

UCh-FC

Lic-F

P659

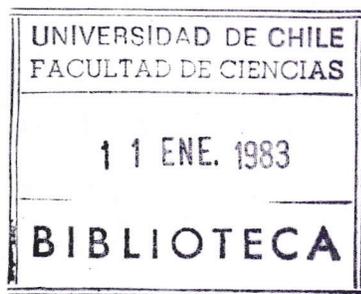
CA

UNIVERSIDAD DE CHILE
FACULTAD DE CIENCIAS
BÁSICAS Y FARMACEÚTICAS
DEPARTAMENTO DE FÍSICA

SISTEMA FERROMAGNETICO DE

HEISENBERG ANISOTROPICO CON

INTERACCION BICUADRATICA



TESIS PARA OPTAR AL GRADO
DE LICENCIADO EN CIENCIAS
CON MENCIÓN EN FÍSICA

RICARDO PINTANEL HORTA

PATROCINANTE: DR. RODRIGO FERRER P.

SEPTIEMBRE - 1982



DEDICADA A CARMEN
UNA MUJER MARAVILLOSA

AGRADEZCO A TODAS AQUELLAS PERSONAS
QUE ME HAN AYUDADO

I N D I C E

	Pág.
I. INTRODUCCION	1
II. HAMILTONIANO	6
III. APROXIMACION DE CAMPO MOLECULAR DE WEISS	23
IV. APROXIMACION DE CAMPO MOLECULAR DE OGUCHI	28
V. APROXIMACION DE CONSTANTE DE ACOPLAMIENTO	35
VI APLICACION DE APROXIMACION DE CONSTANTE DE ACOPLAMIENTO A UN HAMILTONIANO ANISOTROPICO	39
VII. RESULTADOS NUMERICOS	48
VIII. RESUMEN, DISCUSION Y CONCLUSIONES	83
IX. APENDICE COMPUTACIONAL	92
X. REFERENCIAS	100

I. INTRODUCCION

La manera más natural de clasificar a las propiedades magnéticas de aquellos materiales que presentan una temperatura de orden magnético de largo alcance es investigando su respuesta a la acción de un campo magnético aplicado. Esta respuesta está caracterizada por la susceptibilidad, χ , en la relación:

$$\vec{M} = \chi \vec{H}_0 \quad (1-1)$$

donde \vec{M} es la magnetización o momento magnético por unidad de volumen y \vec{H}_0 es el campo aplicado. En general χ es un tensor, función tanto de \vec{H}_0 como de la temperatura. Algunos materiales tienen una susceptibilidad escalar pequeña ($\sim 10^{-5}$), negativa e independiente de la temperatura (T) y reciben el nombre de diamagnéticos. En otros la susceptibilidad es positiva y depende de la temperatura; a temperatura ambiente es del orden de 10^{-2} y varía aproximadamente como $1/T$, éstos reciben el nombre de paramagnéticos. La susceptibilidad paramagnética varía linealmente con el campo aplicado, (para campos pequeños), y por lo tanto se anula cuando el campo es nulo. Sin embargo, existen algunos materiales que presentan una magnetización, o momento magnético macroscópico, en ausencia de campo

externo, al ser enfriados a una temperatura suficientemente baja. Esta magnetización, llamada magnetización espontánea, es el resultado de una interacción entre los átomos magnéticos presentes en el material, los cuales tienden a alinear sus momentos magnéticos estableciéndose un orden de largo alcance.

Un cristal con magnetización espontánea es un ejemplo de un sistema cooperativo en el cual los átomos interactúan tan fuertemente que no pueden, en ninguna aproximación razonable, ser considerados independientes unos de los otros. Tales materiales paramagnéticos se dividen, por conveniencia, en cuatro clases: ferromagnéticos, antiferromagnéticos, ferrimagnéticos y helimagnéticos; como es usual en las clasificaciones, las distinciones son ocasionalmente arbitrarias.

Los materiales ferromagnéticos son conocidos desde épocas remotas y tienen gran importancia tecnológica desde hace más de 100 años. Por otro lado la existencia de las otras tres clases ha sido reconocida sólo recientemente. El primero en proponer la existencia del antiferromagnetismo fue Néel en la década de 1930; y una posterior generalización de sus ideas llevó al descubrimiento del ferrimagnetismo y helimagnetismo.

En un material ferromagnético las interacciones entre átomos magnéticos favorecen el alineamiento paralelo de los momentos magnéticos. En el cero absoluto el alineamiento es completo y la magnetización espontánea tiene su máximo va

lor posible. Cuando la temperatura comienza a aumentar, crece la probabilidad de ocupación de estados magnéticos de mayor energía y también aumentan las fluctuaciones en torno al alineamiento promedio. Por lo cual, el ordenamiento inicial comienza a desaparecer y la magnetización espontánea decrece, gradualmente al principio y luego más y más rápidamente hasta hacerse cero a cierta temperatura característica, conocida como temperatura de transición o temperatura de Curie (T_c). Para temperaturas superiores a la temperatura de transición, región donde predominan los efectos de las fluctuaciones térmicas, la magnetización espontánea es nula. En esta región de temperaturas los materiales ferromagnéticos tienen muchas de las características de los materiales puramente paramagnéticos, aunque su susceptibilidad es independiente del campo aplicado, para campos ordinarios ($\sim 10^4$ Oe), y su dependencia de la temperatura tiene aproximadamente la forma:

$$\chi = C/(T - \theta) ; T \gg T_c \quad (1-2)$$

donde C es una constante, conocida como constante de Curie y θ una temperatura característica de cada material, generalmente llamada temperatura paramagnética de Curie.

Las principales características experimentales de los materiales ferromagnéticos, que cualquier teoría considerada como satisfactoria debe explicar, son: a) la existencia de una magnetización espontánea, b) la existencia de una temperatu

ra de transición (T_c) y c) la susceptibilidad a altas temperaturas ($T \gg T_c$).

La idea de que la magnetización espontánea, se debe a interacciones entre los átomos magnéticos fue inicialmente propuesta por Pierre Weiss en 1907; sin embargo, las interacciones magnéticas que él tenía en mente (interacción entre dipolos magnéticos) resultaron ser muy pequeñas (típicamente del orden de 10^{-4} eV. para dipolos separados por 2 \AA) como para dar cuenta de las temperaturas de transición observadas. No fue sino, hasta la aparición de las teorías cuánticas cuando Heisenberg y otros mostraron que las "interacciones" eran de origen mecánico cuánticas y además una consecuencia directa de las restricciones impuestas a las funciones de onda por el principio de exclusión de Pauli. Específicamente este principio requiere que las funciones de onda para partículas con spin semi-entero o entero sean antisimétricas o simétricas, respectivamente, con respecto al intercambio de un par de partículas. Esto hace que los autovalores de la energía dependan de las orientaciones relativas de los spines, efecto que puede ser interpretado en términos de una "interacción" que tiende a orientar los spines, y consecuentemente a los momentos magnéticos de las partículas /1/.

Sin embargo, la teoría de bandas en sólidos, que requiere que cada uno de los electrones se mueva en una "órbita" que se extiende a través del sólido, no calza con el concepto de momentos localizados y las teorías sobre ferromagnetisis

mo han debido dividirse en dos clases: localizados y no localizados; con intentos ocasionales de combinar ambos conceptos. En las sales iónicas el concepto de momentos localizados es ampliamente aceptado, mucho más de lo que lo es en metales, y a pesar de que en las sales se tienen los mismos requerimientos de periodicidad éstos son ignorados y la discusión es dada, invariablemente, usando un modelo localizado. En el grupo de transición 3-d las sales (aisladoras), aparentemente, deben ser estudiadas usando un modelo localizado, lo mismo sucede con algunas aleaciones (v.g. Cu-Mn). En metales puros y muchas aleaciones lo mejor es considerar teoría de bandas. En tierras raras el modelo localizado puede ser usado tanto para sales como para metales. Pero siempre debe recordarse que ni el modelo localizado ni la teoría de bandas proporcionan un cuadro completo; ambas están basadas en aproximaciones y la teoría que proporcione un estudio completo debe ser una mezcla de ambas /2/.

Usando el modelo que considera los momentos magnéticos localizados se construirá un Hamiltoniano para un sistema ferromagnético, luego se buscarán los autovectores de ese Hamiltoniano, ello se hará usando aproximaciones de campo molecular (campo molecular de Weiss y campo molecular de Oguchi) y aproximación de constante de acoplamiento y se compararán los resultados obtenidos mediante estos 3 métodos. Finalmente, usando la aproximación de constante de acoplamiento, se estudiarán las propiedades termodinámicas del sistema descrito por ese Hamiltoniano.

II. HAMILTONIANO.

En el esquema de Russell-Saunders los momentos angulares orbitales de los electrones se acoplan entre sí dando un momento angular orbital \vec{L} y los momentos angulares de spin de cada uno de los electrones también se acoplan dando un momento angular de spin total \vec{S} ; luego \vec{L} y \vec{S} se acoplan dando un momento angular total $\vec{J} = \vec{L} + \vec{S}$.

Los momentos angulares (tanto orbital como de spin) tienen asociado un momento magnético, que viene dado por:

$$\begin{aligned}\vec{\mu}_L &= -\beta\vec{L} \\ \vec{\mu}_S &= -g\beta\vec{S}\end{aligned}\tag{2-1}$$

donde
$$\beta = -|e|\hbar/2mc\tag{2-2}$$

es el llamado magnetón de Bohr y g el factor giromagnético de Landé.

El momento magnético asociado al momento angular total es:

$$\vec{\mu}_J = \vec{\mu}_L + \vec{\mu}_S = -\beta(\vec{L} + g\vec{S})\tag{2-3}$$

Lo primero que se observa es que el momento magnético asociado al momento angular total ($\vec{\mu}_J$) no es paralelo al momento angular total (\vec{J}).

Sin embargo, la interacción de un ión con campos eléctricos cristalinos puede "apagar" el momento angular orbital /3/; con esto:

$$\vec{\mu}_J = -g\beta\vec{S} = \vec{\mu}_S \quad (2-4)$$

Se supondrá que efectivamente el momento angular orbital está "apagado", por lo tanto son estos los momentos magnéticos que interactúan entre sí para dar origen al ferromagnetismo.

Consideraremos dos iones magnéticos razonablemente cercanos, pero con la restricción de que la interacción sea predominantemente entre los dos iones. Esto sugiere usar un Hamiltoniano del tipo:

$$\mathcal{H}_S = \mathcal{H}_1 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_{int} \quad (2-5)$$

donde: \mathcal{H}_1 = Hamiltoniano del 1er ión aislado
 \mathcal{H}_2 = Hamiltoniano del 2º ión aislado
 \mathcal{H}_{int} = Hamiltoniano que da cuenta de la interacción entre los iones, involucra a ambos spines:

$$\vec{S}_1 \text{ y } \vec{S}_2 .$$

Supongamos que cada uno de los iones tiene sólo un electrón d, que el acoplamiento spin - órbita es despreciable (o que el momento angular orbital está "apagado") y que también se desprecia la interacción dipolar magnética entre los momentos magnéticos de spin. Entonces cada uno de los iones tendrá spin $1/2$. Si ahora el par es considerado como un sistema acoplado, el Hamiltoniano contendrá términos no dependientes del spin y por lo tanto conmutará con el spin total del sistema. Ahora, un sistema con dos spines $1/2$ tiene un spin total $S = 1$ ó $S = 0$; por lo tanto el diagrama de niveles de energía del par tiene un nivel para $S = 1$ y otro $S = 0$; la separación entre ambos niveles está determinada por lo que generalmente se llama "interacción entre iones" y puede ser obtenida teóricamente a partir de un detallado estudio del Hamiltoniano de los dos iones; aunque en la práctica es bastante difícil determinar esta separación y decir cuáles son los principales mecanismos que dan origen a ella.

El problema inmediato es encontrar un Hamiltoniano que describa al par interactuando.

Consideraremos el siguiente Hamiltoniano:

$$\mathcal{H}_{int} = -2 \int \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 \quad (2-6)$$

Este Hamiltoniano conmuta con el spin total $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$ y tiene autovalores de energía $\mathcal{E}_1 = -1/2 \int$ (para $S = 1$) y $\mathcal{E}_2 = 3/2 \int$ (para $S = 0$); el parámetro \int es determinado experimentalmente para que el Hamiltoniano repro -

duzca las propiedades observadas en el sistema formado por el par de iones, por ejemplo la correcta separación de los dos niveles. Para nuestros propósitos no es necesario preguntarse si la interacción entre los iones proviene de un intercambio directo, de un super intercambio u otro tipo de intercambio. Se espera, sin embargo, que sea sensible a la separación y orientación relativa de las órbitas de los electrones de cada ión. Si ahora se aplica un campo magnético el estado con $S = 1$ se separa debido al efecto Zeeman. El estado con $S = 0$ no sufre tal separación. Esta separación es reproducida agregando el término $g\beta\vec{H}\cdot(\vec{S}_1 + \vec{S}_2)$ al Hamiltoniano de interacción.

Ahora supongamos que los iones tienen cada uno dos electrones. Entonces, en ausencia de acoplamiento spin-órbita y sin interacción dipolar magnética entre los momentos magnéticos de spin de los iones, cada ión puede estar en un estado con spin $S_1 = 1$ y el par acoplado puede tener spin $S = 2, 1, 0$; el Hamiltoniano $\mathcal{H}_{int} = -2J\vec{S}_1\cdot\vec{S}_2$ con $S_1 = S_2 = 1$ efectivamente proporciona tres autovalores de energía; ellos son: $E_2 = -2J$ (para $S = 2$), $E_1 = 2J$ (para $S = 1$) y $E_0 = 4J$ (para $S = 0$); pero la separación entre los niveles no es necesariamente la correcta, es decir no hay razón para que la relación $E_0 - E_1 = (1/2)(E_1 - E_2)$ sea, a priori, verdadera. Esto indica que el Hamiltoniano debe ser corregido, por ejemplo considerando dos parámetros, y además debe continuar conmutando con el spin total \vec{S} . La corrección más general se obtiene escribiendo:

$$\mathcal{H}_{int} = -2J_1(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) - 4J_2(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 \quad (2-7)$$

Este Hamiltoniano tiene autovalores $\mathcal{E}_2 = -2J_1 + 4J_2$ (para $S = 2$)

$\mathcal{E}_1 = 2J_1 + 4J_2$ (para $S = 1$) y $\mathcal{E}_0 = 4J_1 + 16J_2$ (para $S = 0$).

Tal como en el caso anterior los parámetros J_1 y J_2 son determinables experimentalmente de modo de obtener la real separación de los niveles.

Se tiene entonces un Hamiltoniano que, en principio, da cuenta del comportamiento, en presencia de un campo magnético exterior \vec{H} , de un par de iones cuando son considerados como un sistema acoplado, este es:

$$\mathcal{H}_{int} = -2J_1(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) - 4J_2(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 - g\beta\vec{H} \cdot (\vec{S}_1 + \vec{S}_2) \quad (2-8)$$

el cual, por comodidad, se escribe en la forma:

$$\mathcal{H}_{int} = -2J \left\{ (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) + \alpha (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 \right\} - g\beta\vec{H} \cdot (\vec{S}_1 + \vec{S}_2) \quad (2-9)$$

donde el parámetro α es una medida de la importancia del término bicuadrático respecto al término bilineal o término de interacción de Heisenberg.

Habiendo determinado un Hamiltoniano que da cuenta de la interacción de un par de iones, se generaliza para un conjunto de iones magnéticos interactuantes. Este sistema puede analizarse suponiendo que los iones interactúan libremente de a pares de primeros vecinos, lo que permitirá es-

cribir el Hamiltoniano total como una suma de Hamiltonianos de pares de iones, es decir:

$$\mathcal{H} = -\sum_{i=1}^N \left[\sum_{j=i+1}^N 2 J_{ij} \{ (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) + \alpha_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2 \} + g \beta \vec{H} \cdot \vec{S}_i \right] \quad (2-10)$$

Con esto se tiene un Hamiltoniano que, con algunas aproximaciones, permite el estudio de un conjunto de iones interactuantes y su comportamiento en un campo magnético.

En la ecuación (2-4) se supuso que el momento angular orbital está "apagado" por el efecto de campos eléctricos cristalinos. Este campo cristalino además de "apagar" el momento angular orbital afecta a las funciones de onda y niveles de energía de los iones magnéticos del sistema; si los efectos del campo eléctrico cristalino son considerados como una perturbación a las funciones de onda y niveles de energía del ión, entonces, el problema es encontrar el Hamiltoniano de perturbación y sus elementos de matriz.

Basándose en un modelo que considera al ión como carga puntual para determinar el Hamiltoniano de perturbación es necesario, primero, evaluar el potencial electrostático $V(r, \theta, \varphi)$, debido a los vecinos del ión, en un punto (r, θ, φ) . Clásicamente tal potencial es:

$$V(r, \theta, \varphi) = \sum_j q_j / |\vec{R}_j - \vec{r}| \quad (2-11)$$

donde q_j es la carga del j -ésimo ión situado en \vec{R}_j .

Si el ión magnético tiene una carga q_i y está en \vec{r}_i entonces la energía del potencial cristalino que perturba será:

$$W_c = \sum_i q_i V_i = \sum_i \sum_j' q_i q_j / |\vec{R}_j - \vec{r}_i| \quad (2-12)$$

Generalmente en la sumatoria sobre iones magnéticos (\sum_i) sólo se consideran electrones de capas no llenas, pues el efecto del campo cristalino sobre capas llenas (capas cerradas) es significativo a un alto orden en teoría de perturbaciones /2/.

Si la energía potencial clásica del ión magnético en el campo cristalino está dada por (2-12) el operador Hamiltoniano perturbativo puede obtenerse aplicando las reglas usuales ($x \rightarrow x_{op}$, $y \rightarrow y_{op}$, $z \rightarrow z_{op}$). Esto significa que el término perturbativo del Hamiltoniano será simplemente la energía potencial clásica:

$$\mathcal{H}_c = W_c = -|e| \sum_i V(x_i, y_i, z_i) \quad (2-13)$$

donde se ha puesto $q_i = -|e|$ y la sumatoria se extiende sobre todos los electrones de los iones magnéticos.

El potencial cristalino puede ser calculado en coordenadas cartesianas o directamente en armónicos esféricos. Es más conveniente expresar el potencial eléctrico cristalino en armónicos esféricos por dos razones: primero,

porque puede encontrarse fácilmente una fórmula general para su evaluación y segundo, porque en esta forma es mucho más fácil calcular los elementos de matriz de la energía potencial.

Si ω es el ángulo entre los vectores \vec{r} y \vec{R}_j y si $|\vec{R}_j| > |\vec{r}|$ entonces

$$1/|\vec{R}_j - \vec{r}| = \sum_{l=0}^{\infty} (r^l/R_j^{l+1}) P_l^0(\cos \omega) \quad (2-14)$$

con P_l^0 , polinomio de Legendre, definido en la forma usual:

$$P_m^0(u) = \left(\frac{1}{2^n n!} \right) \frac{d^m}{du^m} (u^2 - 1)^n \quad (2-15)$$

y en términos de armónicos esféricos:

$$P_l^0(\cos \omega) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{m=-l}^l (-1)^m Y_l^{-m}(\theta_j, \varphi_j) Y_l^m(\theta_i, \varphi_i) \quad (2-16)$$

con esto:

$$V(r, \theta, \varphi) = \sum_j q_j \sum_{l=0}^{\infty} \frac{4\pi}{2l+1} \frac{r^l}{R_j^{l+1}} \sum_{m=-l}^l (-1)^m Y_l^{-m}(\theta_j, \varphi_j) Y_l^m(\theta, \varphi) \quad (2-17)$$

Por comodidad se definen los armónicos sectoriales:

$$Z_{l0} = Y_l^0$$

$$Z_{lm}^c = \frac{1}{\sqrt{2}} \left[Y_l^{-m} + (-1)^m Y_l^m \right] \quad (2-18)$$

$$Z_{lm}^s = \frac{i}{\sqrt{2}} \left[Y_l^{-m} - (-1)^m Y_l^m \right]$$

En términos de polinomios asociados de Legendre:

$$Z_{lm}^c = \left[\frac{(2l+1)}{2} \frac{(l-m)!}{(l+m)!} \right]^{1/2} P_l^m(\cos \theta) \frac{\cos(m\varphi)}{\sqrt{\pi}} \quad (2-19)$$

$$Z_{lm}^s = \left[\frac{(2l+1)}{2} \frac{(l-m)!}{(l+m)!} \right]^{1/2} P_l^m(\cos \theta) \frac{\sin(m\varphi)}{\sqrt{\pi}}$$

con esto y usando el teorema de adición de armónicos esféricos:

$$P_l^0(\cos \omega) = \frac{4\pi}{2l+1} \sum_{\alpha} Z_{l\alpha}(\vec{r}) Z_{l\alpha}(\vec{R}_j) \quad (2-20)$$

los $Z_{l\alpha}$ están evaluados en los puntos \vec{r} y \vec{R}_j y la sumatoria es sobre α ; es decir, para cada l hay términos Z_l^0 , Z_{lm}^s , Z_{lm}^c , para todo m .

Finalmente el potencial, debido a una carga q_j en \vec{R}_j :

$$V(r, \theta, \varphi) = q_j \sum_{l=0}^{\infty} \frac{r^l}{R_j^{l+1}} \left[\sum_{\alpha} \frac{4\pi}{2l+1} Z_{l\alpha}(\theta_j, \varphi_j) Z_{l\alpha}(\theta, \varphi) \right] \quad (2-21)$$

y para k cargas:

$$V(r, \theta, \varphi) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{\alpha} r^l Y_{l\alpha}^1 Z_{l\alpha}(\theta, \varphi)$$

donde

$$Y_{l\alpha}^1 = \sum_{j=1}^k q_j \frac{4\pi}{2l+1} Z_{l\alpha}(\theta_j, \varphi_j) / R_j^{l+1} \quad (2-22)$$

Esta es una forma muy conveniente de escribir el potencial. Si los $Z_{i\alpha}$ se expresan en coordenadas cartesianas existe una correspondencia inmediata entre ellos y los operadores equivalentes de Stevens. Los cuales pueden usarse para evaluar los elementos de matriz del término perturbativo. La matriz puede ser diagonalizada para encontrar los niveles de energía y autofunciones del ión en el campo cristalino.

