusammen. Wenn tatsächlich das A-Untergitter, bis auf wenige thermische Fluktuationen gesättigt ist, so gilt $H_A \approx z\mathcal{J}\mathcal{C} = -10,0$ K und somit $H_{\text{eff}} \approx H - |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$.

Diese Annahme läßt sich prüfen durch Vergleich mit den Eigenschaften eines zwei-dimensionalen Ferromagneten im Feld, H_{eff} . Abb. 4.8 zeigt zum einen zwei Paare von Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. T , bei $H = 0,995$ und $0,95 |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$. Passend zu diesen Feldstärken sind die Magnetisierungs-Kurven eines 2d-Ferromagneten im äußeren Feld, $H_{\text{eff}} = H - |z\mathcal{J}\mathcal{C}| = -0,005$ und $-0,05 |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, zu sehen.

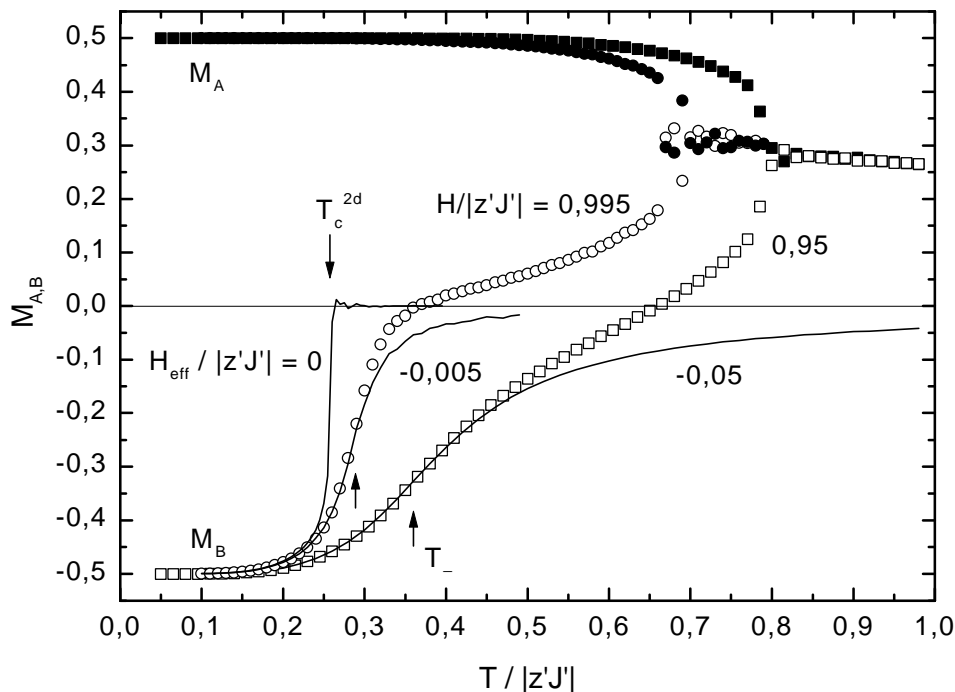


Abb. 4.8 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. $T/|z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, bei $H/|z\mathcal{J}\mathcal{C}| = 0,995$ und $0,95$ (Kreise und Quadrate). Ferner Magnetisierung eines 2d-Ferromagneten im effektiven Feld, $H_{\text{eff}}/|z\mathcal{J}\mathcal{C}| = H/|z\mathcal{J}\mathcal{C}| - 1 = 0, -0,005$ und $-0,05$ (Linien). $T_c^{2d} \approx 0,26 |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$ markiert den Phasenübergang im Nullfeld. Die zwei anderen Pfeile markieren den Wendepunkt in M_B bei $T = T_-$.

Man erkennt, daß tatsächlich im Bereich $0 < T < T_c$ die beiden Kurven des 2d-Ferromagneten mit den beiden B-Untergitter-Magnetisierungen gut übereinstimmen. Offensichtlich verhält sich das B-Untergitter in diesem Temperaturbereich wie ein entkoppeltes zwei-dimensionales System. Falls das effektive Feld, H_{eff} , verschwinden würde (d.h. $H_{\text{eff}} = 0$ bzw. $H = H_{c0}$), hätte man den Fall eines 2d-Ferromagneten im Nullfeld, welcher einen Phasenübergang bei $T = T_c^{2d}$ erfährt. Für dieses Modellsystem, mit $z \times J = 6 \cdot 0,7$ K, findet man in der Simulation $T_c^{2d} \approx 0,26 |z \mathcal{C} \mathcal{C}| \approx 2,6$ K ($k_B = 1$). Für $T > T_c^{2d}$ ist es paramagnetisch. Dieser Fall ist im 3-dimensionalen Modell nicht erreichbar, da der Antiferromagnet im Bereich $H_{\text{MCP}} < H < H_{c0}$ einen Spin-Flip durchführt. Dennoch kann die Temperatur der Anomalie, T_c , mit den Wendepunkten der $M(T, H_{\text{eff}})$ -Kurven des 2d-Ferromagneten assoziiert werden. Man kann folgern, daß die Anomalie von M_B die Zerstörung der 2d-ferromagnetischen Ordnung des quasi entkoppelten B-Untergitters widerspiegelt. Dies findet deutlich unterhalb des globalen drei-dimensionalen Phasenübergangs bei T_c^{3d} statt. Mit anderen Worten, die Anomalie ist Resultat des endlichen Temperaturintervalls, das zwischen T_c^{2d} und T_c^{3d} liegt. Falls die Breite dieses Intervalls, $\Delta T^{2d-3d} = T_c^{3d} - T_c^{2d}$, verringert wird, so schwächt sich auch die Anomalie ab [6]. Der Grenzfall, $\Delta T^{2d-3d} = 0$, entspricht einem Metamagneten vom Typ FeCl_2 (vgl. Abb. 2.7 (b)), in dem keine nicht-kritischen Fluktuationen auftreten. Der Wert ΔT^{2d-3d} kann über drei Parameter gesteuert werden:

1. Die Größe der antiferromagnetischen Kopplung, $z \mathcal{C} \mathcal{C}$ die per Definition das Spin-Flip-Feld, $H_{c0} = |z \mathcal{C} \mathcal{C}|$, beeinflusst. Ein großer Wert von H_{c0} bewirkt eine hohe Stabilisierung des A-Untergitters.
2. Die Größe der ferromagnetischen Kopplung, zJ , die linear in den Wert der kritischen Temperatur des entkoppelten B-Untergitters, T_c^{2d} , eingeht. Für das Dreiecksgitter gilt nämlich: $T_c^{2d} = 0,60683 zJ / k_B$ als Ergebnis einer Hoch-Temperatur-Reihenentwicklung [68]. Für die hier verwendeten Parameter wäre dies gerade: $T_c^{2d} = 0,60683 \cdot 6 \cdot 0,7$ K = 2,54869 K in relativ guter Übereinstimmung mit unserer Monte-Carlo-Simulation: $T_c^{2d} \approx 2,6$ K.
3. Die Anzahl der Wechselwirkungs-Nachbarn, $z \mathcal{C}$ Ein großer Wert von $z \mathcal{C}$ bewirkt, daß die antiferromagnetische Kopplung zwischen den Ebenen die thermischen Fluktuationen im Wesentlichen ausintegriert. Der Grenzfall $z \mathcal{C} \rightarrow \infty$ entspricht dann gerade dem Fall einer Molekularfeld-Näherung. Wenn $z \mathcal{C}$ zu klein ist ($z \mathcal{C} < 6$) dann zerstören die thermischen Fluktuationen den Effekt der Untergitter-Entkopplung.

Die Punkte 1 und 2 finden sich im Wesentlichen im Verhältnis der Wechselwirkungen, $|r| = zJ / |z\mathcal{C}|$, wieder. Wenn nämlich $|r|$ klein ist, so sieht man eine Anomalie und umgekehrt. Somit entsprechen diese Kriterien gerade denen, die von J.M. Kincaid et al. [3] und W. Selke [4] beschrieben wurden.

Ausgehend von den nicht-kritischen Fluktuationen bei $H = H_-$ kann der Versuch einer qualitativen Erklärung für die stabilisierte Ordnung bei $H \geq H_{c0}$ und $T_{c,u} < T < T_{c,o}$ unternommen werden. Falls nämlich in einem Metamagneten nicht-kritische Fluktuationen auftreten, hat dies zur Folge, daß durch die hohe Unordnung im Bereich $H_- < H < H_c$ die antiferromagnetische Phase entropiestabilisiert ist. Mit anderen Worten, die antiferromagnetische Phase kann aus Entropie-Gründen länger gegen angelegte Felder stabil bleiben [23].