Evidentemente la evaluación de los elementos de matriz puede hacerse por integración directa, este método está claramente descrito en /4/. Las funciones de onda del ión libre (no perturbado) son expandidas en productos de estados que involucran funciones de onda del electrón solo (ϕ_i), sobre las cuales actúan los correspondientes términos $V(x_i, y_i, z_i)$ de \mathcal{H}_c . Los elementos de matriz, expresados en coordenadas esféricas, por lo tanto se reducen a sumas de términos de la forma:

$$\int \phi_i^*(r_i, \theta_i, \varphi_i) r^2 Y_l^m(\theta_i, \varphi_i) \phi_i(r_i, \theta_i, \varphi_i) dV$$

como la parte radial de la función de onda ($f(r)$) casi nunca es totalmente conocida, la parte radial de la integral se toma como un parámetro

$$\langle r^2 \rangle = \int |f(r)|^2 r^2 r^2 dr$$

Una forma más conveniente de evaluar los elementos de matriz del potencial cristalino es mediante el uso de los operadores equivalentes de Stevens. Este método elimina la necesidad de volver cada vez a las funciones de onda del electrón solo, mediante el uso de un "operador equivalente" a \mathcal{H}_c , este operador consiste de operadores de momento angular, los cuales actúan sobre la parte angular de la función de onda del sistema; en realidad ésta es una aplicación del teorema de Wigner Eckart /5/. Este método aparece descrito en /6/. Si $f(x, y, z)$ es una función, en coordenadas cartesianas, de un grado dado, entonces para encontrar el operador equivalente a los términos de la forma $\sum_i f(x_i, y_i, z_i)$ que aparecen en \mathcal{H}_c se reemplazan x, y, z por J_x, J_y, J_z respectivamente, pero siempre cuidando la no conmutación de J_x, J_y, J_z . Esto se logra reemplazando los productos de x, y, z por una expresión que contenga todas las posibles combinaciones diferentes de J_x, J_y, J_z y dividiendo por el número total de combinaciones. De este modo el operador construido tiene las mismas propiedades de transformación, bajo rotaciones, que tiene el potencial.

A modo de ejemplo:

$$\sum_i (3z_i^2 - r_i^2) \equiv \alpha_J \langle r^2 \rangle [3J_z^2 - J(J+1)] \equiv \alpha_J \langle r^2 \rangle O_2^0$$

$$\sum_i (x_i^2 - y_i^2) \equiv \alpha_J \langle r^2 \rangle [J_x^2 - J_y^2] \equiv \alpha_J \langle r^2 \rangle O_2^2$$

$$\sum_i (x_i y_i) \equiv \alpha_J \langle r^2 \rangle [J_x J_y + J_y J_x] / 2$$

Si el potencial es $V(x, y, z) = \sum_{\lambda\alpha} r^\lambda Y_{\lambda\alpha} Z_{\lambda\alpha}$
 (x, y, z) se definen las funciones $f_{\lambda\alpha}(x, y, z)$ que se relacionan con $Z_{\lambda\alpha}(x, y, z)$ por la relación:

$$Z_{\lambda\alpha}(x, y, z) = (\text{constante}) f_{\lambda\alpha}(x, y, z) / r^\lambda \quad (2-23)$$

Son estas funciones $f_{\lambda\alpha}$ las que se relacionan con los operadores equivalentes de Stevens O_λ^m mediante:

$$\sum_i f_{\lambda m}^c(x_i, y_i, z_i) = \Theta_\lambda \langle r^2 \rangle O_\lambda^m \quad (2-24)$$

con Θ_λ un factor multiplicativo; los operadores O_λ^m más comunes aparecen en /7/.

Según (2-22) : $V(x, y, z) = \sum_{\lambda\alpha} r^\lambda Y_{\lambda\alpha} Z_{\lambda\alpha}(x, y, z)$

usando (2-13), (2,23) y (2-24) se tiene:

$$\mathcal{H}_c = \sum_i \sum_{\lambda m} B_{\lambda m} O_\lambda^m \quad (2-25)$$

donde $B_{\lambda m}$ es el llamado parámetro del campo cristalino y O_λ^m el operador equivalente de Stevens.

El Hamiltoniano (2-25), sin embargo, puede reducirse considerablemente pues la invariancia del potencial frente a operaciones de inversión exigen la anulación de términos con λ impar; también son nulos los términos tales que $\lambda > 2L$ donde L es el número cuántico orbital del electrón. De modo

que para iones del grupo 3-d sólo es necesario considerar $\lambda = 0, 2, 4$ y $\lambda = 0, 2, 4, 6$ para los del grupo 4-f, /8/.

Existe además numerosa evidencia que demuestra que los términos correspondientes a $\lambda = 4$ son un orden de magnitud menores que los correspondientes a $\lambda = 2$, /8/. De este modo una aproximación adecuada es considerar:

$$\mathcal{H}_c = \sum_i (B_2^0 O_2^0 + B_2^2 O_2^2) \quad (2-26)$$

donde

$$\begin{aligned} O_2^0 &= [3 J_z^2 - J(J+1)] \\ O_2^2 &= [J_x^2 - J_y^2] \end{aligned} \quad (2-27)$$

Nos restringiremos al caso uniaxial y supondremos que el parámetro de campo cristalino es el mismo para cada ión del sistema. Con esto y la suposición de momento angular orbital "apagado" tenemos el Hamiltoniano para la perturbación producida por el campo cristalino:

$$\mathcal{H}_c = -D \sum_i S_{iz}^2 \quad (2-28)$$

En resumen el Hamiltoniano para el sistema en consideración es:

$$\mathcal{H} = -\sum_{i=1}^N \left[\sum_{j=i+1}^N 2 J_{ij} \left\{ (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) + \alpha_{ij} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2 \right\} + g \beta \vec{H} \cdot \vec{S}_i + D S_{iz}^2 \right] \quad (2-29)$$

El primer término corresponde a la usual interacción bilineal de Heisenberg. El segundo es la interac-

ción bicuadrática, que puede ser considerada como una corrección a la interacción bilineal. El tercer término, término de Zeeman, da cuenta de la interacción entre un ión y un campo magnético, (g es el factor de Lande y β el magnetón de Bohr). Finalmente el último término, también llamado término de anisotropía, corresponde a la interacción del ión con el campo eléctrico cristalino debido a los iones vecinos.

En principio, todas las propiedades termodinámicas del sistema descrito por el Hamiltoniano (2-29) pueden ser obtenidas encontrando sus autovalores y autovectores y construyendo la función partición. En la práctica, este problema, para un cristal tri-dimensional, es demasiado difícil como para ser solucionado por un "ataque frontal". Los problemas son puramente mecánico estadísticos, pues, como vimos, la idealización del problema físico subyacente se realiza fácilmente y todo lo que queda es la evaluación explícita de la función partición. Esta evaluación es, por supuesto, la dificultad.

Al parecer no hay una técnica simple y de suficiente generalidad que pueda ser aplicada para la evaluación explícita de la función partición; por ello existe una variedad de métodos para el análisis mecánico estadístico de un estado ferromagnético; algunos son rigurosos en restringidas regiones de temperatura (teoría de ondas de spin); otros son aproximados, poderosos y relativamente complejos (método de las funciones de Green) y otros cuya principal ventaja es

la simplicidad (aproximaciones de "pequeños racimos" (clusters)). El más simple de estos últimos, la teoría de campo molecular de Weiss, proporciona una teoría conveniente y cualitativamente razonable para aquellas propiedades, tal como la magnetización, que sean la suma de las contribuciones de cada uno de los átomos. Sin embargo, aquellas propiedades que dependen de la interacción entre dos o más átomos están fuera del alcance de la teoría de Weiss. Varias aproximaciones de "pequeños racimos" intentan extender la teoría de Weiss ("racimo 2-spin" de Oguchi, método B-P-W). Pero, generalmente, exhiben inconsistencias internas tales como la temperatura anti-Curie del método B-P-W. Sin embargo, una teoría que por lo menos no presenta estas inconsistencias es la aproximación de "constante de acoplamiento" (constant coupling approximation) de Kasteleijn y van Kranendonk /9/, que puede ser considerada como una aproximación de "racimo 2-spines" definida solamente para sistemas con interacción entre vecinos más cercanos y es ampliamente usada como la teoría simple más conveniente para estudiar aquellas propiedades que dependen de la correlación entre vecinos más cercanos.

Las aproximaciones de "pequeños racimos" tienen como característica más importante el que una pequeña sección del cristal es tratada exactamente y la interacción (de esta pequeña sección) con el resto del cristal es tratada usando alguna aproximación. Como las interacciones afectan el alineamiento de los momentos magnéticos, una aproximación físicamente plausible es reemplazarlas por un campo efectivo, cuyas características deben ser determinadas por alguna rela-

ción de consistencia físicamente aceptable.

Se considerará solamente el caso en que todos los iones magnéticos son idénticos y se encuentran en sitios de la red que son cristalográficamente equivalentes. Además, si los iones magnéticos están suficientemente lejos unos de otros, de modo que la superposición de sus funciones de onda electrónicas sea pequeña, se puede considerar, como primera aproximación, que la interacción es sólo entre los vecinos más cercanos. En este caso se tiene que:

$$J_{ij} = \begin{cases} J & \text{si los iones } i \text{ y } j \text{ son primeros vecinos} \\ 0 & \text{si los iones } i \text{ y } j \text{ no son primeros vecinos} \end{cases}$$

$$\alpha_{ij} = \begin{cases} \alpha & \text{si los iones } i \text{ y } j \text{ son primeros vecinos} \\ 0 & \text{si los iones } i \text{ y } j \text{ no son primeros vecinos} \end{cases}$$

Con esta consideración el Hamiltoniano es reescrito como:

$$\mathcal{H} = -2J \sum_{(i,j)} \{(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) + \alpha (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2\} - g\beta \sum_i \vec{H} \cdot \vec{S}_i - D \sum_i S_{iz}^2 \quad (2-30)$$

ahora la primera sumatoria debe hacerse solamente para pares de iones (i, j) que sean primeros vecinos entre sí.

Si se considera $\alpha = 0$, el Hamiltoniano (2-30) se transforma en:

$$\mathcal{H} = -2J \sum_{(i,j)} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) - g\beta \sum_i \vec{H} \cdot \vec{S}_i - D \sum_i S_{iz}^2 \quad (2-31)$$

Los autovalores y autovectores de (2-31) se calcularán mediante la aproximación de campo molecular de Weiss y la aproximación de campo molecular de Oguchi. Luego, usando la aproximación de constante de acoplamiento, se estudiarán las propiedades termodinámicas del sistema descrito por (2-30) con $0 \leq \alpha \leq 1$.

III. APROXIMACION DE CAMPO MOLECULAR DE WEISS

La aproximación de campo molecular de Weiss (ACMW), la más simple e ingenua de las aproximaciones de "pequeños racimos", consiste en considerar solamente un ión magnético y reemplazar su interacción con el resto del cristal por un campo efectivo. Históricamente el primero en mencionar tal aproximación fue Pierre Weiss en 1907, el cual además supuso que el campo efectivo era proporcional al promedio del momento magnético neto del cristal. Este campo fue llamado por Weiss campo molecular, y se ha mantenido este nombre para campos efectivos de la forma:

$$\vec{H}_e = \gamma \vec{M} \quad (3-1)$$

donde \vec{H}_e es el campo efectivo, \vec{M} el momento magnético de la muestra y γ una constante, llamada coeficiente del campo molecular.

Si se considera solamente un ión magnético el término de interacción de Heisenberg toma la forma:

$$\mathcal{H}_{int} = -2J \vec{S}_i \cdot \sum_j \vec{S}_j \quad (3-2)$$

Al hacer la suma sólo sobre los z primeros vecinos del i -ésimo ión, y puesto que cada uno de los iones vecinos son iguales y equivalentes entre sí, se tiene:

$$\mathcal{H}_{int} = -2 \int z \vec{S}_i \cdot \langle \vec{S}_j \rangle \quad (3-3)$$

donde $\langle \dots \rangle$ es el promedio térmico estadístico definido por:

$$\langle \dots \rangle = \text{Tr} (\dots e^{-\mathcal{H}/kT}) / \text{Tr} (e^{-\mathcal{H}/kT}) \quad (3-4)$$

En el espíritu de la aproximación de Weiss la interacción es reemplazada por un campo magnético efectivo, es decir:

$$\mathcal{H}_{int} = -g \beta \vec{S}_i \cdot \vec{H}_e \quad (3-5)$$

igualando (3-3) y (3-5) se tiene:

$$\vec{H}_e = \frac{2zJ}{g\beta} \langle \vec{S}_j \rangle \quad (3-6)$$

Usando la suposición de Weiss respecto al campo efectivo y el hecho de que el momento magnético del cristal está relacionado con $\langle \vec{S}_j \rangle$ por:

$$\vec{M} = N g \beta \langle \vec{S}_j \rangle \quad (3-7)$$

se tiene que:

$$\vec{H}_e = \frac{2z}{N g^2 \beta^2} \vec{M} \quad (3-8)$$

Definiendo el eje z en la dirección de \vec{M} y como todos los iones son iguales y están en sitios equivalentes, la relación (3-7) se transforma en:

$$M = N g \beta \langle S_z \rangle \quad (3-9)$$

Se define la magnetización reducida como:

$$\sigma = M / N g \beta \quad (3-10)$$

y usando (3-9)

$$\sigma = \langle S_z \rangle \quad (3-11)$$

En la ACMW el Hamiltoniano (2-31) adopta la forma:

$$\mathcal{H}_1 = -g \beta H S_z - D S_z^2 \quad (3-12)$$

el campo H es la suma del campo efectivo y el campo externo aplicado.

Los autovalores de \mathcal{H}_1 son:

$$\mathcal{E}_m = -g \beta H m - D m^2 \quad (3-13)$$

Para ilustrar esta aproximación consideremos el caso de iones con spin total $S = 1$, entonces:
 $m = 1, 0, -1$.

De (3-11) y (3-13) se tiene:

$$\sigma = \frac{e^{(\lambda+D)/kT} - e^{(-\lambda+D)/kT}}{e^{(\lambda+D)/kT} + e^{(-\lambda+D)/kT} + 1} \quad (3-14)$$

con

$$\lambda = g\beta H_e = g\beta z H_e' \quad (3-15)$$

donde H_e' es el campo efectivo por vecino, i.e. el campo efectivo debido a cada uno de los z primeros vecinos del ión considerado.

De (3-8), (3-9), (3-10) y (3-15) se tiene:

$$H_e' = 2J\sigma / g\beta \quad (3-16)$$

con lo cual:

$$\lambda = 2zJ\sigma \quad (3-17)$$

y reemplazando (3-17) en (3-14) se tiene la ecuación de auto-consistencia que debe ser resuelta para obtener la magnetización reducida como función de la temperatura en ACMW.

$$\sigma_{ACMW} = \frac{e^{\frac{(D+2zJ_{ACMW})}{kT}} - e^{\frac{(D-2zJ_{ACMW})}{kT}}}{e^{\frac{(D+2zJ_{ACMW})}{kT}} + e^{\frac{(D-2zJ_{ACMW})}{kT}} + 1} \quad (3-18)$$

Esta ecuación puede ser resuelta numéricamente, luego de fijar los parámetros J , D y z . Para ello se elaboró el programa ACMW que figura en el apéndice.

La ACMW proporciona un sorprendente buen esquema cualitativo de las propiedades físicas más importantes de un material ferromagnético, por ejemplo la magnetización espontánea y su dependencia con la temperatura. Sin embargo cuando se hace una comparación detallada entre la teoría y los experimentos la concordancia cuantitativa no es muy buena.

Al parecer las deficiencias de ACMW provienen de sustituir todas las interacciones de intercambio en el cristal por un campo efectivo, de modo que ciertas propiedades de la interacción $\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$ se pierden completamente. Es precisamente esta deficiencia la que se pretende corregir, en un primer orden, en la aproximación de campo molecular de Ogu-chi /10/. Es lo que se tratará en el siguiente capítulo.

IV. APROXIMACION DE CAMPO MOLECULAR DE OGUCHI

Intentando mejorar el tratamiento de Weiss la aproximación de campo molecular de Oguchi (ACMO) considera un par de iones, seleccionados al azar y que sean primeros vecinos entre sí. La interacción entre ellos es tratada exactamente y la de ellos con el resto del cristal mediante un campo efectivo tipo campo molecular.

El Hamiltoniano para este par ("racimo 2-spines"), cuantizando en la dirección arbitraria z, es:

$$\mathcal{H}_2 = -2J \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 - g\beta H(S_{1z} + S_{2z}) - D(S_{1z}^2 + S_{2z}^2) \quad (4-1)$$

Sea $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$ el spin total del par; si los operadores \vec{S}_1 y \vec{S}_2 conmutan entre sí, se tiene que:

$$-2 \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 = S_1^2 + S_2^2 - S^2 \quad (4-2)$$

$$S_{1z} + S_{2z} = S_z$$

Luego:

$$\mathcal{H}_2 = J(S_1^2 + S_2^2 - S^2) - g\beta H S_z - D(S_{1z}^2 + S_{2z}^2) \quad (4-3)$$

Nuestro interés es considerar el caso particular de iones con spin total $S_1 = S_2 = 1$. En tal caso el par tiene spin $S = 2, 1, 0$.

El siguiente conjunto completo de vectores son autovectores de los operadores S_1^2 , S_2^2 , S^2 y S_z :

$$\{|S_1 S_2 SM\rangle\} \equiv \{|SM\rangle\} = \left\{ \begin{array}{l} |22\rangle, |21\rangle, |20\rangle, |2-1\rangle, |2-2\rangle \\ |11\rangle, |10\rangle, |1-1\rangle \\ |00\rangle \end{array} \right\} \quad (4-4)$$

Este conjunto de vectores permite evaluar los elementos de la matriz Hamiltoniana correspondiente a los dos primeros términos de (4-3). Estos vectores no son autovectores de los operadores S_{1z}^2 y S_{2z}^2 , por lo que los elementos de matriz correspondientes al término de anisotropía deben ser evaluados usando este otro conjunto completo:

$$\{|S_1 S_2 m_1 m_2\rangle\} = \{|S_1 m_1\rangle |S_2 m_2\rangle\} \quad (4-5)$$

donde $\{|S_i m_i\rangle\} = \{|11\rangle, |10\rangle, |1-1\rangle\}$

los que se relacionan con $|SM\rangle$ mediante

$$|SM\rangle = \sum_{\substack{m_1, m_2 \\ m_1 + m_2 = M}} |S_1 S_2 m_1 m_2\rangle \langle S_1 S_2 m_1 m_2 | SM\rangle \quad (4-6-a)$$

los términos $\langle S_1 S_2 m_1 m_2 | SM\rangle$ son los llamados coeficientes de Clebsh-Gordan,

Desarrollando y calculando los coeficientes se encuentra que:

$$\begin{aligned}
 |22\rangle &= |1111\rangle \\
 |21\rangle &= (1/\sqrt{2})(|1110\rangle + |1101\rangle) \\
 |20\rangle &= (1/\sqrt{6})(|111-1\rangle + |11-11\rangle + 2|1100\rangle) \\
 |2-1\rangle &= (1/\sqrt{2})(|11-10\rangle + |110-1\rangle) \\
 |2-2\rangle &= |11-1-1\rangle \tag{4-6-b} \\
 |11\rangle &= (1/\sqrt{2})(|1110\rangle - |1101\rangle) \\
 |10\rangle &= (1/\sqrt{2})(|111-1\rangle - |11-11\rangle) \\
 |1-1\rangle &= (1/\sqrt{2})(|110-1\rangle - |11-10\rangle) \\
 |00\rangle &= (1/\sqrt{3})(|111-1\rangle + |11-11\rangle - |1100\rangle)
 \end{aligned}$$

Ahora se pueden calcular los elementos de matriz de (4-3):

$$\begin{aligned}
 (\mathcal{H}_2)_{ij} &= \langle S'M' | \mathcal{H}_2 | SM \rangle = \\
 &= \frac{1}{2} \{ S_1(S_1+1) + S_2(S_2+1) \} \delta_{SS'} \delta_{MM'} - \\
 &\quad \frac{1}{2} S(S+1) \delta_{SS'} \delta_{MM'} - \lambda M \delta_{SS'} \delta_{MM'} - \\
 &\quad D \langle S'M' | (S_{1z}^2 + S_{2z}^2) | SM \rangle
 \end{aligned} \tag{4-7}$$

El último término es evaluado usando (4-6-b)

Al hacer el cálculo explícito se encuentra que son distintos de cero sólo los siguientes elementos del Hamiltoniano en consideración:

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{11} &= \langle 22 | \mathcal{H}_2 | 22 \rangle = -2J - 2\lambda - 2D \\
\mathcal{H}_{22} &= \langle 21 | \mathcal{H}_2 | 21 \rangle = -2J - \lambda - D \\
\mathcal{H}_{33} &= \langle 20 | \mathcal{H}_2 | 20 \rangle = -2J - \frac{2}{3}D \\
\mathcal{H}_{44} &= \langle 2-1 | \mathcal{H}_2 | 2-1 \rangle = -2J + \lambda - D \\
\mathcal{H}_{55} &= \langle 2-2 | \mathcal{H}_2 | 2-2 \rangle = -2J + 2\lambda - 2D \\
\mathcal{H}_{66} &= \langle 11 | \mathcal{H}_2 | 11 \rangle = 2J - \lambda - D \\
\mathcal{H}_{77} &= \langle 10 | \mathcal{H}_2 | 10 \rangle = 2J - 2D \\
\mathcal{H}_{88} &= \langle 1-1 | \mathcal{H}_2 | 1-1 \rangle = 2J + \lambda - D \\
\mathcal{H}_{99} &= \langle 00 | \mathcal{H}_2 | 00 \rangle = 4J - \frac{4}{3}D \\
\mathcal{H}_{93} &= \langle 00 | \mathcal{H}_2 | 20 \rangle = -\left(\frac{2\sqrt{2}}{3}\right)D \\
\mathcal{H}_{39} &= \langle 20 | \mathcal{H}_2 | 00 \rangle = -\left(\frac{2\sqrt{2}}{3}\right)D
\end{aligned} \tag{4-8}$$

Si $D \neq 0$ entonces la matriz Hamiltoniana debe ser diagonalizada para conocer sus autovalores y autovectores.

Luego de haber tratado en forma exacta la interacción entre un par de iones se debe determinar el campo efectivo que acopla este par con el resto del cristal, Oguchi consideró que el campo efectivo era un campo molecular, es decir el campo efectivo es proporcional a la magnetización promedio del cristal.

Para determinar el coeficiente del campo molecular se procede en forma similar a ACMW (ecuaciones (3-2) a (3-8), encontrando que:

$$\vec{H}_e = \frac{2(z-1)J}{Ng^2\beta^2} \vec{M} \tag{4-9}$$

donde N es el número de átomos de la muestra, g el factor giromagnético de Landé, β el magnetón de Bohr y z el número primeros vecinos del ión.

El coeficiente molecular difiere del obtenido en ACMW solamente en que z es reemplazado por $(z-1)$ porque la interacción del ión con uno de sus primeros vecinos ha sido tratada exactamente y son las $(z-1)$ interacciones restantes las que se tratan con una aproximación de campo molecular.

Como el par fue elegido arbitrariamente, su momento magnético promedio, por átomo, debe ser el mismo que el de cualquier otro par, y por lo tanto el mismo que para el cristal completo.

Análogamente a ACMW imponemos:

$$M = \frac{1}{2} N g \beta \langle S_z \rangle \quad (4-10)$$

y se define la magnetización reducida, por átomo:

$$\sigma = \frac{1}{2} \langle S_z \rangle \quad (4-11)$$

Finalmente, juntando (4-11) con (4-9) y (4-10) y si no existe campo externo, de modo que $H_e = (z-1) H_e'$, donde H_e' es el campo efectivo por vecino, se tiene:

$$\lambda = 2(z-1) \int \sigma \quad (4-12)$$

Reemplazando (4-12) en (4-8) se puede calcular la magnetización reducida, por átomo, como función de la temperatura, luego de fijar los parámetros z , \int y D .

La complicación adicional de ACMO respecto a ACMW es que la matriz Hamiltoniana debe ser diagonalizada para conocer sus autovalores y autovectores. Sean ellos ϵ_i y $|i\rangle$ respectivamente, entonces:

$$\sigma_{ACMO} = \left(\frac{1}{2} \right) \frac{\sum_{i=1}^q \langle i | s_z | i \rangle e^{-\epsilon_i(\sigma_{ACMO})/kT}}{\sum_{i=1}^q e^{-\epsilon_i(\sigma_{ACMO})/kT}} \quad (4-13)$$

Esta ecuación de autoconsistencia, que como se dijo, permite obtener la magnetización reducida, por átomo, en ACMO, puede ser resuelta numéricamente, para ello se conceccionó el programa ACMO que figura en el apéndice.

Si bien este método representa un mejoramiento respecto a la aproximación de Weiss, retiene algunas de sus deficiencias, debido a la suposición común a ambas teorías, de que el campo efectivo es proporcional a la magnetización. El considerar un campo efectivo más general, es decir, uno que sea una función arbitraria de la magnetización y de la temperatura puede proporcionar una mejor descripción del ferromagnetismo.

En el próximo capítulo se comentarán las aproximaciones de "pequeños racimos" en general y se mostrará la aproximación de constante de acoplamiento, la cual, se espera, mejore algunas de las deficiencias de las aproximaciones mostradas en los capítulos anteriores.

V. APROXIMACION DE CONSTANTE DE ACOPLAMIENTO

Dado el Hamiltoniano de un sistema ferromagnético el problema de encontrar sus propiedades magnéticas está, en principio, resuelto cuando se evalúa la matriz densidad:

$$\rho = \frac{e^{-\mathcal{H}/kT}}{\text{Tr} e^{-\mathcal{H}/kT}} \quad (5-1)$$

pues la magnetización, o el valor promedio de S_z , se calcula:

$$\langle S_z \rangle = \text{Tr} (S_z \rho) \quad (5-2)$$

Los métodos de "pequeños racimos", en general, comienzan seleccionando sólo una pequeña sección del cristal y luego reemplaza los operadores de spin de todos los otros iones del Hamiltoniano por:

$$\begin{aligned} S_x &= S_y = 0 \\ S_{iz} &= \langle S_z \rangle \end{aligned} \quad (5-3)$$

al hacer esto el Hamiltoniano del sistema y por lo tanto la matriz densidad queda dependiendo de $\langle S_z \rangle$ y (5-2) es una ecua-

ción autoconsistente para $\langle S_z \rangle$. La forma de hacerlo está ilustrada en los dos capítulos anteriores para dos casos diferentes, uno es la aproximación de campo molecular de Weiss y el otro es la aproximación de campo molecular de Oguchi. Esta forma de evaluar $\langle S_z \rangle$ ciertamente no garantiza la completa consistencia de la teoría resultante /11/.

La naturaleza de los "defectos" de estas teorías ha sido analizada por Kasteleijn y van Kranendonk /9/. Ellos indican que las propiedades del sistema están completamente determinadas por la matriz densidad de un sistema de dos partículas (ρ_{ij}). Esta matriz densidad es la proyección de la matriz densidad de todo el sistema (ρ) sobre el subespacio formado por las dos partículas.

Si ρ_{ij} se escribe en la forma:

$$\rho_{ij} = \frac{e^{-\tilde{\mathcal{H}}_{ij}/kT}}{\text{Tr} e^{-\tilde{\mathcal{H}}_{ij}/kT}} \quad (5-4)$$

entonces $\tilde{\mathcal{H}}_{ij}$ se relaciona con el Hamiltoniano del sistema completo en alguna forma, la que puede llegar a ser bastante compleja. Es este operador $\tilde{\mathcal{H}}_{ij}$ el que casi todos los métodos de "pequeños racimos" tratan de evaluar reemplazando, en el Hamiltoniano del sistema, algunos operadores de spin por sus valores promedio.

Para sistemas de iones de spin 1 y con anisotropía de campo cristalino la forma de $\tilde{\mathcal{H}}_{ij}$ debe ser:

$$\tilde{H}_{ij} = -2A_1[\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j + \alpha(\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2] - g\beta A_2(S_{iz} + S_{jz}) - D(S_{iz}^2 + S_{jz}^2) \quad (5-5)$$

donde A_1 y A_2 pueden ser funciones de la temperatura y del campo magnético aplicado. Estas funciones están sujetas a ciertas condiciones de consistencia, las cuales son fijadas mediante alguna suposición que sea físicamente razonable, entonces el problema consiste en saber cuál es la mejor de todas. Debe notarse que los A_i no son independientes entre sí, pues si \tilde{E}_m son los autovalores de (5-5) entonces los f_m definidos por:

$$f_m = \frac{e^{-\tilde{E}_m/kT}}{\sum_n e^{-\tilde{E}_n/kT}} \quad (5-6)$$

deben cumplir con la condición:

$$\sum_n f_m = 1 \quad (5-7)$$

la condición (5-7) permite fijar un A_i cuando el otro ha sido fijado por alguna condición de consistencia.

A modo de ejemplo, si escogemos:

$$A_1 = 0 \quad ; \quad A_2 = H_0 + \frac{2Jz}{g\beta} \langle S_z \rangle \quad (5-8)$$

se obtiene la aproximación de campo molecular de Weiss.

La aproximación de campo molecular de Oguchi se obtiene imponiendo:

$$A_1 = \mathcal{J} \quad ; \quad A_2 = H_0 + \frac{2\mathcal{J}(z-1)}{\mathcal{J}\beta} \langle S_z \rangle \quad (5-9)$$

salvo en estos casos particulares el encontrar como se relaciona $\tilde{\mathcal{H}}_{ij}$ con el Hamiltoniano original del sistema es bastante complejo, esto significa que es bastante difícil decir la forma de las funciones A_i ; que son las que relacionan ambos Hamiltonianos. En el próximo capítulo se usará una condición de consistencia similar a la usada por Kasteleijn y van Kranendonk y en ese caso intentar encontrar explícitamente las funciones A_i es algo bastante complejo, en todo caso se espera obtener un apreciable mejoramiento respecto a las aproximaciones de campo molecular discutidas en los capítulos anteriores.

Una discusión detallada de las aproximaciones de "pequeños racimos" es dada por Callen y Callen /12/.

VI. APLICACION DE APROXIMACION DE CONSTANTE DE
ACOPLAMIENTO A UN HAMILTONIANO ANISOTROPICO

En este capítulo se considerará el Hamiltoniano (2-30):

$$\mathcal{H}_2 = -2J \sum_{\langle i,j \rangle} \left\{ (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j) + \alpha (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)^2 \right\} - g\beta \sum_i \vec{H} \cdot \vec{S}_i - D \sum_i S_{iz}^2 \quad (6-1)$$

donde el parámetro α varía en el intervalo $0 \leq \alpha \leq 1$.

Si el sistema presenta magnetización espontánea, es decir si tiene magnetización neta en ausencia de campo externo, dicha magnetización define un eje z y se puede suponer que los spines estarán bajo la acción de un campo magnético efectivo en la dirección z.

Primero se considerará la interacción de sólo un ión magnético con el campo efectivo. Para un ión el Hamiltoniano tiene la forma:

$$\mathcal{H}_1 = -g\beta H S_z - D S_z^2 \quad (6-2)$$

donde el campo H es la suma del campo efectivo y el campo exter-

no, el cual se considerará nulo para estudiar la magnetización espontánea.

Si se considera sólo la interacción con los z primeros vecinos y todos ellos son iguales y están en sitios cristalográficamente equivalentes, tanto entre sí como con respecto al ión considerado, se puede escribir:

$$H_e = z H_e' \quad (6-3)$$

donde H_e' es el campo efectivo por vecino.

Los autovalores de (6 - 2) son:

$$E_m = -g\beta H m - D m^2 \quad (6-4)$$

Para iones con spin total $S = 1$ se tiene $m = 1, 0, -1$ y se define la magnetización reducida en la forma usual:

$$\sigma_1(H', T) = \langle S_z(H', T) \rangle_1 \quad (6-5)$$

con esto

$$\sigma_1(H', T) = \frac{e^{(D+zH')/kT} - e^{(D-zH')/kT}}{e^{(D+zH')/kT} + e^{(D-zH')/kT} + 1} \quad (6-6)$$

Por otro lado, si se considera un par de iones el Hamiltoniano es:

$$\mathcal{H}_2 = -2 \int \left\{ (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2) + \alpha (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 \right\} - g \beta H (S_{1z} + S_{2z}) - D (S_{1z}^2 + S_{2z}^2) \quad (6-7)$$

Procediendo en forma análoga a como se hizo en ACMO se define $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$. El término bicuadrático es evaluado del siguiente modo:

$$S^2 = S_1^2 + S_2^2 + 2 \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 \quad (6-8)$$

$$-2 (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 = -\frac{1}{2} S^2 S^2 + 2 S_0^2 S^2 - 2 S_0^2 S_0^2 \quad (6-9)$$

donde $S_0^2 = S_1^2 = S_2^2$ y usando el conjunto completo de vectores $\{|SM\rangle\}$ se tiene que:

$$\begin{aligned} \langle S'M' | (-2 \int \alpha) (\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2)^2 / SM \rangle = \\ \int \alpha \left[4S(S+1) - \frac{1}{2} S^2 (S+1)^2 - 8 \right] \delta_{SS'} \delta_{MM'} \end{aligned} \quad (6-10)$$

el resto de los términos es evaluado exactamente igual a como se hizo en ACMO, y también se encuentra que son distintos de cero sólo los siguientes elementos de matriz:

$$\begin{aligned}
\mathcal{H}_{11} &= \langle 22 | \mathcal{H}_2 | 22 \rangle = -2J - 2J\alpha - 2\lambda - 2D \\
\mathcal{H}_{12} &= \langle 21 | \mathcal{H}_2 | 21 \rangle = -2J - 2J\alpha - \lambda - D \\
\mathcal{H}_{33} &= \langle 20 | \mathcal{H}_2 | 20 \rangle = -2J - 2J\alpha - 2/3 D \\
\mathcal{H}_{44} &= \langle 2-1 | \mathcal{H}_2 | 2-1 \rangle = -2J - 2J\alpha + \lambda - D \\
\mathcal{H}_{55} &= \langle 2-2 | \mathcal{H}_2 | 2-2 \rangle = -2J - 2J\alpha + 2\lambda - 2D \\
\mathcal{H}_{66} &= \langle 11 | \mathcal{H}_2 | 11 \rangle = 2J - 2J\alpha - \lambda - D \\
\mathcal{H}_{77} &= \langle 10 | \mathcal{H}_2 | 10 \rangle = 2J - 2J\alpha - 2D \\
\mathcal{H}_{88} &= \langle 1-1 | \mathcal{H}_2 | 1-1 \rangle = 2J - 2J\alpha + \lambda - D \\
\mathcal{H}_{99} &= \langle 00 | \mathcal{H}_2 | 00 \rangle = 4J - 8J\alpha - 4/3 D \\
\mathcal{H}_{39} &= \langle 20 | \mathcal{H}_2 | 00 \rangle = \mathcal{H}_{13} = \langle 00 | \mathcal{H}_2 | 20 \rangle = -(2\sqrt{2}/3)D
\end{aligned} \tag{6-11}$$

con $\lambda = g\beta H$; si es que no existe campo externo $H = H_e$, y como antes, si sólo se consideran interacciones a primeros vecinos y todos son iguales y equivalentes entre sí $H_e = (z-1)H_e'$, con lo cual:

$$\lambda = g\beta(z-1)H_e' = (z-1)H' \tag{6-12}$$

reemplazando (6-12) en (6-11) se tienen los elementos de matriz del Hamiltoniano en términos del campo efectivo por vecino H' . Esta matriz debe ser diagonalizada para encontrar sus autovalores y autovectores. Sean ellos \mathcal{E}_i y $|i\rangle$ respectivamente, entonces la magnetización reducida por átomo es:

$$\sigma_z(H', T) = \left(\frac{1}{2}\right) \frac{\sum_{i=1}^9 \langle i | s_z | i \rangle e^{-\mathcal{E}_i(H')/kT}}{\sum_{i=1}^9 e^{-\mathcal{E}_i(H')/kT}} \tag{6-13}$$

La ecuación (6-13) proporciona la magnetización reducida como función de la temperatura y del campo efectivo H' , el cual es una función arbitraria de la magnetización y debe ser determinado mediante alguna relación de consistencia.

Si el campo efectivo H' es suficientemente bueno (el mejor de todos los posibles) entonces (6-6) y (6-13) deben conducir al mismo resultado, es decir:

$$\sigma_1(H', T) = \sigma_2(H', T) \quad (6-14)$$

esta condición de consistencia permite conocer H' como función de la temperatura y se puede entonces calcular la magnetización reducida mediante (6-6) ó (6-13). Puesto que (6-14) debe ser resuelta numéricamente lo que se obtiene es una relación numérica entre H' y T y entre σ y T .

Para un sistema de iones de spin total $1/2$ el igualar las magnetizaciones reducidas es equivalente a igualar:

$$\rho_1 = T_{r2} \rho_2 \quad (6-15)$$

donde ρ_1 es la matriz densidad para un ión, es decir:

$$\rho_1 = \frac{e^{-\mathcal{H}_1/kT}}{Z_1} \quad (6-16)$$

siendo \mathcal{H}_1 el Hamiltoniano para un ión y Z_1 la función partición ; por otro lado ρ_2 es la matriz densidad para un par de iones y

$$\text{Tr}_2 \rho_2 = \frac{\text{Tr}_2 e^{-\mathcal{H}_2/kT}}{Z_2} \quad (6-17)$$

significa tomar la traza sólo sobre uno de los iones en la matriz densidad, \mathcal{H}_2 es el Hamiltoniano del par y Z_2 la función partición. Esta equivalencia está detallada en /13/.

Strieb, Callen y Horwitz /11/ muestran que, para sistemas con spin arbitrario, una condición de consistencia equivalente es imponer que el valor de $\langle S_z \rangle$ calculado mediante:

$$\langle S_z \rangle = \left(\frac{1}{2} \right) \text{Tr} (S_{1z} + S_{2z}) \rho_{12}$$

sea igual al obtenido derivando la energía libre de Helmholtz respecto al campo.

Las propiedades termodinámicas del sistema se calculan usando el Hamiltoniano (6-7) luego que el campo efectivo ha sido determinado mediante la condición (6-14). Al resolver (6-14) además de determinar el campo efectivo (H') se encuentran los autovalores del Hamiltoniano (6-7), si llamamos ϵ_i a esos autovalores, entonces la energía interna es:

$$U = \frac{\sum_{i=1}^g \epsilon_i e^{-\epsilon_i/kT}}{\sum_{i=1}^g e^{-\epsilon_i/kT}} \quad (6-18)$$

La energía libre de Helmholtz es calculada mediante la relación:

$$F = -kT \ln Z \quad (6-19)$$

donde Z es la función partición definida por:

$$Z = \sum_{i=1}^g e^{-\epsilon_i/kT} \quad (6-20)$$

Finalmente se calcula la entropía, con la relación:

$$S/k = (1/kT)(U - F) \quad (6-21)$$

siendo U y F la energía interna y la energía libre de Helmholtz respectivamente y k la constante de Boltzman; el resto de las funciones termodinámicas pueden calcularse de un modo similar.

Debe hacerse notar que sólo se obtiene una relación numérica entre estas funciones termodinámicas y la temperatura, sin embargo ello no es obstáculo para extraer bastante información sobre las propiedades del sistema.

Otra función interesante de calcular en los sistemas que presentan ordenamiento magnético es la función correlación de spin, definida por:

$$G = (1/S^2) \langle \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \rangle \quad (6-22)$$

esta función es una medida de la correlación existente entre los spines de un par de iones del sistema, es decir muestra cuanto es, en promedio, la interacción entre el i-ésimo y el j-ésimo ión.

Puesto que se está usando una aproximación de pares y con la restricción que los iones sean primeros vecinos entre sí, se calcula la función correlación de spin para vecinos más cercanos; para iones con spin total $S = 1$ es:

$$G = \langle \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 \rangle = \frac{\text{Tr}(\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 e^{-\mathcal{H}_2/kT})}{\text{Tr} e^{-\mathcal{H}_2/kT}} \quad (6-23)$$

que se evalúa definiendo $\vec{S} = \vec{S}_1 + \vec{S}_2$. Se tiene entonces:

$$\vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 = \frac{1}{2} (S^2 - S_1^2 - S_2^2) \quad (6-24)$$

Usando el conjunto completo de vectores $\{|S_1 S_2 S M\rangle\}$ se evalúan los elementos de matriz; éstos son:

$$\langle S_1 S_2 S' M' | \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 | S_1 S_2 S M \rangle = \left[\frac{1}{2} S(S+1) - 2 \right] \delta_{SS'} \delta_{MM'} \quad (6-25)$$

conociendo los elementos de matriz se calcula $G(T)$, esto se hizo numéricamente.

Para resolver la ecuación (6-14) y calcular la magnetización reducida la energía interna, la energía libre de Helmholtz la entropía y la función correlación de spin se elaboró el programa ACA, que figura en el apéndice.

VII. RESULTADOS NUMERICOS

A. Caso $\alpha = 0$

Por comodidad se mostrarán primero los resultados obtenidos para el caso $\alpha = 0$, i. e., sin considerar el término bicuadrático. Este caso fue tratado usando las tres aproximaciones mencionadas en los capítulos anteriores (ACMW, ACMO y ACA) esto permitió comparar entre sí las aproximaciones usadas. Luego, usando ACA, se mostrará de qué manera se modifican los resultados al considerar el parámetro α variando en el intervalo $0 \leq \alpha \leq 1$.

Usando los programas que figuran en el apéndice se pueden resolver, numéricamente, las ecuaciones (3-18), (4-13) y (6-14) las que permiten conocer la magnetización reducida y el campo efectivo como función de la temperatura para ACMW, ACMO y ACA.

Lo primero que se observa es que el sistema descrito por el Hamiltoniano (2-31) presenta, en las tres aproximaciones, una magnetización neta en ausencia de campo externo para temperaturas que estén por debajo de cierta temperatura crítica (gráficos 1, 2 y 3). Tanto ACMW como ACMO predicen una saturación completa de la magnetización a tempe-

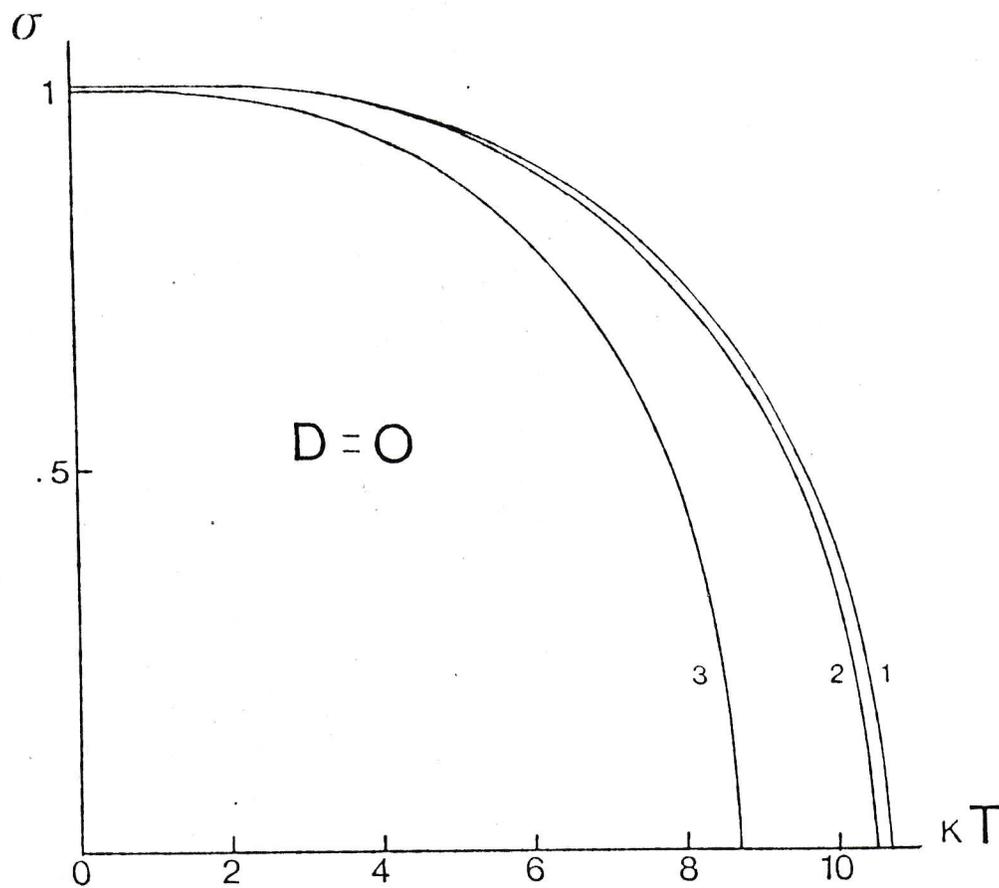


GRAFICO 1.