Über die Anomalie bei $H = H_+$ kann zur Zeit nur spekuliert werden. Ein Vergleich der Abb. 4.5 und 4.6 suggeriert, daß die Anomalien der Suszeptibilitäten bei $H > H_c$ offenbar mit den entropiestabilisierten ferrimagnetischen Bereichen bei $H < H_c$ korrelieren. Wie bereits früher vermutet [23] sind die nicht-kritischen Fluktuationen bei H_+ auf lokale Ordnungsphänomene mit beiderlei AF-Registrierung zurückzuführen. Erst bei Verminderung des Feldes auf H_c vollzieht sich die Bifurkation zur Fernordnung. Es sei auch noch auf die Arbeit von W. Selke [4, 67] hingewiesen. Dort wird die Beobachtung gemacht, daß die H_+ -Linie je nach Wahl der Parameter eine beliebige Lage im H - T -Phasendiagramm einnehmen kann und nicht mit den übrigen Linien, H_- und H_+ , korreliert.

4.1.4 Ergänzende Simulationen

In diesem Zusammenhang stellen sich noch folgende Fragen: Erstens, gelten die oben gewonnenen Ergebnisse für jeden beliebigen Gittertyp oder ausschließlich für das Dreiecksgitter? Zweitens, wie entwickelt sich die Anomalie je nach Wahl der Parameter $|r|$ und $z\mathcal{C}$?

Dies soll anhand folgender Abbildungen geklärt werden. Wesentliche Teile der oben gezeigten Simulationen wurden auch auf einem quadratischen Gitter (mit $z = 4$ intraplanar nächsten Nachbarn) wiederholt. Die in Abb. 4.9 gezeigten Ergebnisse wurden mit denselben Parametern wie in Abb. 4.4 gewonnen ($zJ = 4,2$ K, $z\mathcal{C} = -10$ K, d.h. $|r| = 0,42$). Dies wird bei $z = 4$ und $z\mathcal{C} = 18$ erreicht durch $J = 1,05$ K und $\mathcal{C} = -(10/18)$ K.

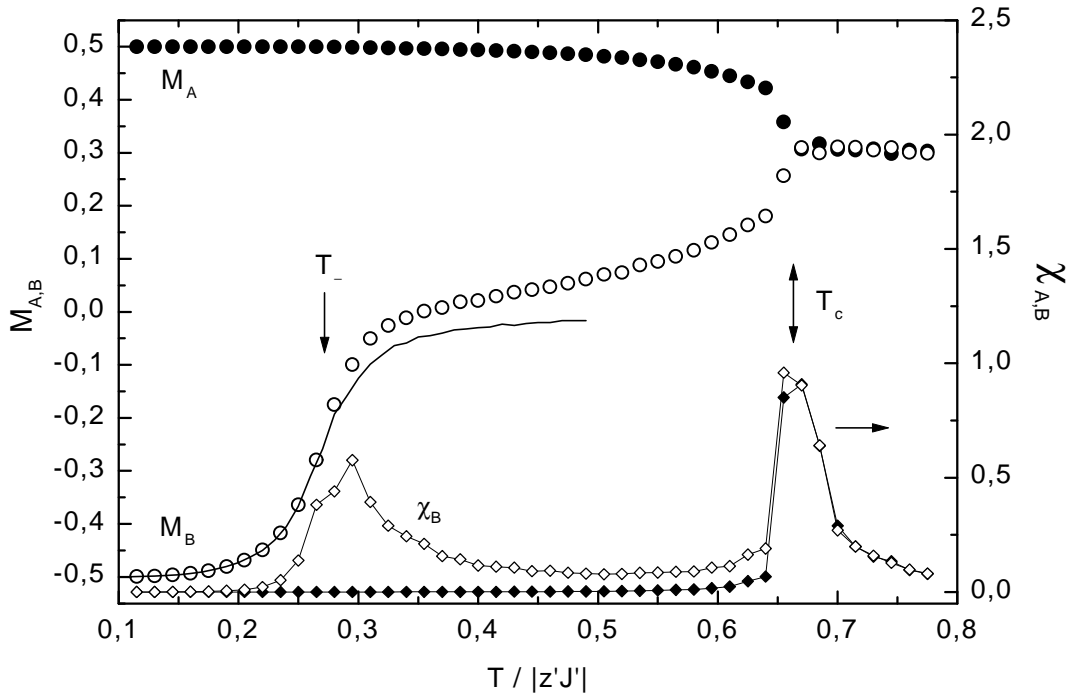


Abb. 4.9 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. $T/|z'J'|$, und Suszeptibilitäten, $\chi_{A,B}$ vs. $T/|z'J'|$, für ein Quadrat-Gitter ($20 \times 20 \times 20$) mit $zJ = 4 \cdot 1,05$ K und $z\mathcal{C} = -18 \cdot (10/18)$ K. Die angelegte Feldstärke ist $H = 0,995 |z\mathcal{C}|$. Ferner ist die Magnetisierung eines 2d-Ferromagneten im Feld, $H_{\text{eff}} = -0,005 |z\mathcal{C}|$, (durchgezogene Linie) zu sehen.

Es ist wieder eine deutliche Anomalie zu sehen. Die Temperaturen T_- und T_c sind ebenfalls ähnlich: $T_-/|z\mathcal{C}| = 0,29$ (Dreieck) \leftrightarrow $0,27$ (Quadrat); $T_c/|z\mathcal{C}| = 0,68$ (Dreieck) \leftrightarrow $0,66$ (Quadrat). Auch gilt, daß die Magnetisierung eines 2d-Ferromagneten im effektiven Feld, $H_{\text{eff}} = H - |z\mathcal{C}|$, gut den Verlauf von M_B im Bereich $0 < T < T_-$ reproduziert. Es dürfte anschaulich klar sein, daß sich auch für weitere Gittertypen die Physik nicht ändern wird. Die relevanten Parameter $|r|$ und $z\mathcal{C}$ können in jedem drei-dimensionalen Gitter geeignet gewählt werden.

In Abb. 4.10 sieht man eine Schar von Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. T , für verschiedene Werte von $|r|$ und $z\mathcal{C}$ bei einem konstantem Feld, $H = 0,9 |z\mathcal{C}|$ und konstantem $z\mathcal{C} = -10,0$ K. In Abbildung (a) wird die Koordinationszahl der antiferromagnetischen Wechselwirkung, $z\mathcal{C}$ in einem Bereich zwischen 2 und 26 variiert; $|r| = 0,42$ bleibt dabei konstant. Man erkennt, daß für $z\mathcal{C} = 2$ keine Anomalie auftritt. Für steigende Werte von $z\mathcal{C}$ wird die Anomalie immer ausgeprägter und die antiferromagnetische Phase wird zu höheren Temperaturen ausgedehnt. Offensichtlich stabilisiert ein hoher Wert für $z\mathcal{C}$ die antiferromagnetische Ordnung. Der Wendepunkt bleibt in M_B bei $T = T_-$ an derselben Temperatur für alle Werte $z\mathcal{C} > 2$. Lediglich T_c verschiebt sich.