Magnetización reducida v/s kT , en unidades arbitrarias;
para $z = 8$, $\phi = 1$. Curva 1: campo molecular de Weiss,
Curva 2: campo molecular de Oguchi,
Curva 3: constante de acoplamiento

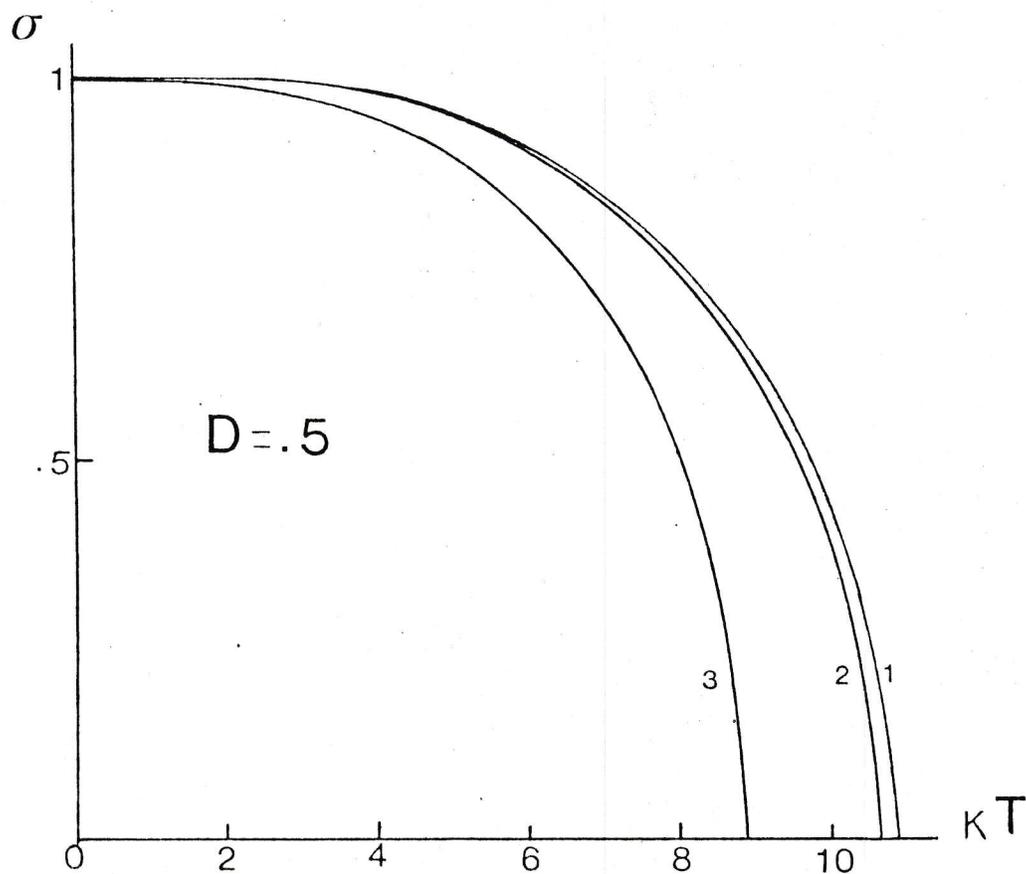


GRAFICO 2

Magnetización reducida v/s KT , en unidades arbitrarias;
 para $z = 8$, $f = 1$. Curva 1: campo molecular de Weiss,
 Curva 2: campo molecular de Oguchi,
 Curva 3: constante de acoplamiento

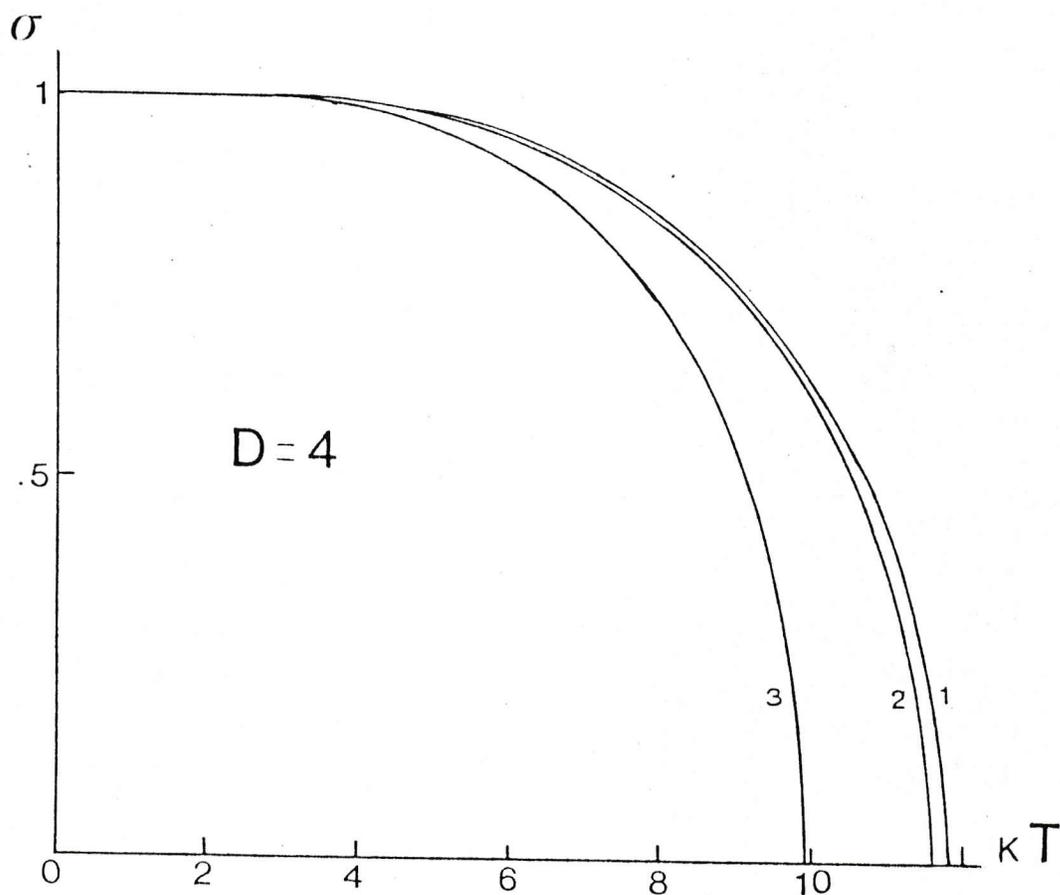


GRAFICO 3.

Magnetización reducida $v/s kT$, en unidades arbitrarias;
 para $z = 8, \beta = 1$. Curva 1: campo molecular de Weiss,
 Curva 2: campo molecular de Oguchi,
 Curva 3: constante de acoplamiento

ratura cero, esto es $\sigma_{ACMw}(T=0) = \sigma_{ACMo}(T=0) = 1$, para todo valor de D . No sucede lo mismo en ACA, por ejemplo para $z = 8$ se tiene:

$$\sigma_{ACA}(T=0) = \begin{cases} 0.996 & \text{para } D = 0 \\ 0.997 & \text{para } D = 0.5 \\ 1.0 & \text{para } D \geq 4 \end{cases}$$

Es probable que esta "deficiencia" del método provenga del hecho que en ACA el campo efectivo que actúa sobre el ión magnético comienza a aumentar cuando la temperatura comienza a descender ($T < T_c$), pero luego alcanza un máximo y comienza a disminuir si es que se continúa bajando la temperatura, para finalmente hacerse cero a temperatura cero. Este comportamiento se observa para todos los valores del parámetro D estudiados. La dependencia del campo con la temperatura es mostrada en los gráficos 4 y 5 para $D = 0$ y $D = 4$ respectivamente. En estas mismas figuras puede notarse que el campo efectivo es mayor cuando aumenta D al compararlos para una temperatura fija cualquiera en el intervalo $0 < T < T_c$, esto junto con el hecho que $\sigma_{ACA}(T=0) = 1$ para $D \geq 4$ parecería confirmar que la "anomalía" en la magnetización espontánea se debe, efectivamente, al "mal comportamiento" del campo (es decir el campo efectivo se anula a temperatura cero). En las aproximaciones de campo molecular el campo efectivo es proporcional a la magnetización (ecuaciones (3-17) y (4-12) por lo que al disminuir la temperatura (lo que significa que aumente la magnetización) el campo aumenta, rápidamente al

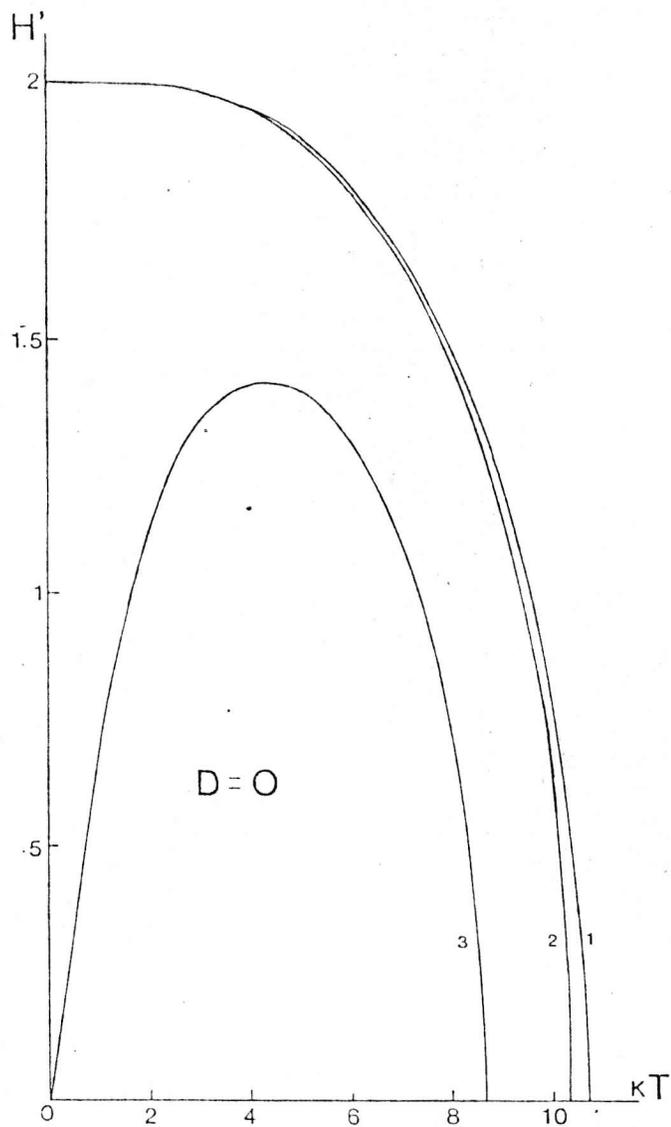


GRAFICO 4.

H' v/s kT , en unidades arbitrarias; para $z = 8$, $g = 1$.
 Curva 1: campo molecular de Weiss,
 Curva 2: campo molecular de Oguchi,
 Curva 3: constante de acoplamiento

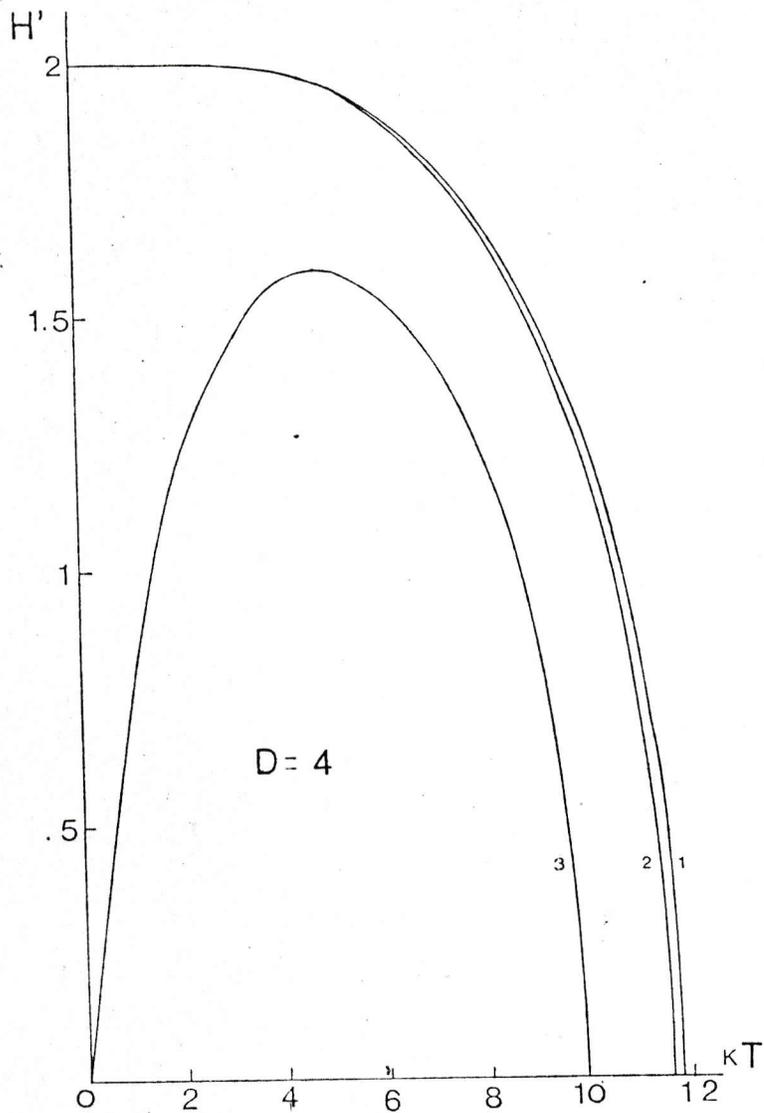


GRAFICO 5.

H' v/s kT , en unidades arbitrarias; para $z=8$, $f = 1$.
 Curva 1: campo molecular de Weiss,
 Curva 2: campo molecular de Oguchi,
 Curva 3: constante de acoplamiento

principio y luego más y más lentamente hasta alcanzar su completa saturación para temperaturas lo suficientemente bajas (gráficos 4 y 5).

Desde un punto de vista físico cabe preguntarse qué hace que los iones orienten sus momentos magnéticos si el campo efectivo que actúa sobre ellos es nulo (para $T = 0$), esto puede responderse diciendo que para temperaturas suficientemente bajas los efectos de agitación térmica son cada vez más pequeños de modo que el "campo necesario" para ordenarlos es cada vez menor, es una manifestación de la tercera ley de la termodinámica, la cual exige que la entropía sea cero para temperatura cero, esto significa que el "ordenamiento" de los momentos magnéticos sea total y al ser ésta una aproximación de pares el "ordenamiento" significa que los dos iones tengan sus momentos paralelos independientes de la existencia de un campo efectivo (para $T = 0$).

Otro resultado importante es que las temperaturas críticas son diferentes para cada una de las tres aproximaciones usadas; las obtenidas mediante ACA resultan ser siempre menores que las obtenidas en ACMO y estas últimas, a su vez, son menores que las obtenidas en ACMW, esto sucede para cualquier valor del parámetro de anisotropía D (gráfico 6). En este mismo gráfico (gráfico 6) se puede ver que para valores pequeños de D la temperatura crítica aumenta cuando D aumenta, sin embargo para valores muy grandes (por ejemplo $D > 120$

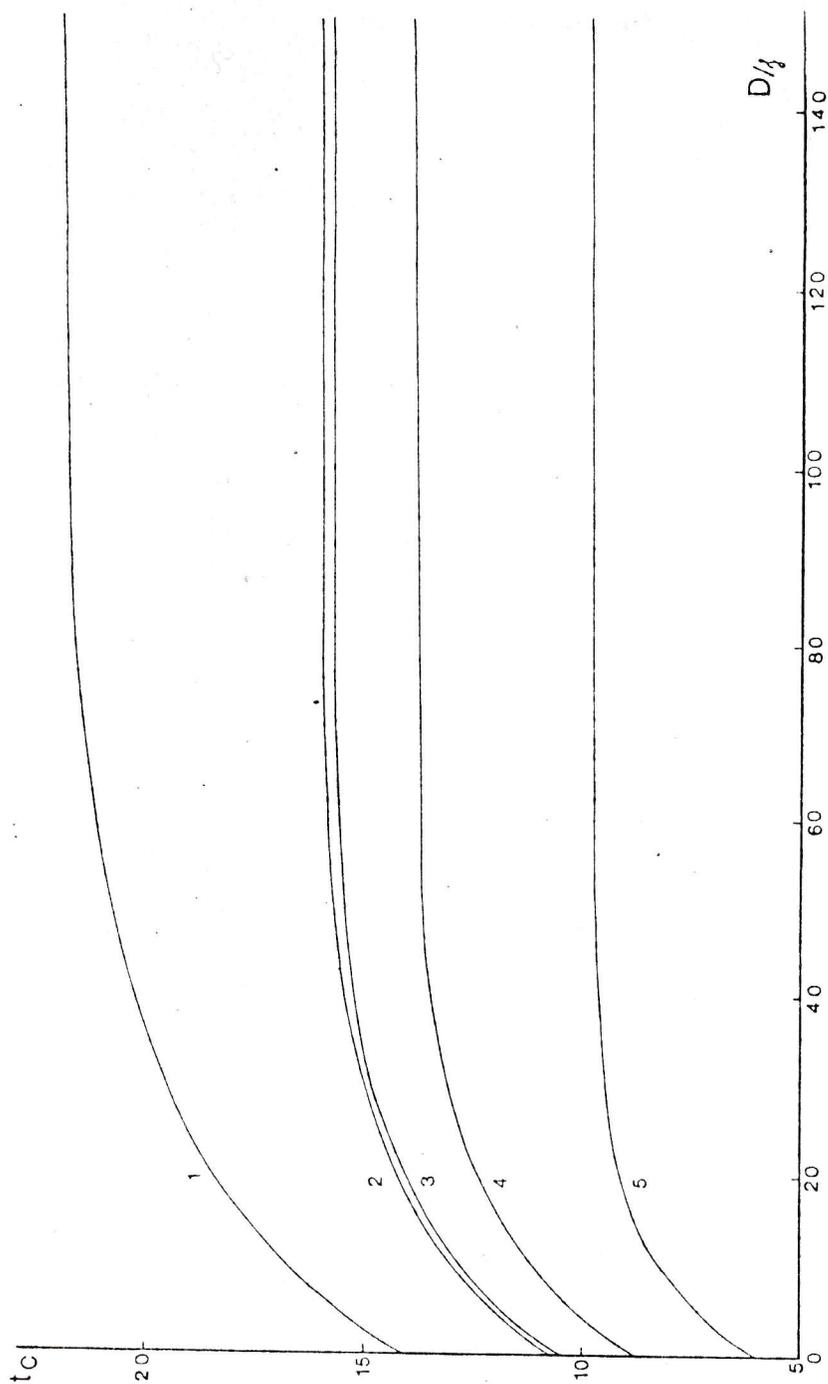


GRAFICO 6.

- $t_c = kT_c/\delta$ v/s D/δ
- Curva 1: constante de acoplamiento para $z = 12$
 - Curva 2: campo molecular de Weiss para $z = 8$,
 - Curva 3: campo molecular de Oguchi para $z = 8$,
 - Curva 4: constante de acoplamiento para $z = 8$,
 - Curva 5: constante de acoplamiento para $z = 6$.

para $z = 6$ y $z = 8$ y $D > 150$ para $z = 12$) la temperatura crítica (o kT_c) se hace constante, es decir un aumento de D no se traduce en un aumento de kT_c , esto sucede en las tres aproximaciones usadas, este resultado es importante pues se puede mostrar que la temperatura crítica debe permanecer finita cuando $D \rightarrow \infty$. En ACMW el sistema tiene tres autovalores de energía $\mathcal{E}_1 = -g\beta H - D$, $\mathcal{E}_2 = 0$, $\mathcal{E}_3 = g\beta H - D$, correspondientes a los estados $|11\rangle$, $|10\rangle$ y $|1-1\rangle$ respectivamente. La separación entre \mathcal{E}_2 y \mathcal{E}_3 (o entre \mathcal{E}_2 y \mathcal{E}_1) es proporcional a D , por lo tanto para D pequeño es posible que aumentos de temperatura produzcan transiciones entre estados, pero cuando D es muy grande la separación entre los niveles es tan grande que resulta imposible obtener transiciones entre los estados, por lo que kT_c debe converger cuando D se hace infinito. Más aún, es posible encontrar analíticamente la temperatura crítica para los casos particulares $D = 0$ y $D \rightarrow \infty$, para otros valores de D se obtiene una ecuación que debe resolverse numéricamente.

i) caso $D = 0$

Cuando $D = 0$ la ecuación (3-14) es:

$$\sigma = \frac{e^{2z\beta\sigma/kT} - e^{-2z\beta\sigma/kT}}{e^{2z\beta\sigma/kT} + e^{-2z\beta\sigma/kT} + 1}$$

usando el hecho de que $\sigma \rightarrow 0$ cuando $kT \rightarrow kT_c$ se pueden expandir en serie las exponenciales y considerar sólo los tér-

minos lineales, con ello la ecuación (3-14) se transforma en:

$$\sigma = \frac{1 + 2z \frac{J\sigma}{kT_c} - 1 + 2z \frac{J\sigma}{kT_c}}{1 + 2z \frac{J\sigma}{kT_c} + 1 - 2z \frac{J\sigma}{kT_c} + 1}$$

simplificando y arreglando se tiene:

$$\frac{kT_c^{ACMW}}{J} (D=0) = \frac{4}{3} z = \begin{cases} 8 & (z=6) \\ 10.66 & (z=8) \\ 16 & (z=12) \end{cases}$$

ii) caso $D \rightarrow \infty$

Cuando $D \neq 0$ la magnetización reducida

(ec. 3-14) es:

$$\sigma = \frac{e^{2z \frac{J\sigma}{kT}} - e^{-2z \frac{J\sigma}{kT}}}{e^{2z \frac{J\sigma}{kT}} + e^{-2z \frac{J\sigma}{kT}} + e^{-D/kT}}$$

si $D \rightarrow \infty$ entonces $e^{-D/kT} \rightarrow 0$ y expandiendo en serie las exponenciales y tomando sólo los términos lineales se tiene:

$$\frac{kT_c^{ACMW}}{J} (D \rightarrow \infty) = 2z = \begin{cases} 12 & (z=6) \\ 16 & (z=8) \\ 24 & (z=12) \end{cases}$$

Para ACMO intentar encontrar analíticamente una expresión para kT_c/J no es tan sencillo; si bien al considerar $D = 0$ la matriz Hamiltoniana es diagonal lo que se obtiene para kT_c/J es una expresión que debe ser resuelta numéricamente.

Los resultados obtenidos en este trabajo muestran que:

$$\frac{T_c^{ACMW}(D \rightarrow \infty)}{T_c^{ACMW}(D=0)} = 1.5 \quad (\text{independiente de } z)$$

$$\frac{T_c^{ACA}(D \rightarrow \infty)}{T_c^{ACA}(D=0)} = \begin{cases} 1.67 & (z=6) \\ 1.60 & (z=8) \\ 1.57 & (z=12) \end{cases}$$

Esto indica que la influencia de la anisotropía sobre las temperaturas críticas es mayor en ACA que en ACMW y dentro de ACA es mayor cuando es menor el número de vecinos.

Resulta además interesante analizar la energía interna obtenida mediante ACA y compararla con la obtenida al usar ACMW (gráfico 7). La energía interna tiene un curioso comportamiento, primero comienza a disminuir cuando la temperatura disminuye por debajo de la temperatura crítica pero luego alcanza un mínimo y comienza a aumentar, este comportamiento es debido al "mal comportamiento" del campo efectivo. La principal crítica que puede hacerse a la función energía interna es que resulta difícil de entender el hecho que al bajar la temperatura por debajo de un cierto valor la energía interna total del sistema aumente, esto se traduce en un calor específico negativo para bajas temperaturas, lo cual no es fácil de explicar. La energía interna total calculada mediante ACMW no tiene estos inconvenientes, disminuye al disminuir la temperatura hasta hacerse constante a temperaturas suficiente

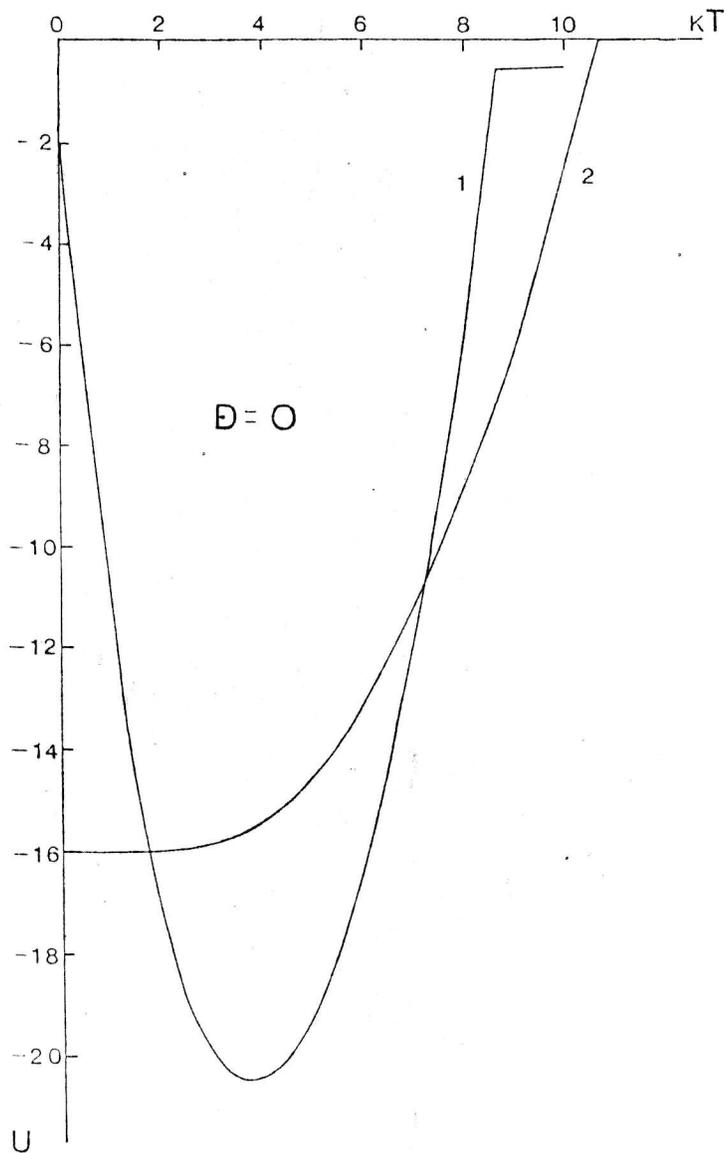


GRAFICO 7.

Energía interna v/s kT , en unidades arbitrarias; para $z = 8$, $\beta = 1$
 Curva 1: constante de acoplamiento,
 Curva 2: campo molecular de Weiss

mente bajas, esto implica que el calor específico es cero para $T = 0$, y éste si es un resultado físicamente aceptable. Diferentes valores de D , no cambian la forma de la energía interna total para ninguna de las dos aproximaciones que se están comparando, sólo cambian los valores numéricos.

Sin embargo, si nos limitamos a la energía de intercambio entre los iones, calculada mediante ACA, el resultado es completamente diferente. El término de intercambio del Hamiltoniano es:

$$\mathcal{H}_{inter} = -2J \sum_{\langle i,j \rangle} (\vec{S}_i \cdot \vec{S}_j)$$

el cual se transforma en

$$\mathcal{H}_{inter} = -2Jz \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2$$

al considerar interacción sólo con los z primeros vecinos. Esto significa que la energía de intercambio U_{inter} es:

$$U_{inter} = \langle \mathcal{H}_{inter} \rangle = -2Jz \langle \vec{S}_1 \cdot \vec{S}_2 \rangle$$

donde $\langle \dots \rangle$ es el promedio térmico estadístico definido según (3-4). Usando la definición de función correlación de spin $\mathcal{G}(T)$ (ec. 6-23) la energía interna de intercambio es simplemente:

$$U_{inter} = -2Jz\mathcal{G}$$

La función $\zeta(T)$ se muestra en el gráfico 14 para diferentes valores de D y α . De la forma de $\zeta(T)$ se tiene que la energía de intercambio (y el calor específico de intercambio) tiene una forma físicamente aceptable, es decir comienza a disminuir al bajar la temperatura ($T < T_c$) para finalmente hacerse constante a temperaturas suficientemente bajas, con este comportamiento el calor específico de intercambio es cero a temperatura cero y positivo para temperaturas entre cero y T_c .

B. Caso: $0 \leq \alpha \leq 1$

Se mostrarán los resultados obtenidos cuando se considera el término bicuadrático en el Hamiltoniano. Tal como se señaló anteriormente la influencia del término bicuadrático es estudiado sólo dentro de ACA. El principal objetivo es ver de qué manera se modifican los resultados obtenidos cuando la anisotropía del campo cristalino y la interacción de intercambio bicuadrático son consideradas.

Lo primero que se puede notar es que tampoco se tiene una saturación completa de la magnetización a temperatura cero, los valores obtenidos para $\zeta(T=0)$ se muestran en la siguiente tabla, para $z = 8$.

D \ $\alpha =$	0	.5	1
0	0.9960	0.9959	0.9955
.5	0.9973	0.9972	0.9930
4	1.	0.9990	0.9920
∞	1.	1.	0.9920

Anteriormente se hizo notar que cuando $\alpha = 0$ un aumento de D conduce a que $\sigma \rightarrow 1$ cuando $T \rightarrow 0$, de la tabla anterior se puede ver que para $\alpha = .5$ el aumento de D también ayuda a una saturación completa pero cuando $\alpha = 1$ la cosa es a la inversa, es decir un aumento de D disminuye la magnetización a temperatura cero. Al analizar las curvas de magnetización reducida v/s temperatura reducida (gráfico 8) se tiene que para $\alpha = 0$ la curva correspondiente a $D = 4$ está por encima de la correspondiente a $D = 0$ para cualquier temperatura en el intervalo $0 < T < T_c$; sin embargo cuando $\alpha = 1$ la situación es a la inversa, o sea la curva para $D = 0$ está por encima de la curva para $D = 4$. Este comportamiento será discutido en el próximo capítulo.

La inclusión del término bicuadrático no cambia el comportamiento del campo efectivo pues subsiste el hecho de que se anula cuando la temperatura tiende a cero (gráfico 9). Cuando se mostraron los resultados obtenidos con $\alpha = 0$ se hizo notar que el campo efectivo era mayor para $D = 4$ que para $D = 0$, y se dijo que este aumento podía ser la explicación de que la magnetización se sature, a temperatura cero, para $D \geq 4$. Sin embargo, al considerar $\alpha = 1$ vemos

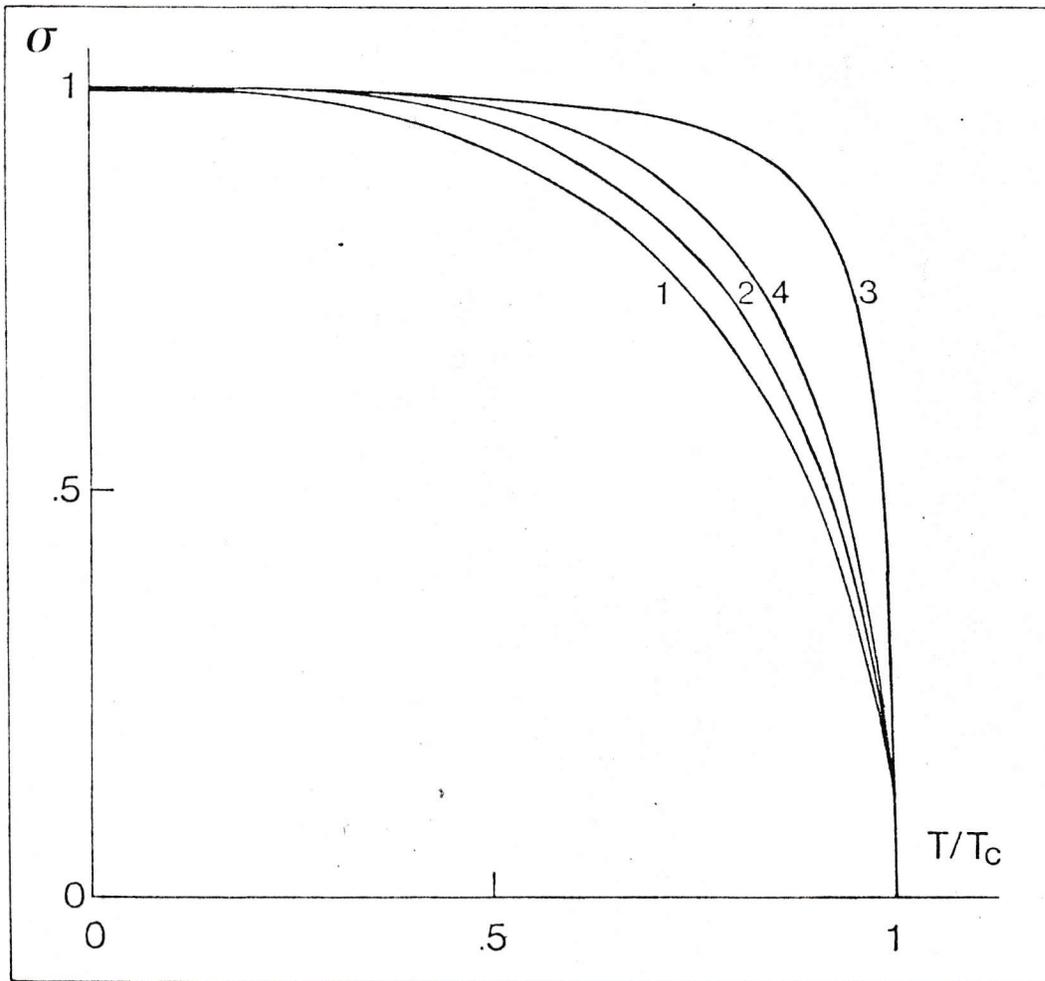


GRAFICO 8.

Magnetización reducida v/s Temperatura reducida. En aprox. de constante de acoplamiento; para $z=8$, $\beta=1$.

Curva 1: $\alpha = 0$, $D = 0$

Curva 2: $\alpha = 0$, $D = 4$

Curva 3: $\alpha = 1$, $D = 0$

Curva 4: $\alpha = 1$, $D = 4$

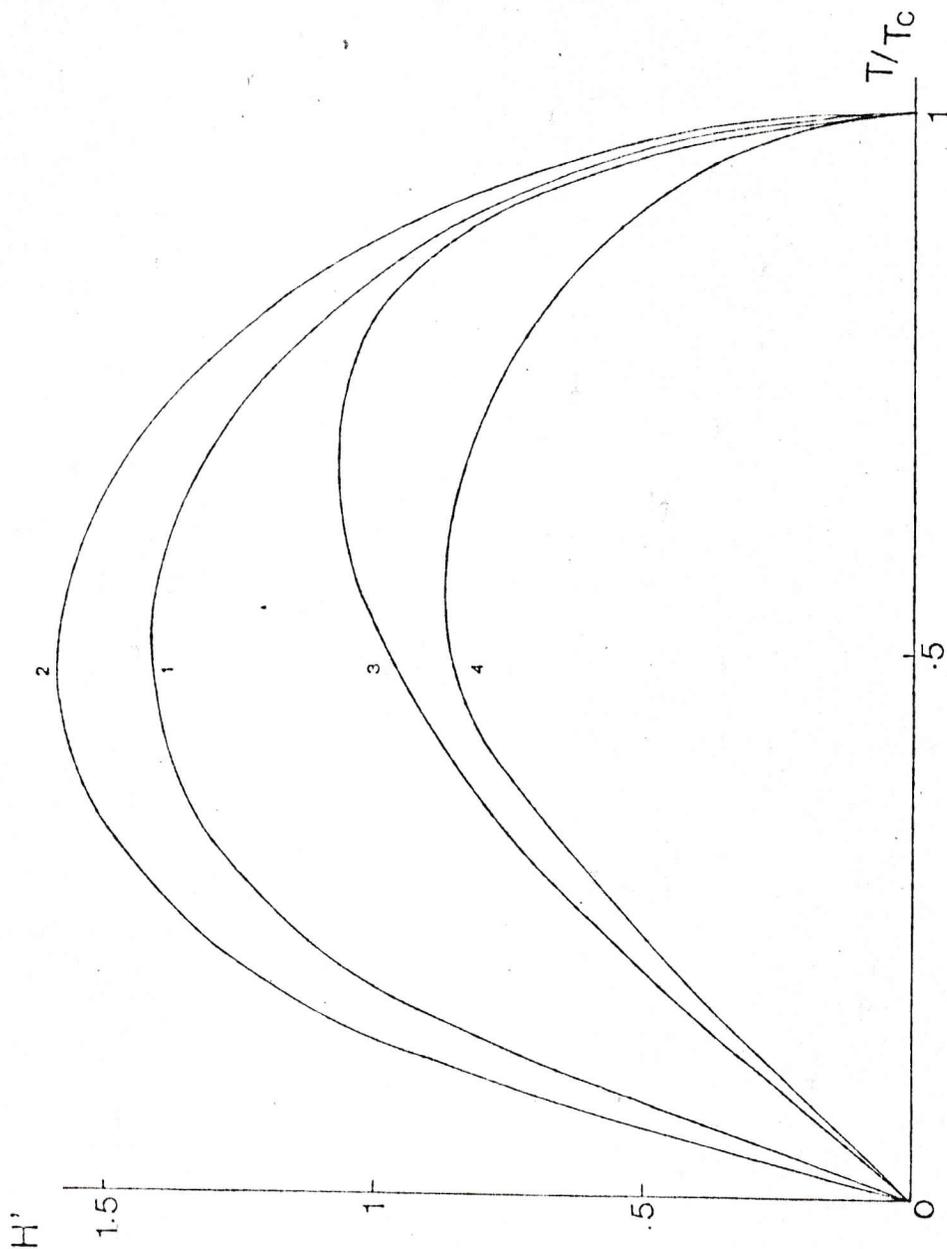


GRAFICO 9.

H' v/s Temperatura reducida, unidades arbitrarias. En aprox. de constante de acoplamiento; para $z = 8$, $\beta = 1$.

Curva 1: $\alpha = 0$, $D = 0$;

Curva 2: $\alpha = 0$, $D = 4$;

Curva 3: $\alpha = 1$, $D = 0$;

Curva 4: $\alpha = 1$, $D = 4$

que la situación se invierte pues ahora se tiene que el campo efectivo para $D = 0$ es mayor que para $D = 4$ y en efecto esto se refleja en que, cuando $\alpha = 1$, la magnetización a $T = 0$ disminuye al aumentar D .

La temperatura crítica sigue siendo finita cuando $D \rightarrow \infty$ (gráfico 10); pero la inclusión de α la hace disminuir, además hace que kT_c se haga constante, como función de D , para un valor de D menor que el que se tenía cuando $\alpha = 0$. El gráfico 11 muestra cómo varía la temperatura crítica como función de α para diferentes valores de D . Se puede notar que para $\alpha = 1$ ya casi no existe diferencia entre los valores de $t_c = kT_c/f$ cuando $D > 10$ (para $z = 8$) y $D > 5$ (para $z = 6$).

Respecto a las propiedades termodinámicas del sistema, los gráficos 12, 13 y 14, muestran la energía interna, entropía y función correlación de spin para vecinos más cercanos como función de la temperatura para diferentes valores de α y D .

La energía interna total sigue dando origen a un calor específico negativo para bajas temperaturas y no hay prácticamente ningún cambio en la forma general de las curvas, sólo en los valores numéricos.

La entropía se comporta en forma correcta, i.e. se hace cero para temperatura cero; su derivada, respecto a la temperatura, es discontinua para $T = T_c$ lo que significa

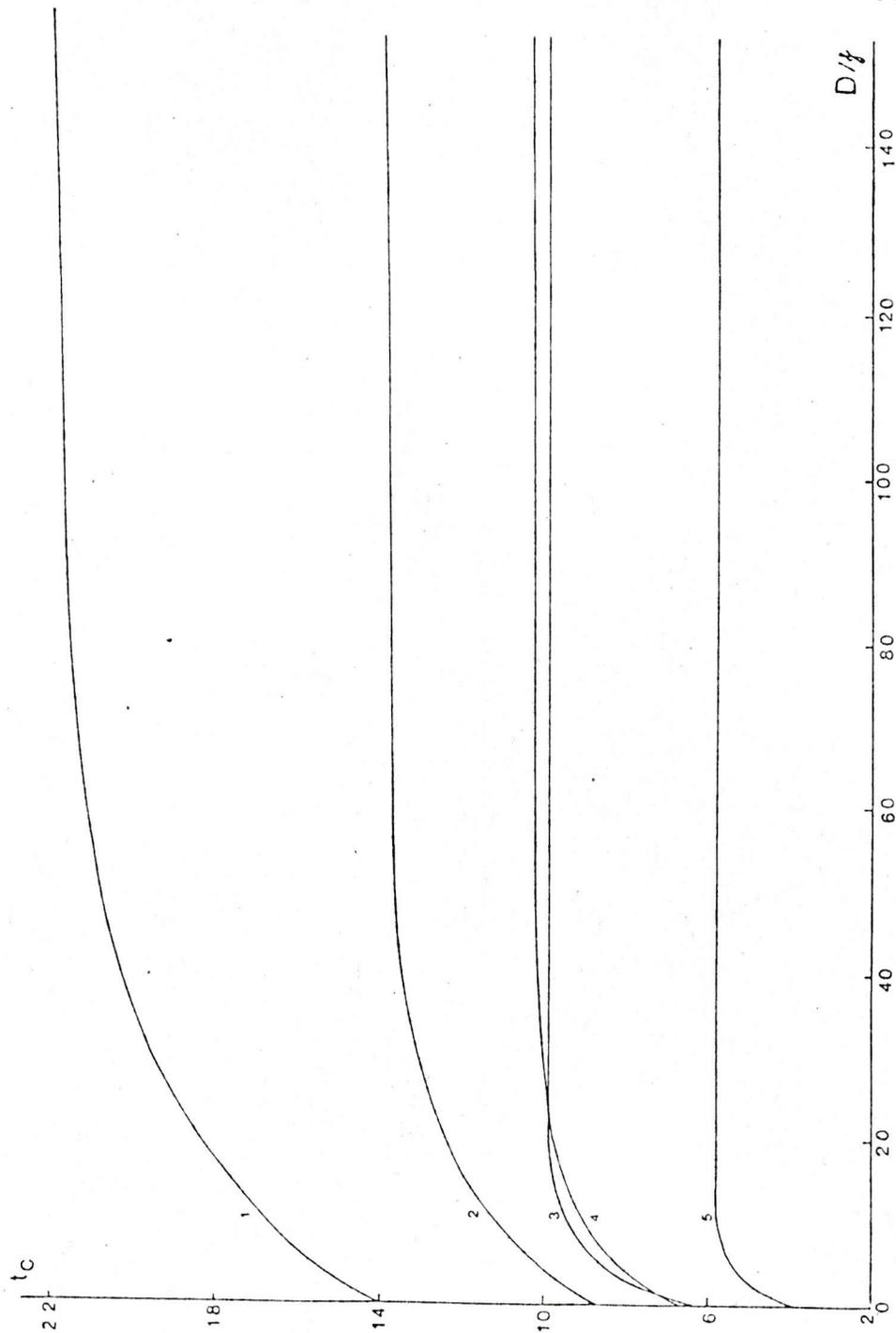


FIGURA 10.

$t_c = kT_c/\gamma$ v/s D/γ . En aprox, de constante de acoplamiento.