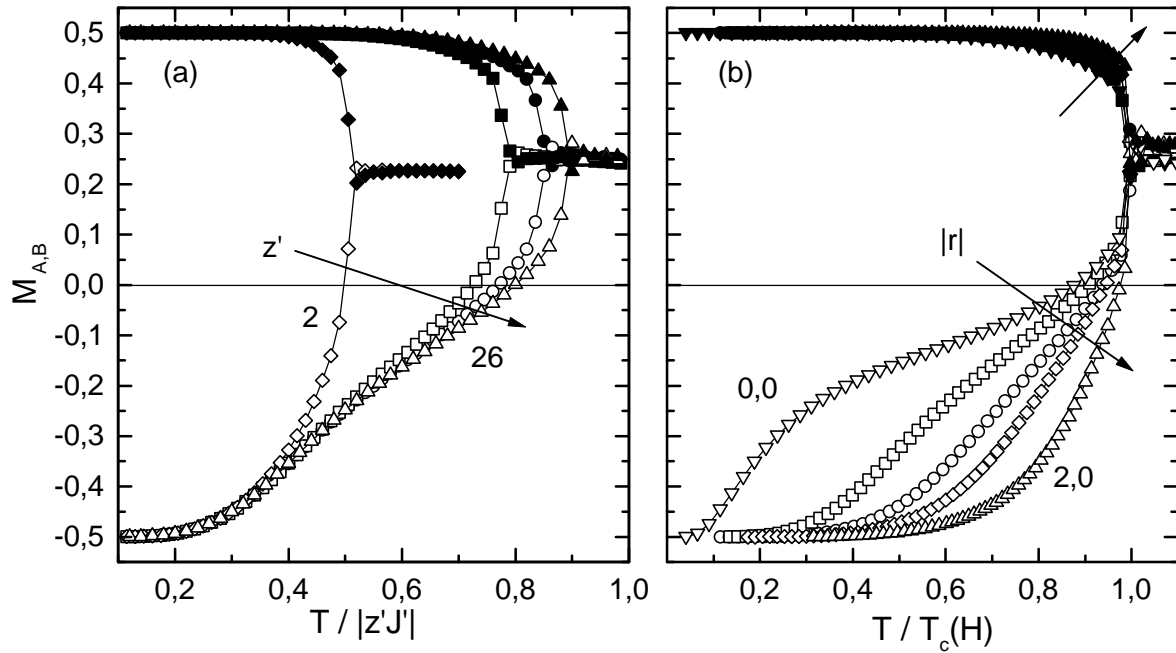


Abb. 4.10 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}$ vs. $T/|z'J'|$, für verschiedene Einstellungen der Parameter z' und $|r|$ bei konstantem Feld, $H = 0,9 |z'J'|$ und konstantem $z'J' = -10,0$ K. In (a) ist $|r| = 0,42 = \text{konst.}$ und $z' = 2, 10, 18$ und 26 . In (b) ist $z' = 18 = \text{konst.}$ und $|r| = 0; 0,42; 0,8; 1,2$ und $2,0$.

Abbildung 4.10 (b) zeigt hingegen den Fall, wenn $z' = 18$ konstant ist und die ferromagnetische Kopplung, zJ , variiert wird. Da $z'J' = -10,0$ K ebenfalls konstant ist, beeinflusst man mit der Größe zJ direkt den Wert für T_c^{2d} des B-Untergitters. Das Verhältnis $|r| = zJ / |z'J'|$ nimmt dabei die Werte $|r| = 0; 0,42; 0,8; 1,2$ und $2,0$ an. Wie erwartet wird die Anomalie mit sinkendem $|r|$ größer und der Abstand zwischen T und T_c nimmt zu. Dies entspricht gerade dem Zuwachs des oben eingeführten Abstands $\Delta T^{2d-3d} = T_c^{3d} - T_c^{2d}$.

Erstaunlich ist der Grenzfall $|r| = 0$. Hier ist zwar die interplanare antiferromagnetische Kopplung, $z'J' \neq 0$, jedoch existiert keine intraplanare Kopplung, d.h. $zJ = 0$. Dennoch ordnet das System in einen antiferromagnetischen Grundzustand und die Anomalie ist hier am ausgeprägtesten. Offenbar verhält sich das entkoppelte B-Untergitter über weite Temperaturbereiche wie ein Paramagnet, bei dem das Curie-Verhalten, $M \propto 1/T$, bei tiefen Temperaturen asymptotisch in eine Sättigung, $M = -0,5$, einmündet.

4.1.5 Zusammenfassung

Das Auftreten von Anomalien bei $H = H_c(T)$, welche in bestimmten 3d-Ising-Antiferromagneten beobachtet werden, kann auf eine Auftrennung des verschmierten 2d-Phasenübergangs des B-Untergitters vom globalen 3d-Phasenübergang beider Untergitter

zurückgeführt werden („2d-3d-Auftrennung“). Dies ist typisch für einen Antiferromagneten, dessen interplanare antiferromagnetische Kopplung groß ist im Vergleich zur intraplanaren ferromagnetischen Kopplung ($|r| < 0,6$ [3]). Ein hoher Wert für den interplanaren Austausch resultiert in einem hohen Wert für das Spin-Flip-Feld, $H_{c0} = -z\mathcal{J}$. Dies bewirkt eine starke Stabilisierung des A-Untergitters. Somit verhält sich das B-Untergitter wie ein 2d-Ferromagnet in einem effektiven Feld, $H_{\text{eff}} = H + H_A$, wobei H_A das Mean-Field des A-Untergitters ist, das auf das B-Untergitter wirkt. Die Gültigkeit dieser Näherung hängt stark von der Anzahl der antiferromagnetisch gekoppelten Nachbarn, $z\mathcal{J}$ ab. Ein hoher Wert für $z\mathcal{J}$ bewirkt eine Unterdrückung der thermischen Spin-Fluktuationen.

4.2 Das klassische Heisenberg-Modell

Wie im vorherigen Kapitel 4.1 dargestellt worden ist, können wesentliche Züge des Phasendiagramms von FeBr_2 mit einem einfachen Ising-Modell beschrieben werden. Insbesondere das Auftreten der nicht-kritischen Fluktuationen bzw. der Anomalie in der Magnetisierung kann im Rahmen des Ising-Modells hinreichend verstanden werden. Andererseits bleibt nach wie vor das Auftreten des zusätzlichen Phasenübergangs bei $H_1(T)$ im FeBr_2 ungeklärt. Die experimentelle Beobachtung, daß dort transversale Komponenten ausschlaggebend sind, motiviert den Übergang zum klassischen Heisenberg-Modell.

4.2.1 Grundlagen

Das klassische Heisenberg-Modell kann als Erweiterung des Ising-Modells verstanden werden, und zwar in dem Sinne, daß der Freiheitsgrad, f , der magnetischen Momente auf $f = 3$ erweitert wird. Somit betrachtet man nun 3-komponentige Vektoren, \mathbf{S} , mit der Länge $|\mathbf{S}| = 1$ in einem 3-dimensionalen Gitter, $\mathbf{S}(i, j, k)$.

Die technischen Grundlagen für die Simulation eines solchen Systems sind im Wesentlichen die gleichen wie im Fall des Ising-Modells (Kap. 4.1.1). Sowohl das Konzept des Gitters mit den virtuellen Spins, als auch die periodischen Randbedingungen sowie der Metropolis-Algorithmus bleiben bestehen. Der Hamilton-Operator lautet hier:

$$\begin{aligned} H = & -J \sum_{\langle i, j \rangle} (S_i^z S_j^z + \mathbf{h}(S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y)) - J' \sum_{\langle i, j \rangle} (S_i^z S_j^z + \mathbf{h}(S_i^x S_j^x + S_i^y S_j^y)) \\ & - D \sum_i (S_i^z)^2 - \sum_i \mathbf{H} \cdot \mathbf{S}_i \end{aligned} \quad (4.6)$$

wobei auch hier die Substitutionen, $g\mathbf{m}_B\mathbf{m}_0H \rightarrow H$ und $k_B T \rightarrow T$, gelten. Die Zahl \mathbf{h} wurde im Kap. 2.1 bereits eingeführt. Sie trägt einer Anisotropie in der Spin-Spin-Wechselwirkung Rechnung. Für die hier durchgeführten Simulationen wurde durchgehend der experimentelle Wert für FeBr_2 verwendet, nämlich $\mathbf{h} = 0,78$ [11]. Die Parameter J und J' sind die Kopplungskonstanten zu den intra-planaren $z = 6$ Nachbarn und den inter-planaren $z' = 20$ Nachbarn. D ist die Einzelionenanisotropie-Konstante und \mathbf{H} das vektorielle angelegte Feld.

Ein wesentlicher Unterschied zu den Simulationen beim Ising-Modell betrifft die Auswahl des Test-Spins im Metropolis-Algorithmus. Während im Ising-Fall der Spin lediglich geflippt wird, d.h. $S \rightarrow -S$, ist dies im Heisenberg-Fall etwas komplizierter. Es gibt zwei verschiedene Möglichkeiten:

Entweder man ermittelt einen zufälligen neuen Spin-Vektor auf dem Einheitskreis, \mathbf{S}' , und bildet dann die Energie-Differenz, $\Delta E = E(\mathbf{S}') - E(\mathbf{S})$, oder man rotiert den „alten“ Vektor, \mathbf{S} , um ein zufälliges endliches Kreisbogenstück, $\delta\mathbf{S}$, und errechnet $\Delta E = E(\mathbf{S}+\delta\mathbf{S}) - E(\mathbf{S})$.