- Curva 1: $\lambda = 0$, $z = 12$;
 Curva 2: $\lambda = 0$, $z = 8$;
 Curva 3: $\lambda = 1$, $z = 12$;
 Curva 4: $\lambda = .5$, $z = 8$;
 Curva 5: $\lambda = 1$, $z = 8$;

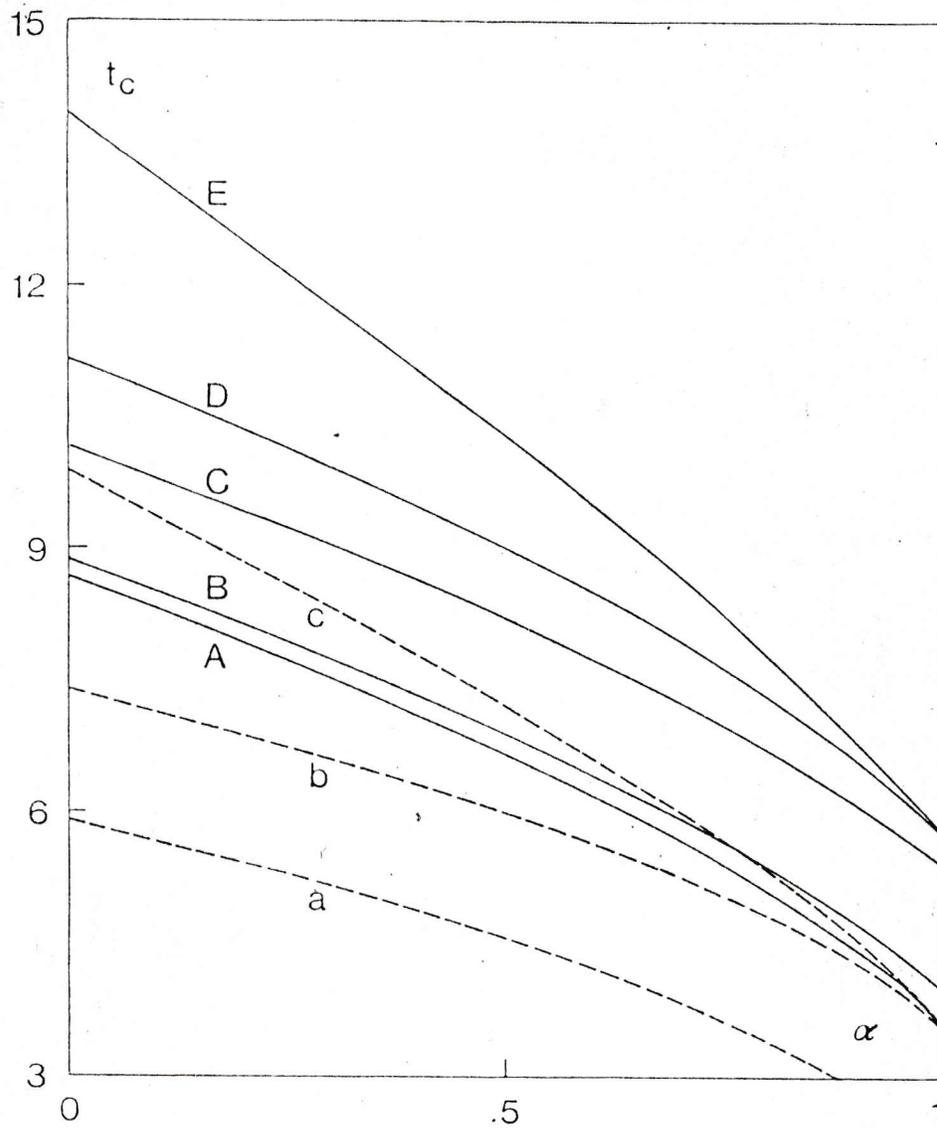


GRAFICO 11.

$t_c = kTc/\delta \quad v/s \quad \alpha$. En aprox, de constante de acoplamiento.
 Para $z = 8$ (línea llena),
 Curva A: $D = 0$, Curva B: $D = .5$, Curva C: $D = 5$,
 Curva D: $D = 10$, Curva E: $D = \infty$
 Para $z = 6$ (línea punteada)
 Curva a: $D = 0$, Curva b: $D = 5$, Curva c: $D = \infty$

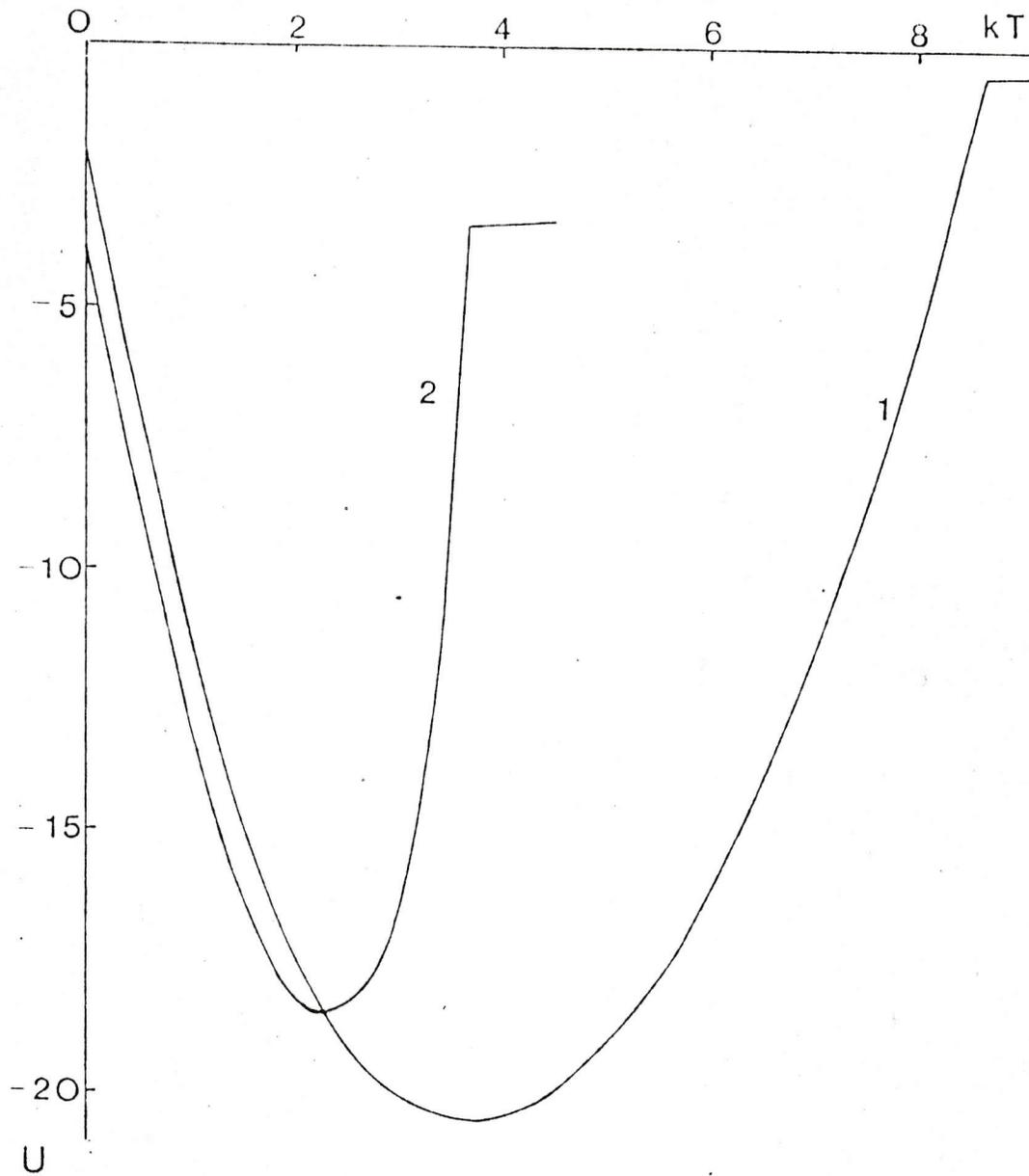


GRAFICO 12

Energía interna v/s kT , en unidades arbitrarias;
para $D = 0$, $z = 8$, $f = 1$
Curva 1: $\alpha = 0$
Curva 2: $\alpha = 1$

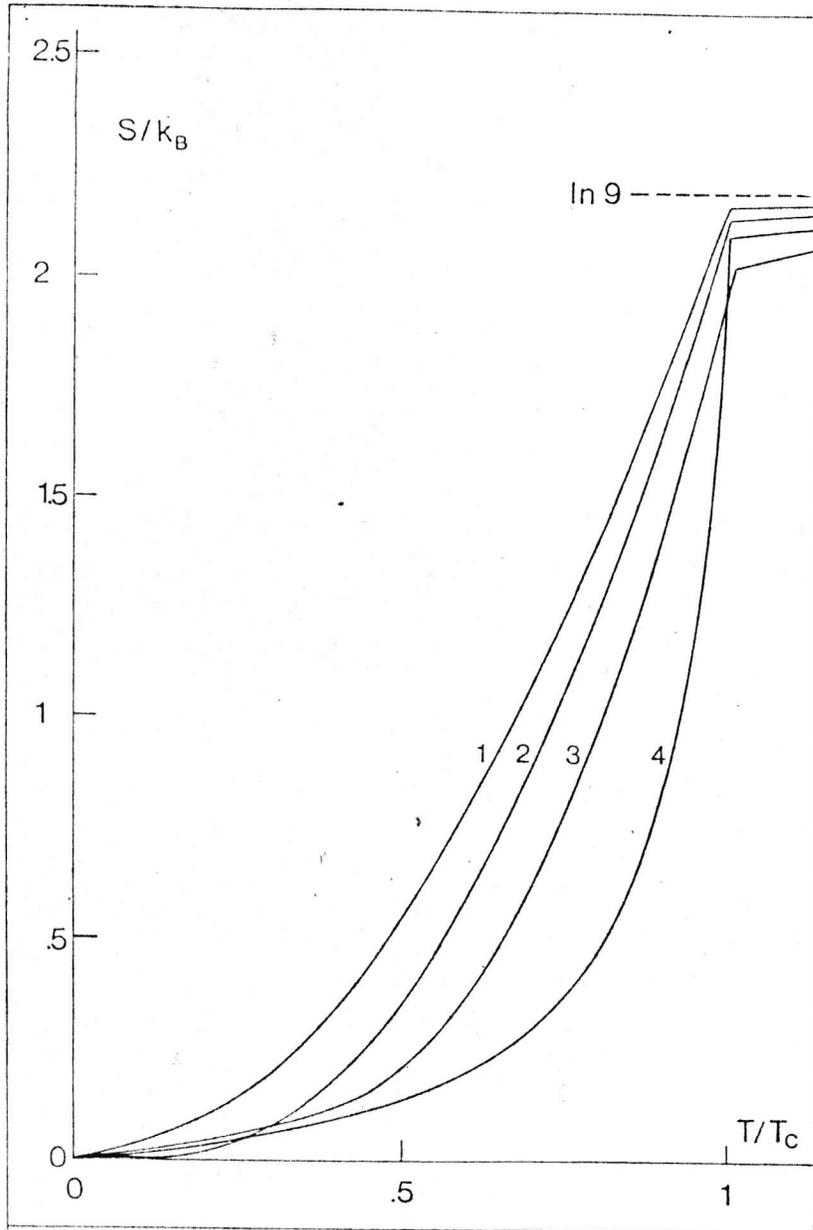


GRAFICO 13

Entropía v/s temperatura reducida; para $z = 8$, $j = 1$.

Curva 1: $\alpha = 0$, $D = 0$;

Curva 2: $\alpha = 0$, $D = 4$;

Curva 3: $\alpha = 1$, $D = 0$;

Curva 4: $\alpha = 1$, $D = 4$

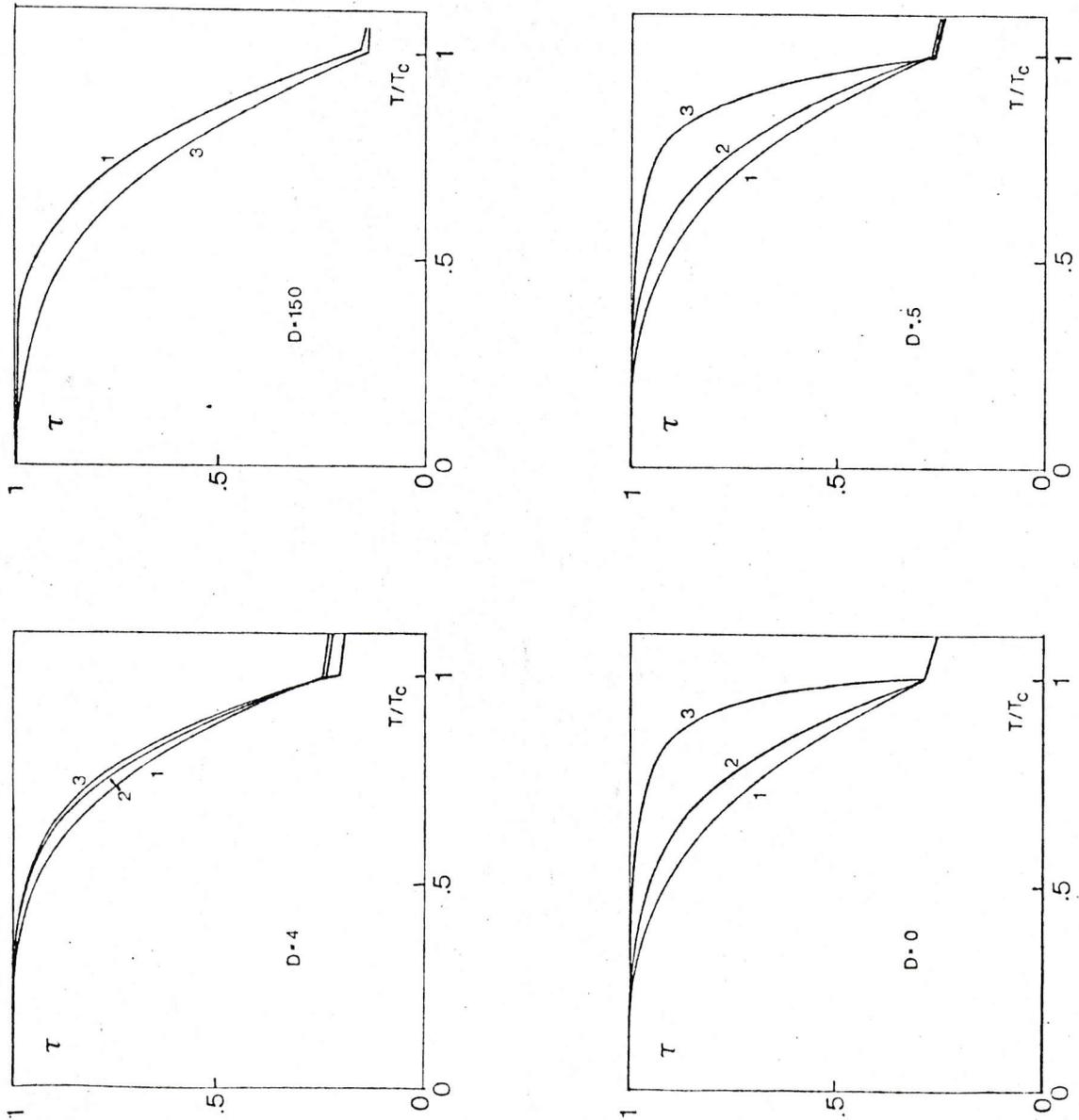


GRAFICO 14

Función correlación de spin de pares de primeros vecinos v/s
 Temperatura reducida; para $z = 8$, $\phi = 1$.

Curva 1: $\lambda = 0$,
 Curva 2: $\lambda = .5$,
 Curva 3: $\lambda = 1$

que la transición de fase del estado ferromagnético a un estado paramagnético es de segundo orden y finalmente $S \rightarrow k \ln 9$ cuando $T \rightarrow \infty$ lo cual también es físicamente correcto pues el sistema par de iones que se está analizando tiene nueve estados.

Por último la función correlación de spin (\mathcal{Z}) muestra que para temperaturas mayores que la temperatura crítica los spins de ambos iones no son totalmente independientes uno de otro ($\mathcal{Z} \neq 0$ para $T > T_c$). Es interesante notar que, para $z = 8$, cuando $D = 0$ el valor de \mathcal{Z} para $T > T_c$ es independiente de α y para $T < T_c$ la curva correspondiente a $\alpha = 1$ está por encima de la curva para $\alpha = .5$ y esta última, a su vez, por encima de la curva para $\alpha = 0$. Cuando $D = .5$ las tres curvas se cruzan para un cierto valor de T/T_c ligeramente menor que 1 y desde ese punto en adelante se tiene que $\mathcal{Z}(\alpha = 1) < \mathcal{Z}(\alpha = .5) < \mathcal{Z}(\alpha = 0)$; para $D = 4$ el cruce se produce para un valor de T/T_c menor al del caso anterior, (cuando $D = .5$); finalmente cuando $D = 150$ la situación es a la inversa del caso $D = 0$, i.e., $\mathcal{Z}(\alpha = 1) < \mathcal{Z}(\alpha = .5) < \mathcal{Z}(\alpha = 0)$ para todo valor de T/T_c , la diferencia entre $\mathcal{Z}(\alpha = 0)$ y $\mathcal{Z}(\alpha = .5)$ es tan pequeña que esta última curva no se ha incluido para mayor claridad del dibujo.

También resulta interesante estudiar la evolución de los autovalores de energía del Hamiltoniano en términos de α , estos se muestran en los gráficos 15, 16 y 17 para $D = 0, 10$ y 100 respectivamente cuando $kT = 3$; $\beta = 1$

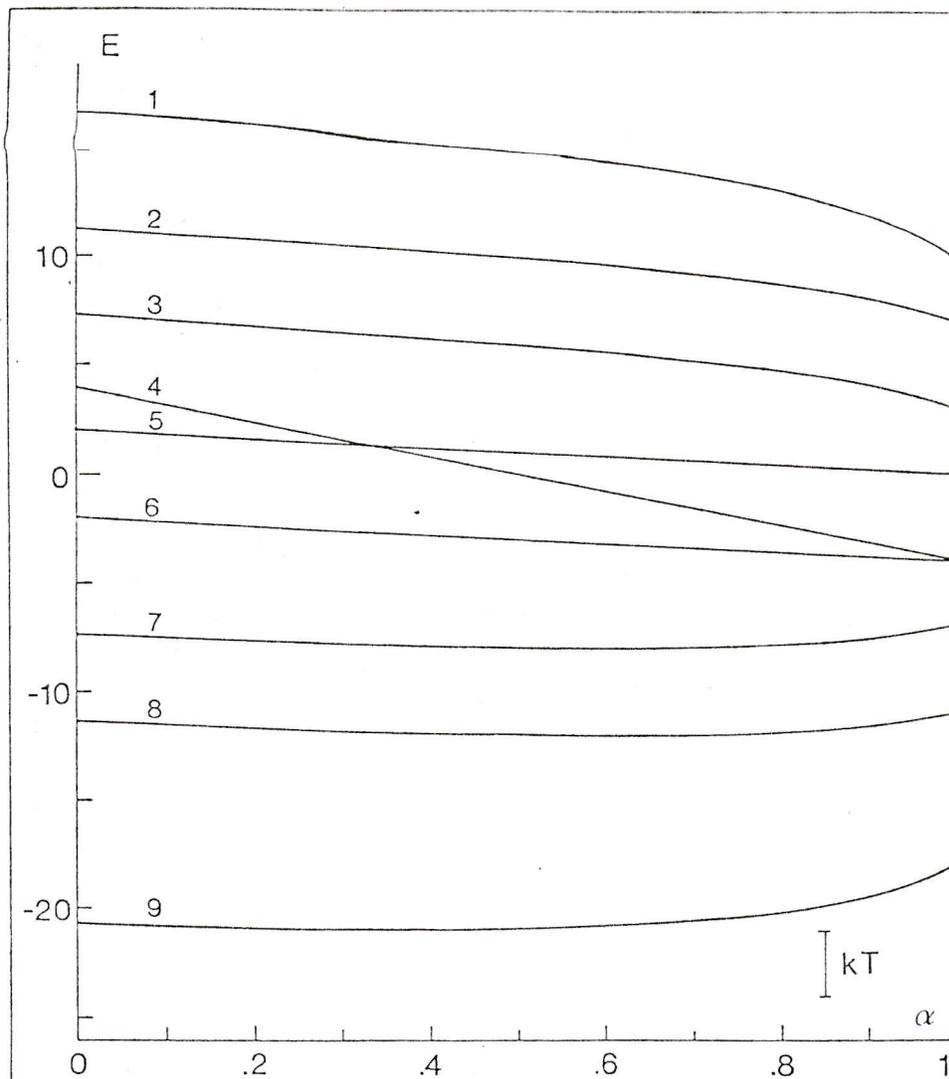


GRAFICO 15.

Niveles de energía v/s α , unidades arbitrarias; para $D = 0$,
 $kT = 3$, $z = 8$, $\frac{1}{2} = 1$.