Für diese Arbeit wurde die erste Variante benutzt. Das heißt, für jede Metropolis-Abfrage an einem Gitterplatz $\mathbf{S}(i, j, k)$ wird ein neuer Test-Spin, \mathbf{S}' , nach folgendem Schema berechnet (*Marsaglia* [65]):

1.) Ziehe Paare von Zufallszahlen $(y_1, y_2) \in (-1, 1)^2$, bis $r^2 \equiv y_1^2 + y_2^2 \leq 1$.

2.) Die Größen

$$x_1 = 2y_1\sqrt{1-r^2}, \quad x_2 = 2y_2\sqrt{1-r^2}, \quad x_3 = 1-2r^2 \quad (4.7)$$

ergeben die kartesischen Koordinaten von gleichverteilten Vektoren auf dem Einheitskreis. Dies ist außerordentlich wichtig, da eine nicht-gleichverteilte Wahrscheinlichkeit von Zufallsvektoren den Effekt einer zusätzlichen Anisotropie hätte.

4.2.2 Ergebnisse

Das simulierte System muß folgende Bedingungen erfüllen:

- 1.) Es muß sich nach wie vor um einen *Metamagneten* handeln, d.h. die Einzelionenanisotropie muß so hoch sein, daß man bei tiefen Temperaturen einen metamagnetischen Übergang in einem Feld-Scan sieht.
- 2.) Die Anomalie in den Untergitter-Magnetisierungen, oder mit anderen Worten, die nicht-kritischen Fluktuationen müssen vorkommen.
- 3.) Es müssen auch transversale Magnetisierungs-Komponenten meßbar sein. Das heißt, daß die Einzelionenanisotropie nicht zu groß sein darf.

Diese Bedingungen werden relativ gut mit folgenden Parametern erfüllt:

$$J = 0,7 \text{ K}, \quad J\zeta = -0,5 \text{ K}, \quad z = 6 \quad \text{und} \quad z\zeta = 20 \quad (\text{dies ist identisch zu denen in Kap. 4.1.2}).$$

Und ferner:

$$\mathbf{h} = 0,78 \quad \text{und} \quad D = 35 \text{ K} = 3,5 \cdot |z\zeta J\zeta|.$$

Im Vergleich dazu gilt für FeBr_2 [37]: $D \approx 1,6 \cdot |z\zeta J\zeta|$. Der in der Simulation etwas höher gewählte Wert dient dazu, die Kurvenprofile klarer hervortreten zu lassen. Dennoch gilt, daß D in der Größenordnung der übrigen Austauschparameter bleibt.

Abbildung 4.11 zeigt den metamagnetischen Phasenübergang in den z -Komponenten der Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}^z$ vs. $H^z / |z\zeta J\zeta|$, bei $T = 0,15 \cdot |z\zeta J\zeta|$. Das System hatte die

Größe $20 \times 20 \times 20$ und es wurde über $3 \cdot 10^4$ MCS relaxiert und über $3 \cdot 10^4$ MCS gemittelt. Das System zeigt einen deutlichen Phasenübergang 1. Ordnung von der antiferromagnetischen zur paramagnetischen Phase bei $H^z / |z\mathcal{J}\mathcal{C}| \approx 1,01$. Es handelt sich somit um einen Metamagneten. Der Übergang findet bei einer etwas höheren Feldstärke als das Spin-Flip-Feld bei $T = 0$, $H_{c0} = |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, statt. Dies ist ein Artefakt der Simulationstechnik speziell bei tiefen Temperaturen, wenn kaum thermische Anregungen vorkommen. Befindet sich nämlich das System anfänglich im antiferromagnetischen Zustand und erreicht dann die Feldstärke $H = H_{c0}$, so überwiegt für einen einzelnen abgefragten Spin die Austauschenergie zu seinen Nachbarn, $E_{\text{WW}} = -zJ - |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, im Vergleich mit der Zeemann-Energie, $E_H = -H_{c0} = -|z\mathcal{J}\mathcal{C}|$. Erst bei einer höheren Feldstärke, $H > H_{c0}$, können dann einzelne Spins flippen.

Abbildung 4.12 zeigt die Kurven der Untergitter-Magnetisierungen, $M^z_{A,B}$ vs. $T / |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, bei $H^z / |z\mathcal{J}\mathcal{C}| = 0$ und $0,95$ (vgl. Ising-Modell, Abb. 4.3, Kurve 1 und 4). Die Nullfeldkurve zeigt den erwarteten Phasenübergang eines Zwei-Untergitter-Antiferromagneten. Unterhalb von $T = T_N \approx 0,9 \cdot |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$ geht das System in einen langreichweitigen antiferromagnetischen Zustand über, wobei im Grenzfall $T \rightarrow 0$ die Untergitter-Magnetisierungen den Sättigungswerten, $M^z_A \rightarrow +0,5$ und $M^z_B \rightarrow -0,5$, zustreben. Wird ein endliches Feld, $H^z / |z\mathcal{J}\mathcal{C}| = 0,95$, angelegt, so haben die Untergitter-Magnetisierungen einen ähnlichen Verlauf wie beim Ising-Modell (Abb. 4.3).

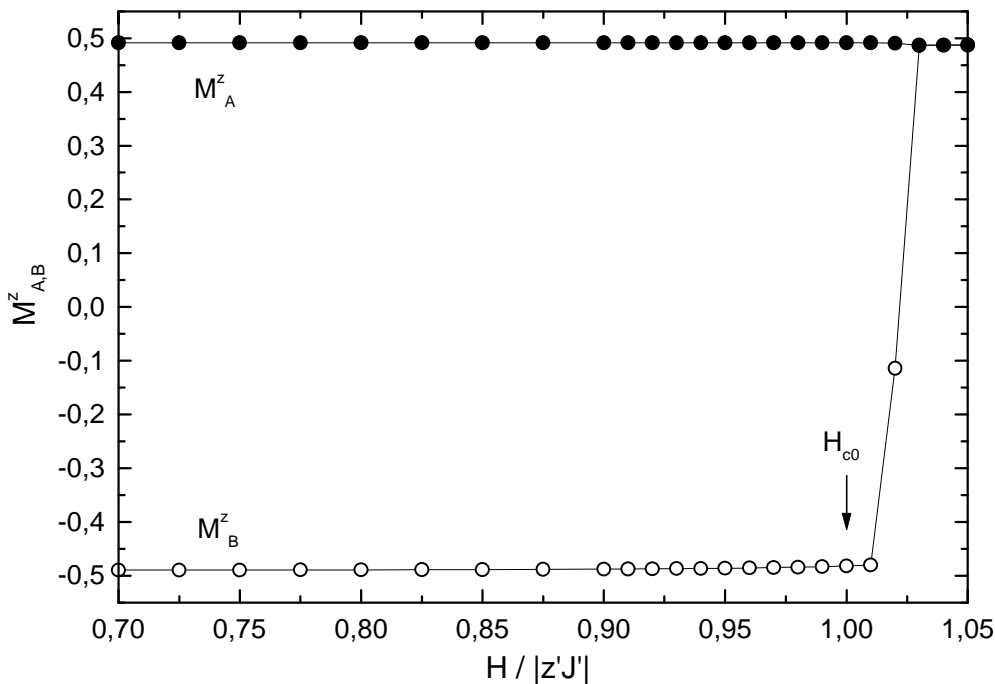


Abb. 4.11 Untergitter-Magnetisierungen, $M^z_{A,B}$ vs. $H^z / |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$, bei $T = 0,15 \cdot |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$. Das System ($20 \times 20 \times 20$) zeigt einen Phasenübergang 1. Ordnung bei $H^z \approx H_{c0} = |z\mathcal{J}\mathcal{C}|$.