Curva 1: $\langle 2-2/\mathcal{X}_2/2-2 \rangle$

Curva 3: $\langle 2-1/\mathcal{X}_2/2-1 \rangle$

Curva 5: $\langle 10/\mathcal{X}_2/10 \rangle$

Curva 7: $\langle 11/\mathcal{X}_2/11 \rangle$

Curva 9: $\langle 22/\mathcal{X}_2/22 \rangle$

Curva 2: $\langle 1-1/\mathcal{X}_2/1-1 \rangle$

Curva 4: $\langle 00/\mathcal{X}_2/00 \rangle$

Curva 6: $\langle 20/\mathcal{X}_2/20 \rangle$

Curva 8: $\langle 21/\mathcal{X}_2/21 \rangle$

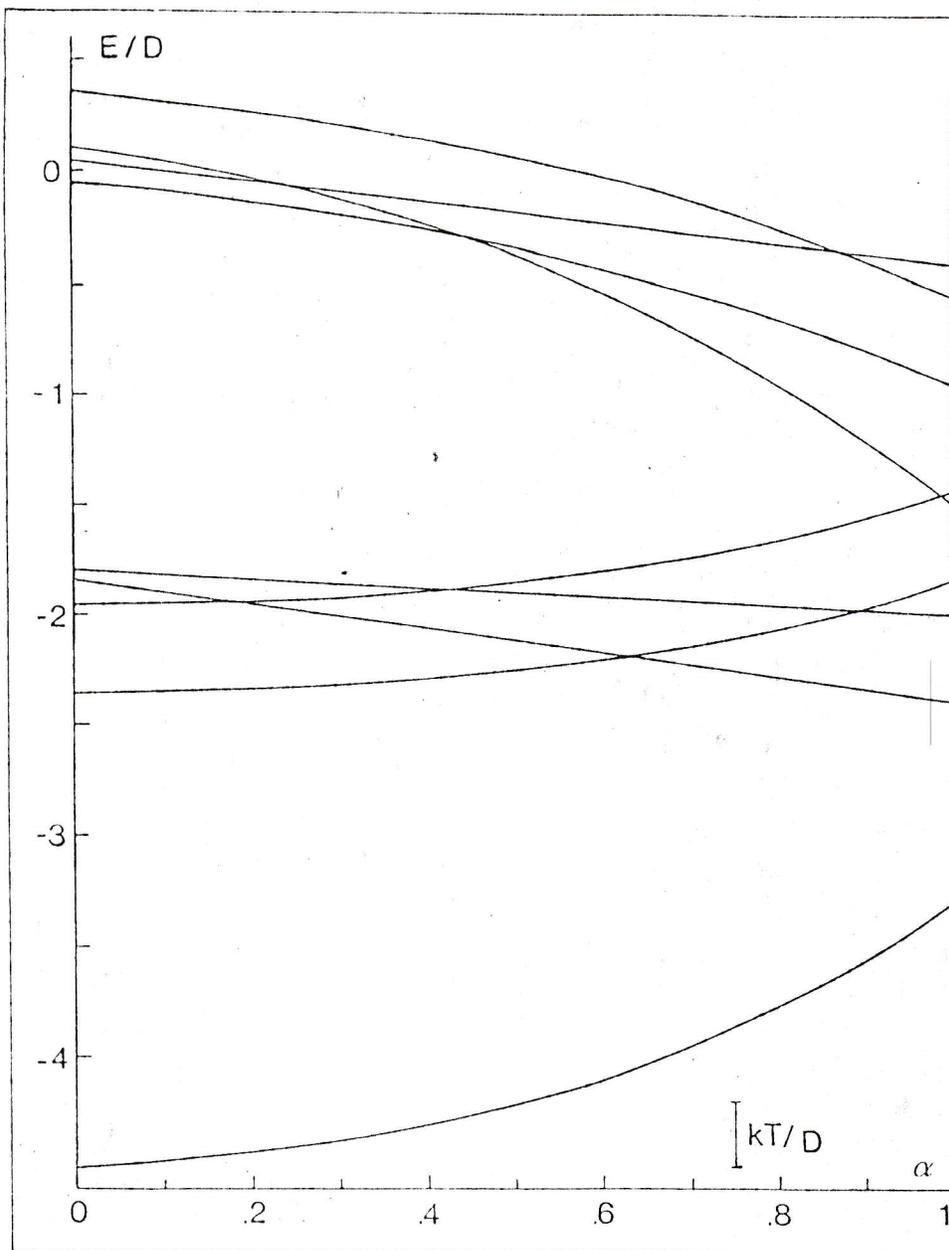


GRAFICO 16

Niveles de energía v/s α ; para $D = 10$, $kT = 3$, $z = 8$,
 $\beta = 1$.

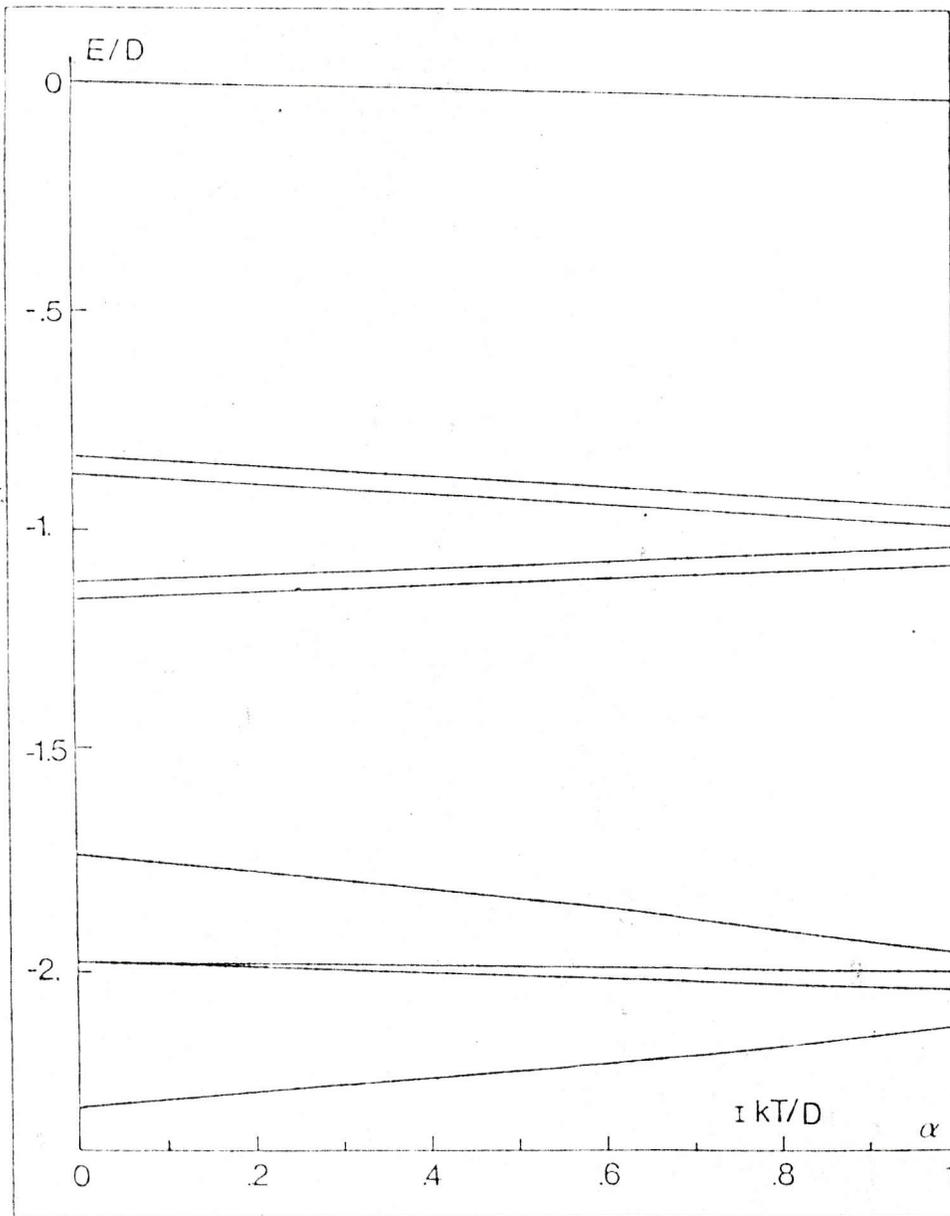


GRAFICO 17.

Niveles de energía v/s α ; para $D = 100$, $kT = 3$, $z = 8$,
 $\beta = 1$.

y $\alpha = 8$. Al comparar estos tres gráficos se advierte que el "cruzamiento" entre los autovalores aumenta notoriamente al pasar de $D = 0$ a $D = 10$, sin embargo para $D = 100$ la dependencia de ellos (los autovalores) con α es casi una recta y no se produce ningún "cruce" entre unos y otros. Más interesante resulta el graficar los autovalores, como función de α , para $kT = 7$ (gráficos 18, 19 y 20) para los mismos tres valores de D ($D = 0, 10$ y 100). En ellos se nota que para $\alpha > \alpha_c$ (donde α_c es el valor de α para el cual el sistema deja de ser ferromagnético, el cual depende, evidentemente, de los valores de D y kT elegidos) los autovalores de energía son degenerados. Esta degeneración proviene de que el campo efectivo se hace nulo y por lo tanto el término de interacción entre los momentos magnéticos y el campo efectivo se anula por lo que el Hamiltoniano no depende de S_x , aunque sí depende de S_x^2 cuando $D \neq 0$, esto contribuye a romper parte de la degeneración que se tiene cuando $D = 0$ (comparar gráfico 18 con gráficos 19 y 20).

Para facilitar y acortar los cálculos resulta útil calcular la probabilidad de ocupación de cada uno de los estados del sistema, esta es:

$$P_i = \frac{e^{-\mathcal{E}_i/kT}}{\sum_i e^{-\mathcal{E}_i/kT}}$$

siendo \mathcal{E}_i el autovalor de energía que corresponde al estado $|i\rangle$ del sistema. A modo de ejemplo se tiene que para $\alpha = 8$,

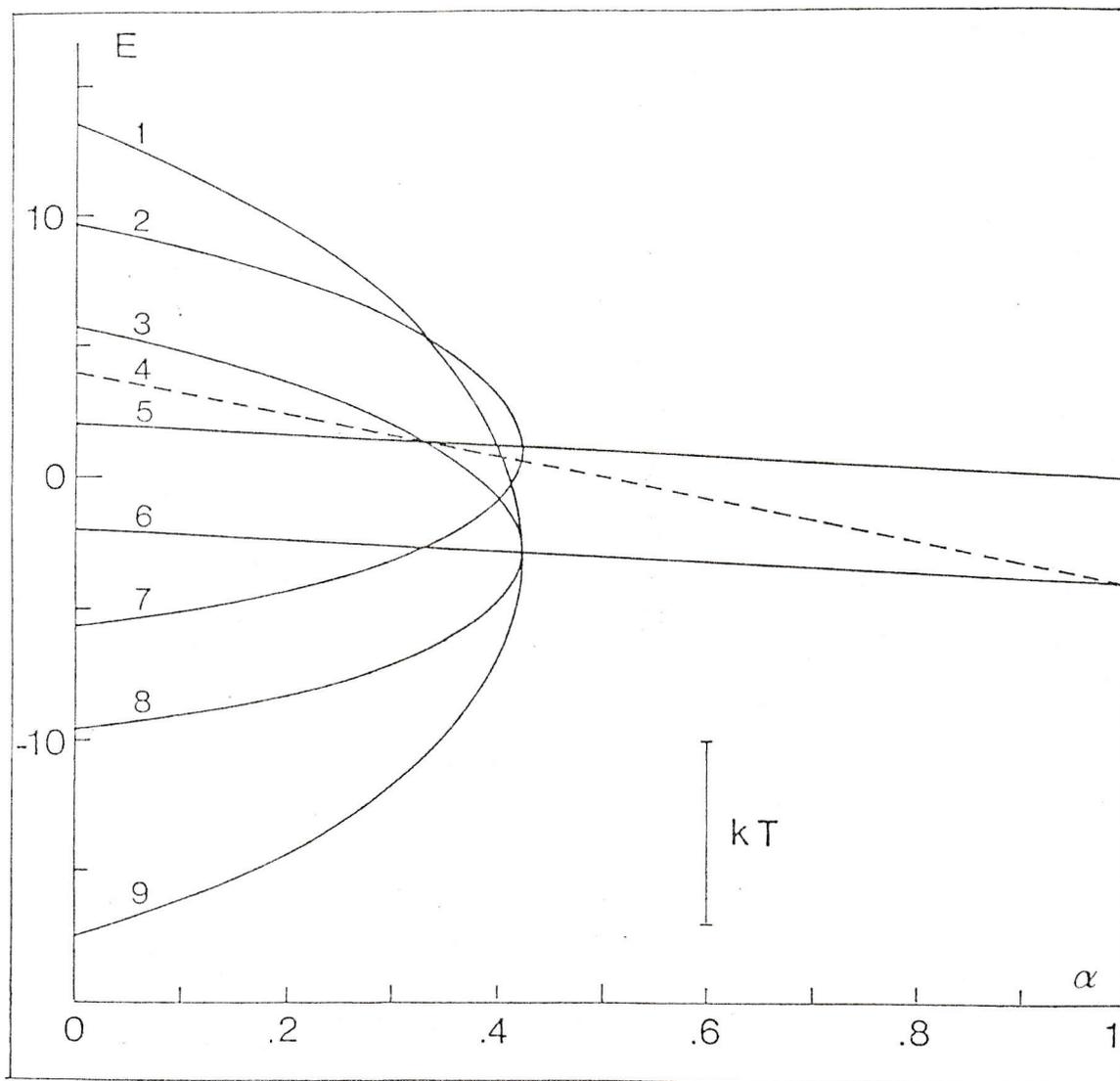


GRAFICO 18

Niveles de energía v/s α , unidades arbitrarias; para $D = 0$,
 para $kT = 7$, $z = 8$, $\beta = 1$.

Curva 1: $\langle 2-2/\mathcal{K}_2 | 2-2 \rangle$
 Curva 3: $\langle 2-1/\mathcal{K}_2 | 2-1 \rangle$
 Curva 5: $\langle 10/\mathcal{K}_2 | 10 \rangle$
 Curva 7: $\langle 11/\mathcal{K}_2 | 11 \rangle$
 Curva 9: $\langle 22/\mathcal{K}_2 | 22 \rangle$

Curva 2: $\langle 1-1/\mathcal{K}_2 | 1-1 \rangle$
 Curva 4: $\langle 00/\mathcal{K}_2 | 00 \rangle$
 Curva 6: $\langle 20/\mathcal{K}_2 | 20 \rangle$
 Curva 8: $\langle 21/\mathcal{K}_2 | 21 \rangle$

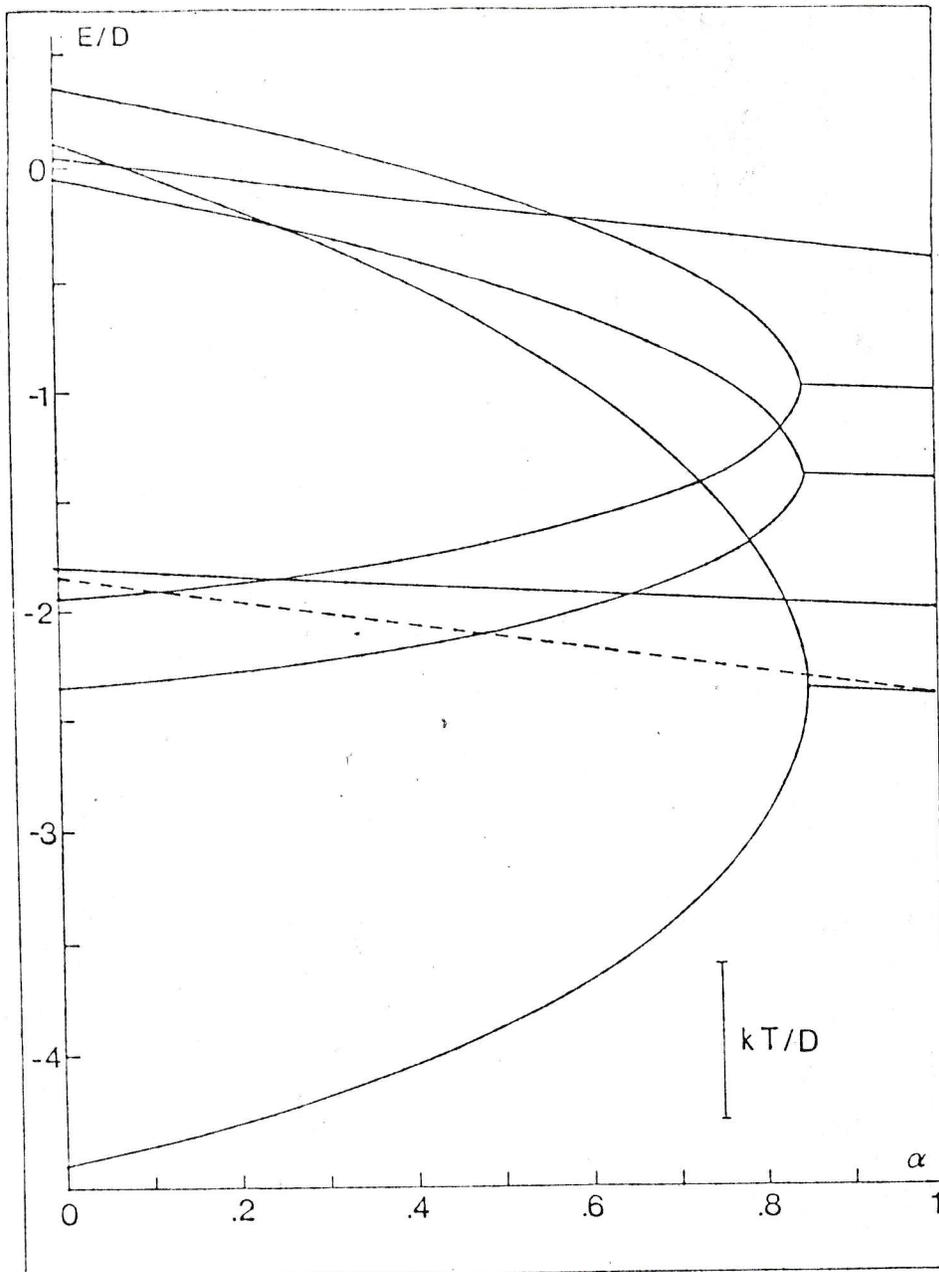


GRAFICO 19

Niveles de energía v/s α ; para $D = 10$, $kT = 7$, $z = 8$,
 $\phi = 1$.

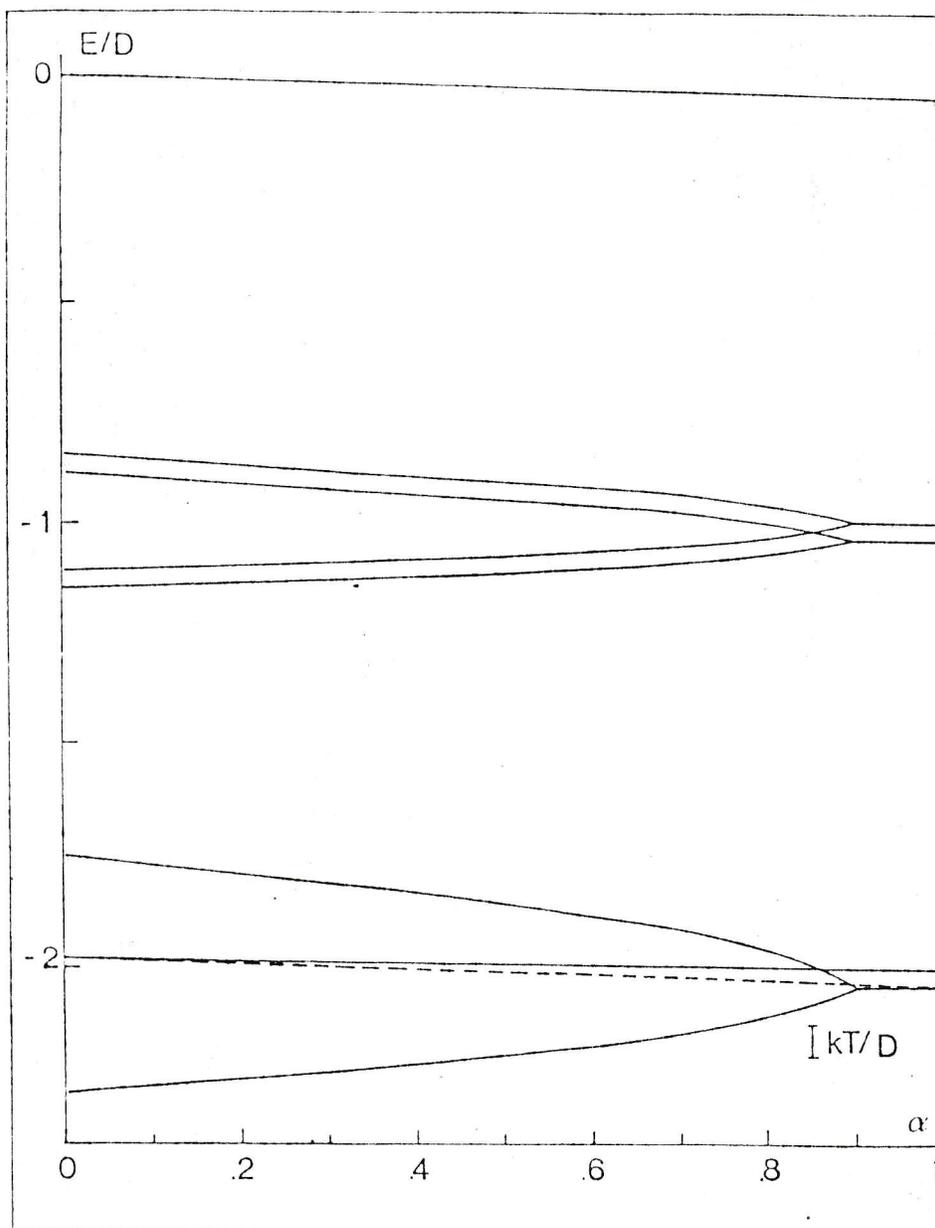


GRAFICO 20.

Niveles de energía $v/s \alpha$; para $D = 100$, $kT = 7$, $z = 8$,
 $f = 1$.

$kT = 3$ y $D = 0$ la probabilidad de ocupación de cada uno de los cuatro estados de más baja energía es

Estado	$\alpha = 0$.5	1
$ 22\rangle$.9437	.9358	.8697
$ 21\rangle$.0423	.0476	.0867
$ 11\rangle$.0112	.0125	.0229
$ 20\rangle$.0020	.0024	.0090
los otros 5 estados juntos =	.0008	.0017	.0090

para $D = 10$ ($kT = 3$ y $\alpha = 8$) los resultados son aún más espectaculares pues la probabilidad de ocupación P_i de cada uno de los dos estados de más baja energía es:

	$\alpha = 0$.5	1
$P_1 =$.9988	.9970	.9310
$P_2 =$.0007	.0015	.0454
los otros 7 estados = juntos	.0005	.0015	.0236

todo esto indica que para bajas temperaturas ($kT \leq 3$) se pueden considerar sólo los estados de más baja energía (cuatro en el caso $D = 0$ y uno en el caso $D = 10$). El poder trabajar con unos pocos niveles de energía facilita los cálculos en forma considerable y se podría, incluso, intentar calcular analíticamente las propiedades del sistema.