Man erkennt wieder das bereits bekannte asymmetrische Verhalten der beiden Kurven $M_A^z(T)$ und $M_B^z(T)$. Dabei hat B-Untergitter-Magnetisierung einen Wendepunkt bei $T = T_- \approx 0,3 \cdot |z'J|$. Das bedeutet, daß in diesem System die Anomalie bzw. die nicht-kritischen Fluktuationen zu beobachten sind. Dies revidiert die Behauptung einiger Autoren [5], daß jene Anomalie nicht in klassischen Heisenberg-Systemen mit nur endlicher Anisotropie (d.h. $D \sim |z'J|$) zu finden ist. Bei $T = T_c \approx 0,47 \cdot |z'J|$ vollziehen beide Untergitter einen Phasenübergang in die paramagnetische Phase. Auch hier beobachtet man störende Wechsel der Untergitter-Identität aufgrund der kritischen Fluktuationen in der Nähe von T_c .

Im Gegensatz zum Ising-Fall hat $M_A^z(T)$ eine endliche Steigung. Dies wird erwartet, denn in einem klassischen Heisenberg-System können beliebig kleine Auslenkungen des Spin-Vektors aus der axialen Position unternommen werden. Somit wird die kollineare axiale Spin-Ordnung sehr leicht durch thermische Fluktuationen zerstört. Dies wirkt sich auch auf die Übergangstemperaturen aus. Die Werte für T_c sind deutlich niedriger als beim Ising-Modell (vgl. Abb. 4.3).

Bisher sind die transversalen Magnetisierungs-Komponenten, M^x und M^y , nicht gezeigt worden. Im Fall von $H^x = 0 = H^y$ zeigen sämtliche transversale Komponenten nur Rauschen ($\sqrt{\langle (M_{A,B}^{x,y})^2 \rangle} \approx 5 \cdot 10^{-5}$), d.h. im verschwindenden transversalen Feld existiert keine

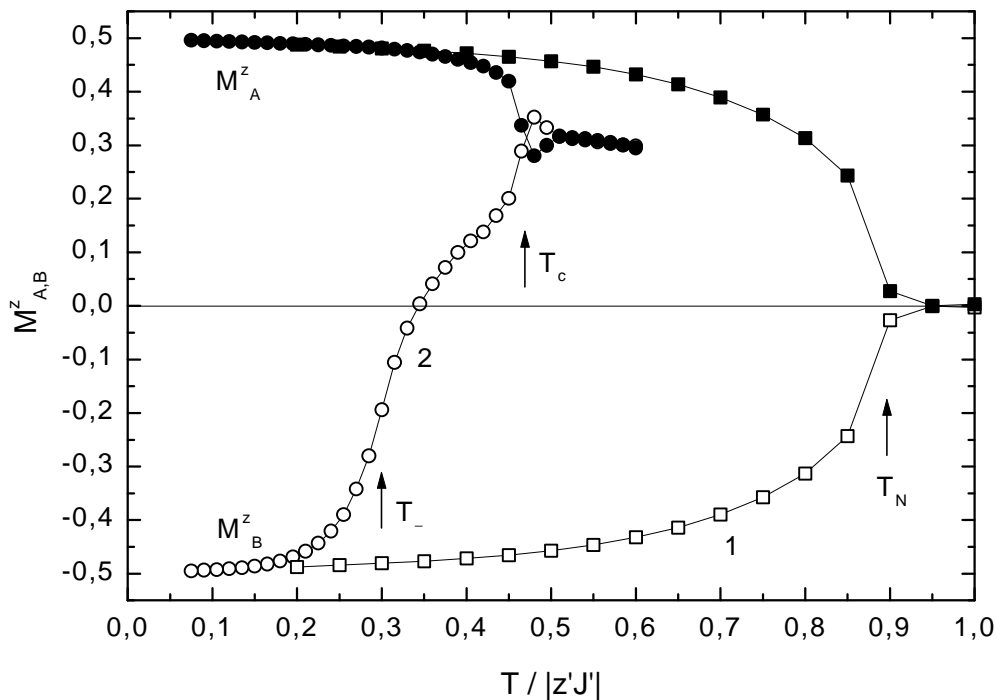


Abb. 4.12 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}^z$ vs. $T/|z'J|$, bei $H^z/|z'J| = 0$ (1) und 0,95 (2). Die Pfeile markieren $T_N = T_c(0)$, den Wendepunkt in M_B^z vs. T und den Phasenübergang bei $T = T_c$.

magnetische Ordnung in den transversalen Magnetisierungs-Komponenten. Dies ändert sich durch Anlegen eines endlichen Feldes H^x , zusätzlich zum axialen Feld H^z . Dies ist äquivalent zu einem „Verkippen der Probe“ um einen Winkel \mathbf{q} zum angelegten Feld, \mathbf{H} .

Abbildung 4.13 zeigt die z -Komponente der Untergitter-Magnetisierung, $M^z_{A,B}$ vs. T unter den gleichen Bedingungen ($H^z = 0,95 \cdot /z\mathcal{G}\mathcal{C}/ = \text{konst.}$), jedoch mit $\mathbf{q} = 10^\circ, 20^\circ$ und 30° , d.h. mit $H^x = \tan\mathbf{q} \cdot H^z \approx 0,17; 0,35$ und $0,55 \cdot /z\mathcal{G}\mathcal{C}/$. Es gelte $H^y = 0$. Die Auswirkung auf die Untergitter-Magnetisierungen ist geringfügig. Eine leichte Verschiebung des Wendepunktes in $M^z_B(T)$ bei $T = T_c \mathcal{C}$ und der kritischen Temperatur, $T_c \mathcal{C}$ ist zu beobachten. Die Größen tragen in Anlehnung an die Notation in Kap. 3.1 einen Strich. Im Gegensatz zu der Beobachtung aus den Magnetisierungs-Messungen an FeBr_2 (Abb. 3.10), verschiebt sich die charakteristische Temperatur der nicht-kritischen Fluktuationen, $T_c \mathcal{C}$ bei Erhöhung des Winkels \mathbf{q} zu niedrigeren Werten. Somit kann der experimentelle Befund, nämlich die Erhöhung von $T_c \mathcal{C}$ nicht mit diesen Simulationsergebnissen erklärt werden.

Abbildung 4.14 zeigt die x -Komponente der Untergitter-Magnetisierung, $M^x_{A,B}$ vs. T . Die Werte sind um ca. eine Größenordnung kleiner als die z -Komponenten. Mit steigendem \mathbf{q} wächst erwartungsgemäß $M^x_{A,B}$ an. Dies bedeutet, daß das transversale Feld, H^x , die Untergitter entlang des Feldes ausrichtet. Dies wirkt sich jedoch unterschiedlich auf die beiden Untergitter aus. Das B-Untergitter ist stärker als das A-Untergitter magnetisiert. Bei $T = T_c \mathcal{C}$ ist der Phasenübergang zur paramagnetischen Phase sichtbar. Die y -Komponente, $M^y_{A,B}$, zeigt lediglich Rauschen um die Null-Linie. Insgesamt ist kein zusätzlicher Phasenübergang in beiden transversalen Komponenten zu erkennen.

Abbildung 4.15 stellt die Differenz der x -Komponenten dar. Die Größe $(M^x_A - M^x_B)^2$ ist dabei direkt vergleichbar zu der Streuintensität des $(0,0, \pm 1/2)$ -Bragg-Reflexes bei der elastischen Neutronenstreuung an FeBr_2 (Kap. 3.2). Dieser spiegelt den transversalen antiferromagnetischen Ordnungsparameters wider. Man stellt eine deutliche Ähnlichkeit zu den Kurven aus dem Experiment (vgl. Abb. 3.19) fest. Mit fallender Temperatur wächst $(M^x_A - M^x_B)^2$ zunächst unterhalb von $T = T_c \mathcal{C}$ an, erreicht ein Maximum bei $T = T_{\text{max}}$ und sinkt ab. Die Temperaturen T_{max} und $T_c \mathcal{C}$ stimmen nicht überein. Abgesehen von der qualitativen Ähnlichkeit der Kurvenprofile aus der Simulation und dem Experiment, findet man auch einige Unterschiede. So ist hier eine Sättigung zu $T \rightarrow 0$ hin nicht zu beobachten. Ferner zeigen die Kurven im Bereich $T_{\text{max}} < T < T_c \mathcal{C}$ eine andere Krümmung als im Experiment.

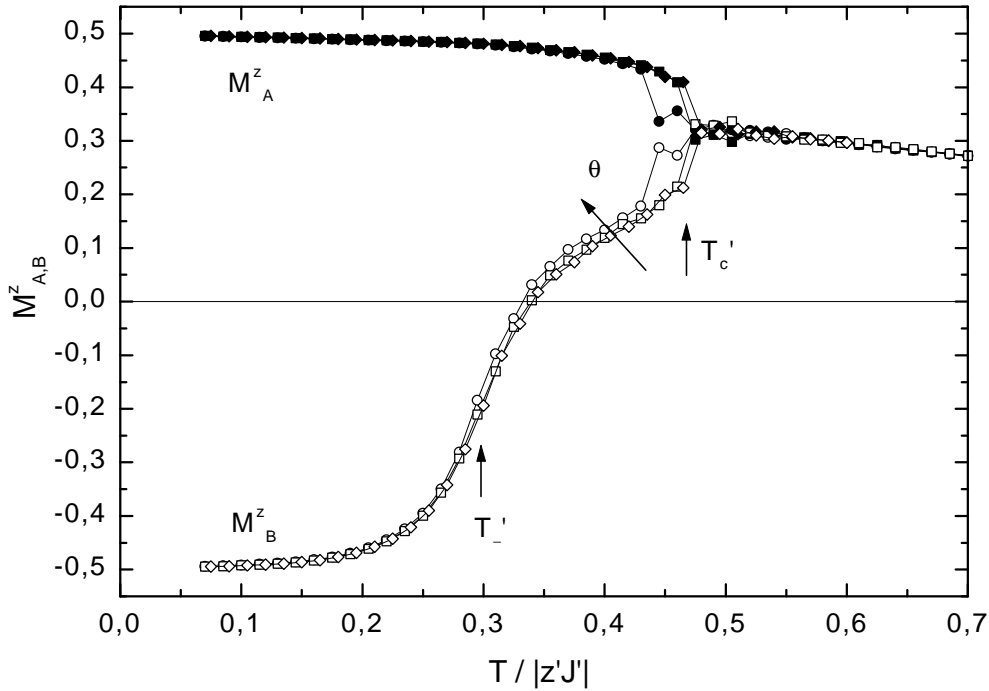


Abb. 4.13 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}^z$ vs. $T/|z'J'|$, bei $H^z = 0,95 \cdot |z'J'|$ und $q = 10^\circ$ (Rauten), 20° (Quadrate) und 30° (Kreise). D.h. $H^x = \tan q \cdot H^z \approx 0,17; 0,35$ und $0,55 \cdot |z'J'|$. Der Pfeil bei $T = T_-'$ markiert den Wendepunkt in $M_B^z(T)$ und bei $T = T_c'$ findet der globale Phasenübergang statt.

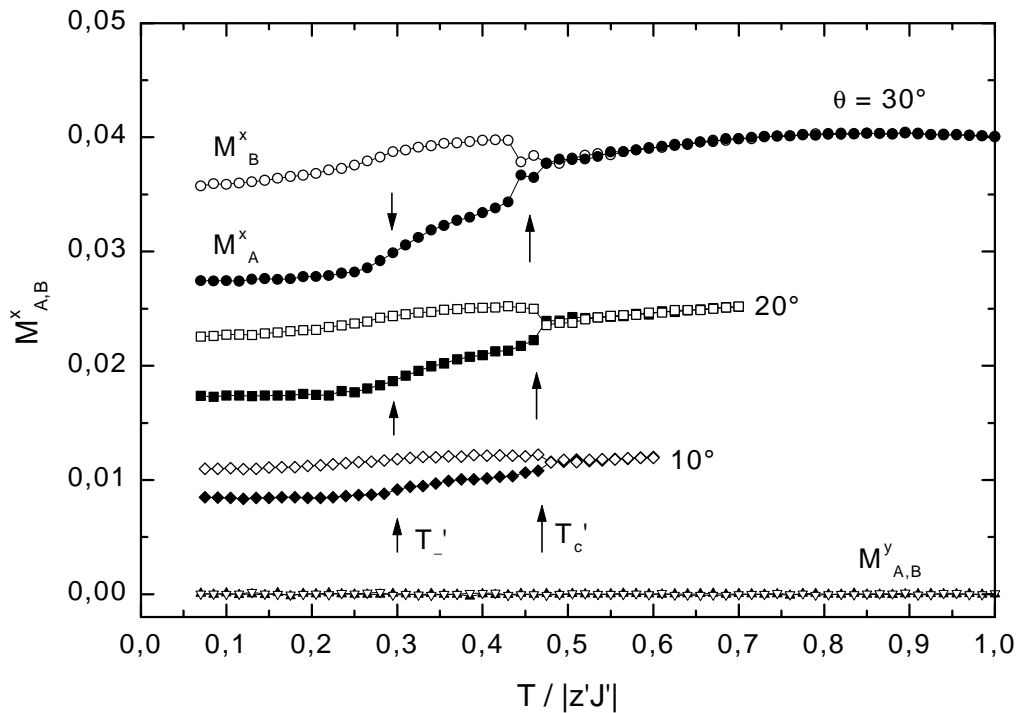


Abb. 4.14 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}^x$ vs. $T/|z'J'|$, bei $H^z = 0,95 \cdot |z'J'|$ und $q = 10^\circ, 20^\circ$ und 30° . Die Temperaturen $T = T_-'$ und T_c' sind durch den Verlauf der z-Komponenten definiert. Ferner ist $M_{A,B}^y$ exemplarisch für den Fall $q = 30^\circ$ abgebildet.

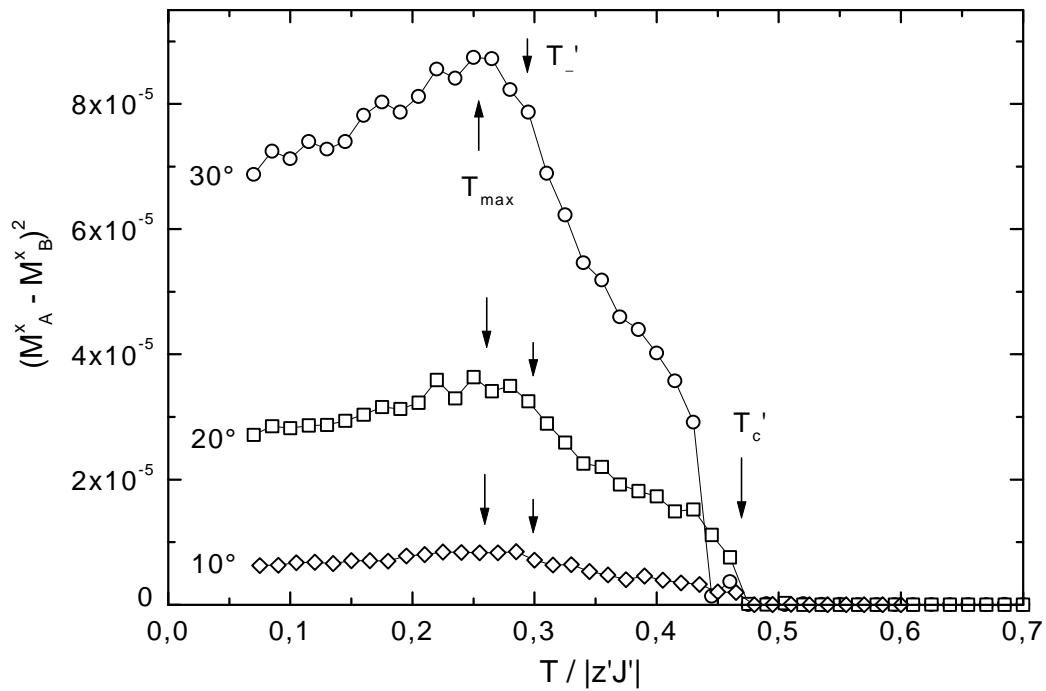


Abb. 4.15 $(M_A^x - M_B^x)^2$ vs. $T/|z\theta c|$, bei $H^z = 0,95 \cdot |z\theta c|$ und $q = 10^\circ, 20^\circ$ und 30° . Das Maximum der Kurven liegt bei $T = T_{\max}$. Ferner sind auch die Temperaturen $T = T_c$ und T_c' durch Pfeile markiert.

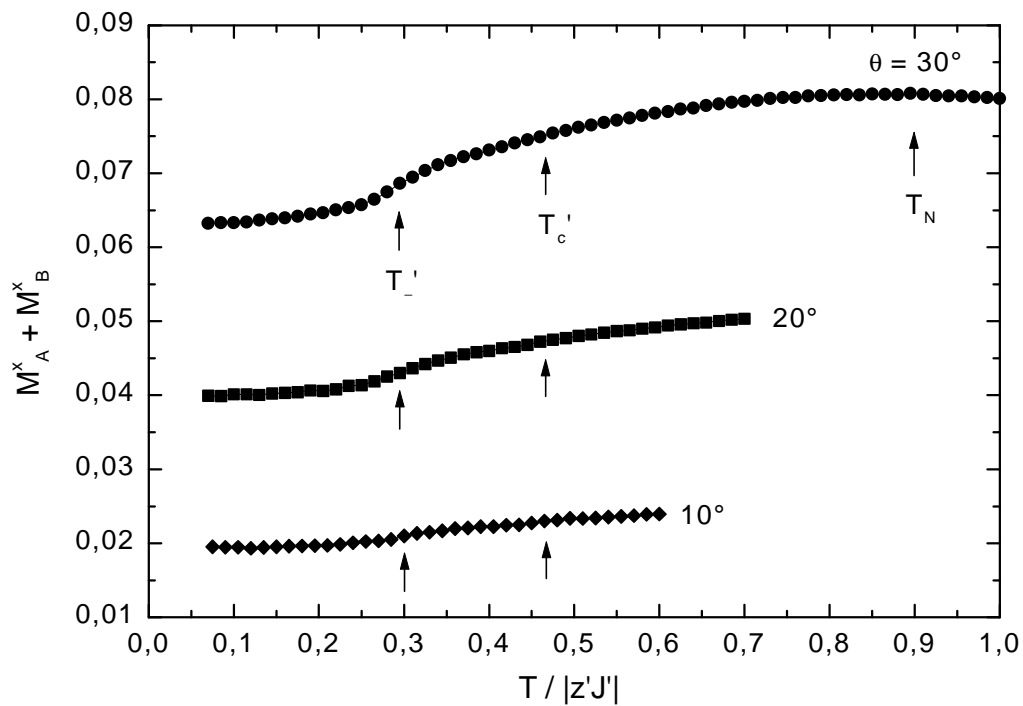


Abb. 4.16 $M^x = M_A^x + M_B^x$ vs. $T/|z\theta c|$, bei $H^z = 0,95 \cdot |z\theta c|$ und $q = 10^\circ, 20^\circ$ und 30° . Die Temperaturen $T = T_c$ und T_N sind durch Pfeile markiert.

Die Abbildung 4.16 zeigt schließlich die entsprechenden Kurven von $M^x = M_A^x + M_B^x$ vs. $T/|z\mathcal{G}\mathcal{C}|$. Diese Größe ist äquivalent zu dem ferromagnetischen transversalen Ordnungsparameter, der in der Neutronenstreuung als Intensität des $(0,0,\pm 1)$ -Bragg-Reflexes auftaucht. Zu Vergleichen ist der Verlauf von $I(0,0,-1)$ aus dem Experiment (Abb. 3.19) mit der Simulationskurve, M^x vs. T , mit $\mathbf{q} = 30^\circ$. Zwar taucht bei beiden Kurven eine Art Stufe in der Nähe von $T = T_c$ auf, jedoch genau umgekehrt. Außerdem ist M^x vs. T äquivalent zu der transversalen Magnetisierung, M_{pl} vs. T , aus den SQUID-Messungen (Abb. 3.8). Bei näherer Betrachtung erweisen sich die Magnetisierungskurven $M^x(T)$ in guter Näherung als proportional zu $H^x = H^z \tan \mathbf{q}$. Folglich kann man sie im Wesentlichen auf das feldinduzierte Moment, $M^x = c_\perp H^x$, zurückführen. Der bei $T_1(H)$ im Experiment beobachtete Sprung der Magnetisierung ist im Simulationsmodell nicht enthalten.

4.2.3 Molekularfeld-Näherung

Nun stellt sich unweigerlich die Frage, ob die Argumente, die im Kap. 4.1.3 aufgeführt wurden, auch beim klassischen Heisenberg-Modell gelten, oder mit anderen Worten, ob die oben beschriebene „2d-3d-Auftrennung“ der Phasenübergänge auch hier zu sehen ist.

Wegen der endlichen Steigung der Kurve $M_A^z(T)$ (Abb. 4.12) folgt sofort, daß die einfache Näherung, $H_{\text{eff}} = H - H_A \gg H - |z\mathcal{G}\mathcal{C}|$, hier nicht mehr gelten kann. Dabei ist H das angelegte Feld an das 3-dimensionale System und H_A ist das Mean-Field (oder Austauschfeld) des A-Untergitters, das auf das B-Untergitter wirkt. Der Verlauf von $M_A^z(T)$ läßt sich für tiefe Temperaturen relativ gut durch eine lineare Funktion der Form, $M_{\text{fit}} = 0,5 + r \cdot T$, beschreiben. Dabei ist $M_{\text{fit}}(T=0)$ gerade der Sättigungswert der A-Untergitter-Magnetisierung, $M_{A, \text{sätt}}^z = 0,5$. Es folgt: $r = -5,79 \cdot 10^{-3} \text{ 1/K}$. Für Werte $T \leq 0,3 \cdot |z\mathcal{G}\mathcal{C}|$ beträgt der Fehler weniger als 0,3 %. Für größere Temperaturen bricht diese Näherung zusammen. Die Temperaturabhängigkeit erklärt sich vermutlich aus der Spinwellenanregung in den quasi-zweidimensionalen Untergittern. Verwendet man diese lineare Temperaturabhängigkeit, so folgt für das Molekularfeld des A-Untergitters:

$$H_A^z = \mathbf{I} \cdot M_A^z = \mathbf{I} \times (M_{A, \text{sätt}}^z - r \cdot T), \quad (4.8)$$

wobei $\mathbf{I} = -20 \text{ K}$ für unsere Wahl der Parameter. Somit ergibt sich: $H_A^z = -|z\mathcal{G}\mathcal{C}| + s \cdot T$, wobei $s = \mathbf{I} \cdot r = 0,1158$ ist. Das B-Untergitter sollte durch einen 2-dimensionalen Heisenberg-Ferromagneten in dem effektiven Feld, H_{eff} , zu beschreiben sein, wobei

$$H_{\text{eff}} = H^z - |z\mathcal{G}\mathcal{C}| + s \cdot T. \quad (4.9)$$

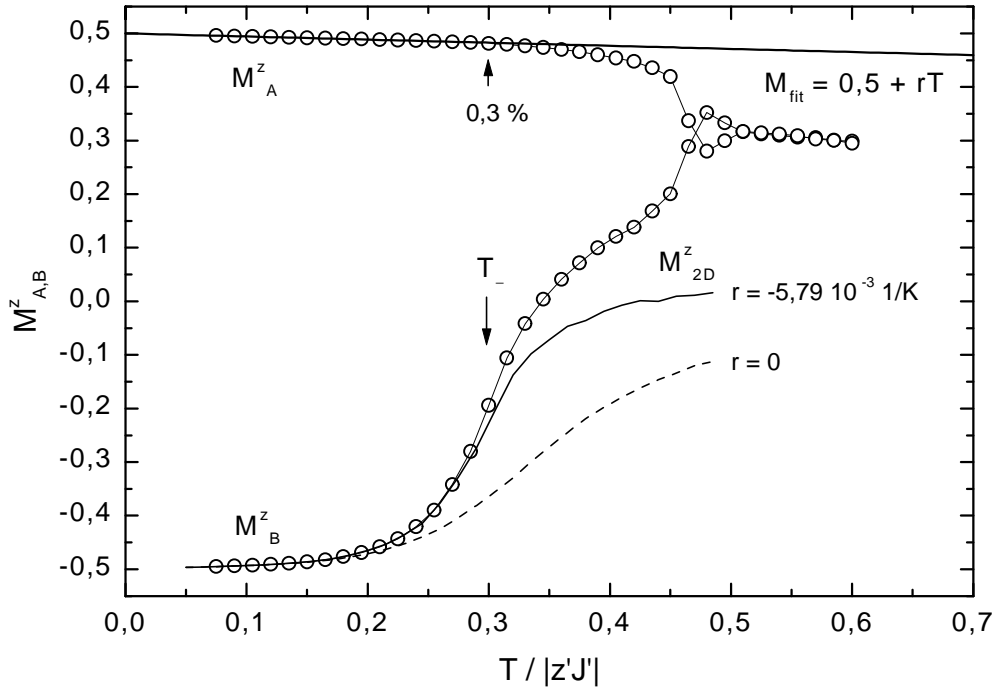


Abb. 4.17 Untergitter-Magnetisierungen, $M_{A,B}^z$ vs. $T/|z'J'|$, bei $H^z = 0,95 \cdot |z'J'|$ und $H^x = 0 = H^y$. M_A^z vs. T wird relativ gut durch die Funktion $M_{\text{fit}} = 0,5 + r \cdot T$ angepaßt. Bei $T = 0,3 \cdot |z'J'|$ beträgt der Fehler 0,3 %. Zu sehen ist auch die Magnetisierung, M_{2D}^z , eines 2-dimensionalen Ferromagneten in dem effektiven Feld, $H_{\text{eff}}^z = H^z - |z'J'| + s \cdot T$, wobei $s = -20 \cdot r = 0,1158$ (durchgezogene Linie). Zum Vergleich: M_{2D}^z für den Fall, daß $r = 0$ ist (gestrichelte Linie).

Die Abb. 4.17 zeigt, daß dies relativ gut für Temperaturen, $T < T_-$, zutrifft (vgl. Ising-Fall, Abb. 4.8). Falls keine Temperaturabhängigkeit für die A-Untergitter-Magnetisierung angesetzt wird, so ergibt sich die gestrichelte Linie in Abb. 4.17. Diese weicht deutlich stärker vom Verlauf der B-Untergitter-Magnetisierung, $M_B^z(T)$, ab. Der obige Ansatz mit $r \neq 0$ ist somit notwendig, um das auf das B-Untergitter wirkende Molekularfeld korrekt zu beschreiben.

4.2.4 Zusammenfassung

Mit den Parametern, $z \times J = 6 \cdot 0,7$ K, $z \times J' = -20 \cdot 0,5$ K, $\mathbf{h} = 0,78$ und $D = 3,5 \cdot |z'J'|$ wird ein Metamagnet mit einem klassischen Heisenberg-Modell beschrieben. Dieser zeigt sowohl den metamagnetischen Phasenübergang bei tiefen Temperaturen als auch die Anomalie in der z -Komponente der B-Untergitter-Magnetisierung. Durch die Wahl der Parameter wird offenbar im Vergleich mit dem Ising-Modell eine realistischere Beschreibung für FeBr_2 getroffen.

Mit schrägem Feld wird die transversale Magnetisierungs-Komponente, die entlang des transversalen Feldes zeigt, magnetisiert. Durch die unterschiedlich starke Ausrichtung der A- und B-Komponente, M_A^x und M_B^x , ergibt sich eine nicht-verschwindende antiferromagnetische transversale Ordnung. Die Kurve $(M_A^x - M_B^x)^2$ vs. T hat dabei eine große Ähnlichkeit mit der experimentellen Kurve aus der Neutronenstreuung. Das bedeutet, daß dieses Kurvenprofil charakteristisch für einen Metamagneten obigen Typs ist. Daraus kann folgen, daß der Peak in der Kurve $I(0,0,-1/2)$ vs. T (Abb. 3.19) nicht ein Effekt des zusätzlichen Phasenübergangs bei $T = T_1$ ist, sondern lediglich die nicht-kritischen Fluktuationen markiert. Andererseits wurde gezeigt, daß die Simulationen nicht alle experimentellen Beobachtungen wiedergeben können. Die Kurve $M^x = (M_A^x + M_B^x)$ vs. T zeigt Ähnlichkeit zur SQUID-Kurve der transversalen Magnetisierung, M_{pl} (Abb. 3.8). Abgesehen von dem Übergang bei $T = T_1$ reproduziert die Simulation den Verlauf von M_{pl} vs. T .

Es konnte jedoch *nicht* der zusätzliche Phasenübergang 1. Ordnung bei einer Temperatur T_1 mit $T. < T_1 < T_c$ gefunden werden. Dies schließt jedoch nicht aus, daß für eine andere Wahl von Parametern (z.B. durch Hinzunahme der zweit- und drittnächsten Nachbarn als Wechselwirkungspartner) dennoch ein Phasenübergang auftritt. Es wurden auch Simulationen mit einem nicht-diagonalem Austauschterm gemäß D. Mukamel [54] unternommen. Es zeigte sich leider kein positives Ergebnis im Sinne eines zusätzlichen Phasenübergangs. Es besteht dennoch die Vermutung, daß ein solcher Austauschterm verantwortlich ist für das Auftreten des Phasenübergangs bei H_1 . Der zusätzliche Mechanismus, der hierbei hinzugekommen werden müßte, ist bislang unbekannt.

Es konnte gezeigt werden, daß auch im klassischen Heisenberg-Modell das Auftreten der Anomalie auf das 2-dimensionale Verhalten des B-Untergitters im Molekularfeld des A-Untergitters zurückzuführen ist. Es ist jedoch nötig, dem Molekularfeld eine lineare Temperaturabhängigkeit zuzuweisen. Man kann sich vorstellen, daß mit Näherungen höherer Ordnung bessere Ergebnisse erzielt werden.

4.2.5 Vergleich mit der Literatur

Bei M. Acharyya et al. [61] ist ein zusätzlicher Phasenübergang zu sehen, jedoch handelt es sich dort nicht um einen Metamagneten, sondern um ein Spin-Flop-System ($D = 0,3 \cdot J$). Der beobachtete Phasenübergang ist somit ein Spin-Flop-Übergang in einem schrägen Feld. In dieser Arbeit wurde erstmalig das charakteristische Kurvenprofil aus der Neutronenstreuung reproduziert.

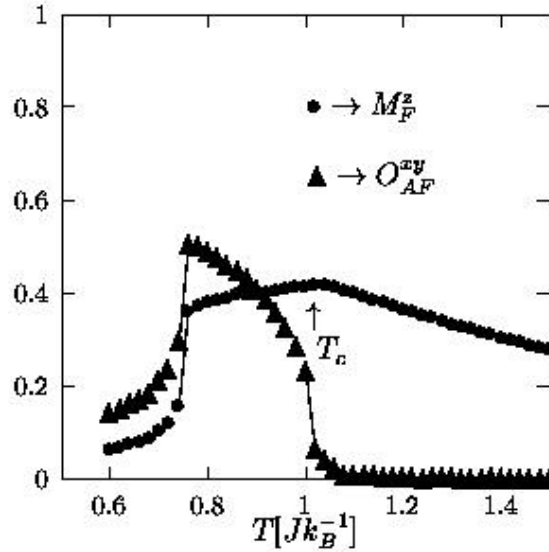


Abb. 4.18 Axialer ferromagnetischer Ordnungsparameter, M_F^z , und transversaler antiferromagnetischer Ordnungsparameter, O_{AF}^{xy} vs. T , bei $H^z = 0,7$ K und $H^x = 0,1$ K ($k_B = 1$) [61].

Es zeigt sich ein Maximum in dem antiferromagnetischen transversalen Ordnungsparameter bei der Temperatur des Spin-Flop-Phasenübergangs 1. Ordnung (Abb. 4.18, vgl. mit Abb. 3.20). In der Magnetisierung (hier bezeichnet als M_F^z) tritt ein deutlicher Sprung auf (vgl. Abb. 3.8). Nicht zu sehen sind die nicht-kritischen Fluktuationen. Durch die sehr niedrige Anisotropie gewinnt man zwar einen Phasenübergang 1. Ordnung, verliert jedoch dadurch sämtliche Eigenschaften eines Metamagneten.

Bei M. Pleimling et al. [35, 36] ist ebenfalls in seinem semi-klassischen Modell ein zusätzlicher Phasenübergang zu sehen. Es wurde ein System simuliert, dessen Spin-Vektor, \mathbf{S} , nur drei verschiedene S^z -Werte (-1, 0, +1) zulässt, während in der XY-Ebene der Vektor frei rotieren kann. Man erhält somit ein *semi*-klassisches Heisenberg-Modell, das sich verhält wie eine teilweise entkoppelte Superposition eines Ising- und eines XY-Systems. Der zusätzliche Phasenübergang ist somit die Folge dieser Konstruktion, da intrinsisch zwei Phasenübergänge für jedes Sub-System auftreten müssen. Außerdem ist die Spin-Ordnung in diesem Modell bereits vom Ansatz her eine gekantete Ordnung. Der verwendete nicht-diagonale Austausch spielt dort eher eine sekundäre Rolle.