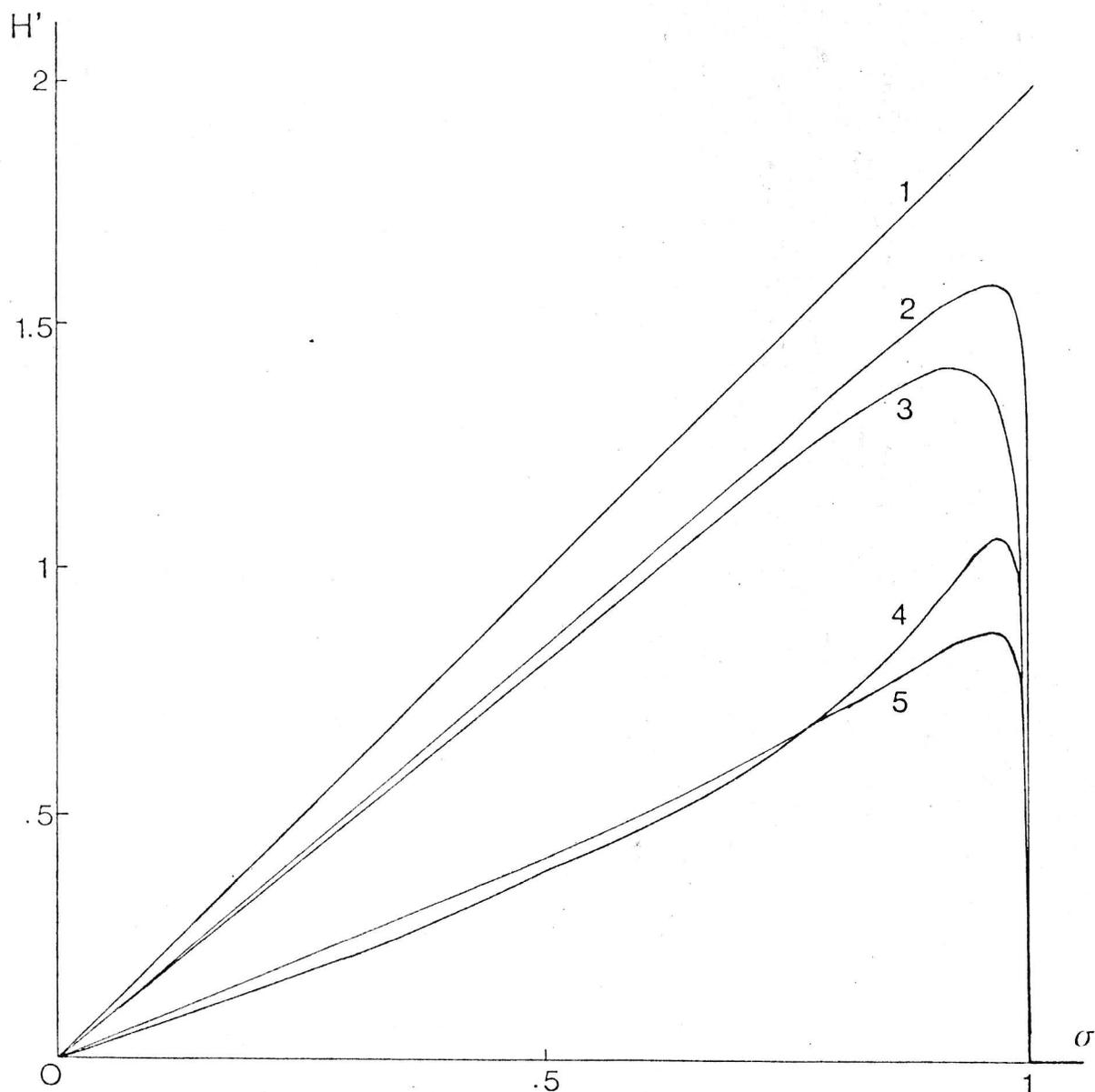


GRAFICO 21.

H' v/s magnetización reducida, unidades arbitrarias;
 Para $z = 8$, $\beta = 1$

Curva 1: campo molecular de Weiss, $\alpha = 0$, $D = 0$.

En aprox. de constante de acoplamiento:

Curva 2: $\alpha = 0$, $D = 4$;

Curva 3: $\alpha = 0$, $D = 0$;

Curva 4: $\alpha = 1$, $D = 0$;

Curva 5: $\alpha = 1$, $D = 4$.

VIII RESUMEN, DISCUSION Y CONCLUSIONES

Se estudió un sistema ferromagnético descrito por un Hamiltoniano de Heisenberg al que se le agregó interacción de intercambio bicuadrática y anisotropía uniaxial debida al campo cristalino. La interacción bicuadrática se consideró como una corrección a la usual interacción de Heisenberg y la anisotropía del campo cristalino se incluyó en el Hamiltoniano usando el método de los operadores equivalentes de Stevens.

Todas las propiedades termodinámicas del sistema pueden ser calculadas conociendo la función partición; para conocer la función participación (o equivalente los autovalores de energía del Hamiltoniano) existe una amplia variedad de métodos, unos bastantes simples como las aproximaciones de campo molecular y otros complejos y poderosos que utilizan funciones de Green, aunque ninguno de ellos es exacto, todos se basan en alguna aproximación. Un método relativamente sencillo y que proporciona resultados bastante buenos es la llamada aproximación de constante de acoplamiento, y es este, precisamente, el método que se usó para conocer los autovalores de energía y construir la función partición y con ello calcular algunas propiedades termodinámicas del sistema como, por ejemplo, la magnetización espontánea, energía interna, entropía,

energía libre de Helmholtz y función correlación de spin, todo para el caso particular de sistemas con spin uno, aunque el método puede ser usado para sistemas con spin arbitrario.

El principal objetivo era ver de qué forma se modificaban estas funciones termodinámicas cuando la interacción bicuadrática y la anisotropía eran variadas independientemente. Los resultados obtenidos muestran que existe una fuerte dependencia de las propiedades del sistema con la interacción bicuadrática y con la anisotropía, y además se observó que en algunos casos ambas compiten "aplacándose" mutuamente y en otros cooperan constructivamente.

A.- Caso $\alpha = 0$

Primero se discutirán los resultados obtenidos cuando $\alpha = 0$, en esta parte la discusión se hará principalmente sobre los resultados obtenidos mediante los tres métodos empleados, con ello se pretende mostrar que ACA es, efectivamente, un mejoramiento de los otros dos métodos.

Los gráficos 1, 2, 3, y 6 muestran que las temperaturas críticas obtenidas mediante ACA son siempre menores que las obtenidas por ACMW y ACMO. Cuando $D = 0$ los valores de kT_c / J pueden compararse con los de Rushbrooke y Wood /15/ quienes usando un método llamado: expansión a altas temperaturas (EAT) obtuvieron "lo que parece ser una muy buena

aproximación" /1/ para $t_c = k T_c / g$ para varias redes, y hacen notar que sus resultados pueden ser reproducidos con un error menor que 1% por la relación empírica:

$$t_c = \frac{5}{96} (z-1) [115(s+1) - 1]$$

la cual, para spin 1, se reduce a:

$$t_c = \frac{105}{96} (z-1)$$

En la siguiente tabla se comparan los valores de t_c para $z = 6, 8$ y 12 .

	$z = 6$	$z = 8$	$z = 12$
ACMW	8.0	10.66	16.0
ACA	5.92	8.70	14.0
EAT	5.47	7.66	12.03

El que las temperaturas críticas obtenidas mediante ACA estén más cercanas a las obtenidas por EAT que las de ACMW indicaría que, al menos para altas temperaturas ($T \sim T_c$), el tomar un campo efectivo que no es proporcional a la magnetización (contrariamente a lo que hacen las aproximaciones de campo molecular) es un avance en la dirección correcta.

Respecto a la influencia del parámetro de anisotropía sobre las temperaturas críticas, el gráfico 22 muestra $T_c(D)/T_c(0)$, para $z = 6$, en función de D para ACMW y

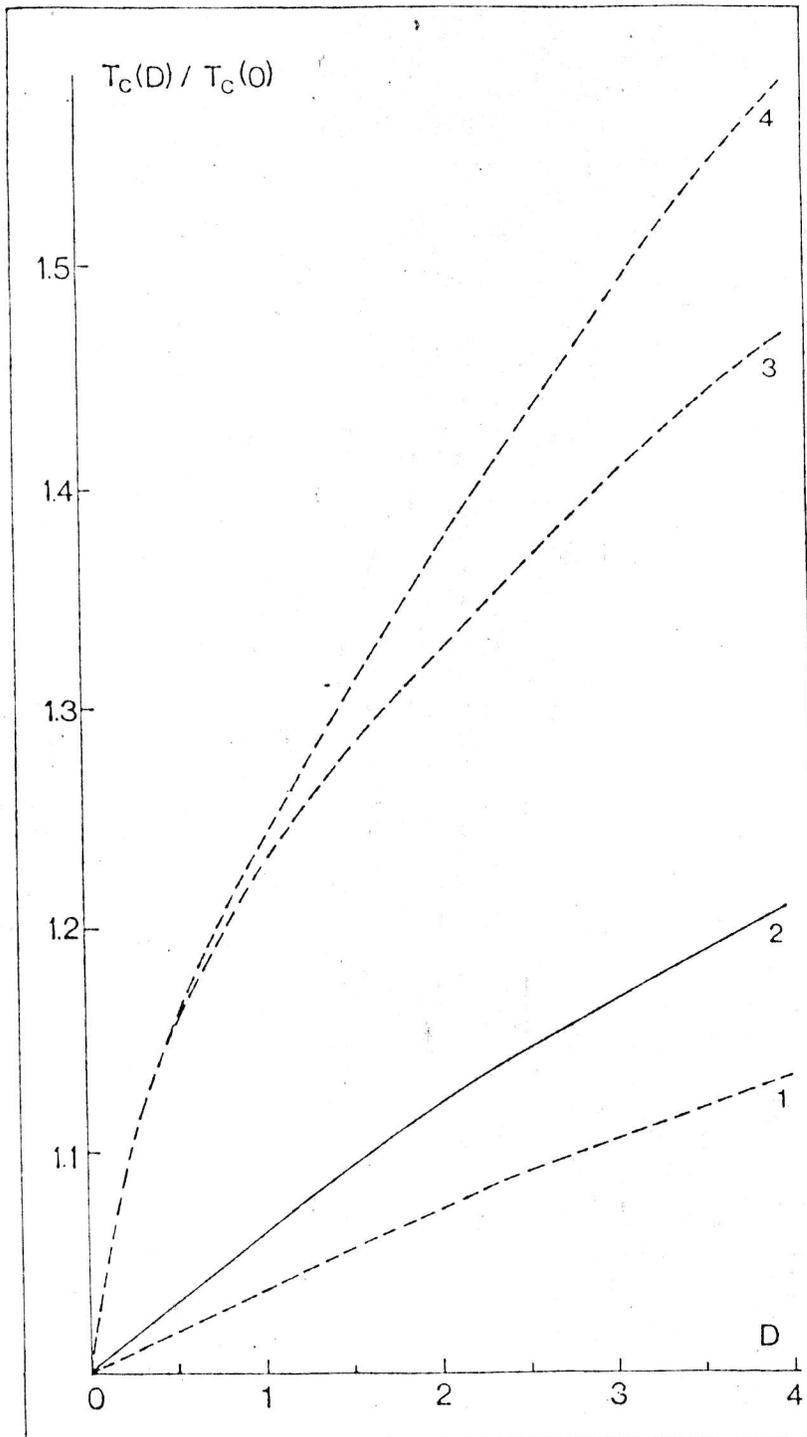


GRAFICO 22.

$T_c(D)/T_c(0)$ v/s D ; para $\alpha = 0$, $z = 6$, $f = 1$.
 Curva 1: campo molecular de Weiss,
 Curva 2: constante de acoplamiento,
 Curva 3: resultados de Devlin,
 Curva 4: resultados de Anderson y Callen

ACA comparadas con las obtenidas por Anderson y Callen /16/ y Devlin /17/ usando funciones de Green. Los resultados de ACA subestiman la importancia de D respecto a los de Devlin pero son, en ese sentido, mejores que los de ACMW; los resultados de Anderson y Callen tienen el problema de que $T_c \rightarrow \infty$ cuando $D \rightarrow \infty$.

Lamentablemente puesto que D no es un parámetro que puede variarse experimentalmente (como lo es la temperatura), sino que es intrínseco a cada material, no resulta claro decir, cuantitativamente, cuan "mejor" es una curva que otra. Sólo puede decirse, en términos cualitativos, que la importancia de D en las temperaturas críticas es mayor en ACA que en ACMW.

A continuación se discutirán las modificaciones que sufrieron los resultados anteriores al ser incluida la interacción de intercambio bicuadrática.

B. $0 \leq \alpha \leq 1$

A pesar de estar bien establecidas las bases teóricas para la inclusión de la interacción de intercambio bicuadrático en sistemas magnéticos /18/ y /19/ un cierto interés por su estudio surgió sólo después que Harris y Owen /20/ y Robdell y otros /21/ mostraron que existiría una apreciable contribución de la interacción bicuadrática a las propiedades

En el gráfico 22 se mostró $T_c(D)/T_c(0)$ como función de D para $\alpha = 0$ ($z = 6$) y se dijo que ACA, a pesar de dar mejores resultados que ACMW, subestimaba la influencia de la anisotropía de campo cristalino. El gráfico 23 muestra $T_c(D)/T_c(0)$ (para $z = 8$) cuando se incluye la interacción de intercambio bicuadrático y se compara con los de Devlin y los de Anderson y Callen (los cuales consideran $\alpha = 0$). Para $\alpha = .5$ la dependencia de $T_c(D)/T_c(0)$ con D es mayor que para $\alpha = 0$; para $\alpha = 1$ la dependencia con D es notoriamente más fuerte, incluso es mayor que la obtenida por los otros autores.

El parámetro α , al igual que D , también es intrínseco a cada material por lo que tampoco puede ser variado experimentalmente para "verificar" los resultados obtenidos.

Evidentemente al método usado en este trabajo (la aproximación de constante de acoplamiento) se le pueden hacer varias críticas y tal vez la mayor de todas sea la validez de la aproximación empleada en (6-2) para escribir el Hamiltoniano para el "racimo 1-spin".

$$\mathcal{H}_1 = -g\beta H S_z - D S_z^2$$

pués la interacción bicuadrática es considerada sólo implícitamente en el campo efectivo, quizás un método similar al usado por Lines y Jones /23/ para sistemas antiferromagnéticos, en

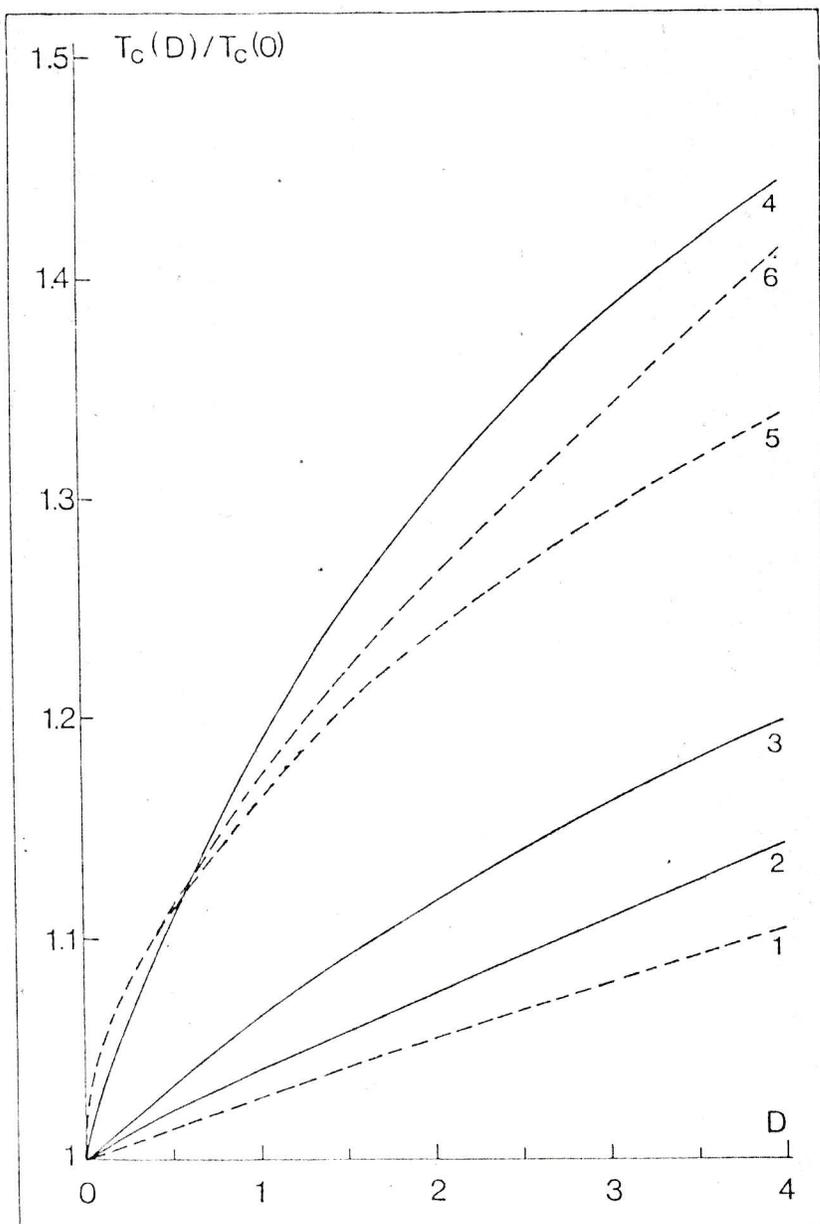


GRAFICO 23

$T_c(D)/T_c(0)$ v/s D ; para $z = 8$, $\beta = 1$.

Curva 1: campo molecular de Weiss. En aprox. de constante de acoplamiento

Curva 2: $\alpha = 0$,

Curva 3: $\alpha = 0.5$,

Curva 4: $\alpha = 1$

Curva 5: resultados de Devlin

Curva 6: resultados de Anderson y Callen

el que la interacción bicuadrática es considerada de manera explícita puede ser un importante mejoramiento del método.

Por último una extensión inmediata de este trabajo sería el estudio de materiales amorfos descritos por el modelo de Harris, Plischke y Zuckermann /24/ y añadiéndoles la interacción de intercambio bicuadrática.

FILE: ACMW FORTRAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

```
100 WRITE(9,57) HI
57 FORMAT(15X,'HI=',F7.+,/)
105 AKI=AKI-0.2
20 IF(AKI) 25,25,15
25 STOP
EN)
FUNCTION FUN(AKI,SS)
C044DN Z,AJ,DE,HI,XXX
ARG=(DE+(2.0*Z#AJ#SS))/AKI
ARX=(DE-(2.0*Z#AJ#SS))/AKI
XXX=(EXP(ARG)-EXP(ARX))/(EXP(ARX)+EXP(ARG)+1.0)
HI=2.0#AJ#SS
FUN=SS-XXX
RETURN
EN)
```

ACM00460
ACM00470
ACM00480
ACM00490
ACM00500
ACM00510
ACM00520
ACM00530
ACM00540
ACM00550
ACM00560
ACM00570
ACM00580
ACM00590
ACM00600
ACM00610

FILE: ACMO FORTRAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

```

C      ACMO I... ( APROXIMACION CAMPO MOLECULAR DE OGUCHI )
C      SPIN=1 ; HI/SBE CAMPU EFFECT. PJK VECINO ; SG= MAG. REC.
C      AKT=KT ; AJ=J(INTENC.); DE=D(ANISOTROPIA); Z=NUM. DE VEC.

111   COMMON AJ,DE,Z,SZ(9,9),HI,XXX
      READ(1,111)AJ,JE,Z
      FORMAT(2X,F3.1,2X,F5.2,2X,F3.1)
      ER=0.000001
      AKT=10.

C      MATRIZ SZ
      DO 400 J=1,9
      DO 400 K=1,9
      SZ(J,K)=0.
      SZ(1,1)=2.
      SZ(2,2)=1.
      SZ(4,4)=-1.
      SZ(5,5)=-2.
      SZ(6,6)=1.
      SZ(8,8)=-1.
      WRITE(3,6)AJ,DE
      FORMAT(5X,'J=',F3.1,5X,'D=',F5.2,/)
      SG1=0.01
      SG1=0.5

20    N=J
      K=EEJN(AKI,SG1)
      AR=ABS(R)
      IF(AR.LT.EN) GO TO 30
      P=FJN(AKI,SG1)
      AP=ABS(P)
      IF(AP.LT.EN) GO TO 35
      IF(P#R)70,71,71
      SG2=SG1/1.3
      SG1=SG1+0.2
      N=N+1
      IF(N.LT.15) GO TO 20
      GO TO 80
      SG2=((AR/AP)*SG1+SG1)/(1.+(AR/AP))
      F3,Z=FJN(AKI,SG2)
      IF(F32)60,50,40
      SGJ=SG2
      GO TO 20
      SG1=SG2
      GO TO 20
      WRITE(3,11)AKI,SG2

```

ACM00010
ACM00020
ACM00030
ACM00040
ACM00050
ACM00060
ACM00070
ACM00080
ACM00090
ACM00100
ACM00110
ACM00120
ACM00130
ACM00140
ACM00150
ACM00160
ACM00170
ACM00180
ACM00190
ACM00200
ACM00210
ACM00220
ACM00230
ACM00240
ACM00250
ACM00260
ACM00270
ACM00280
ACM00290
ACM00300
ACM00310
ACM00320
ACM00330
ACM00340
ACM00350
ACM00360
ACM00370
ACM00380
ACM00390
ACM00400
ACM00410
ACM00420
ACM00430
ACM00440
ACM00450

FILE: ACMO FORTRAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

```

11  FORMAT(2X,'KI=',F5.2,5X,'SG=',F6.4)
12  GO TO 100
80  WRITE(3,21)AKI
21  FORMAT(2X,'KI=',F5.2,5X,'NO ENCUENTRA MAG. RED.',/)
22  GO TO 105
30  WRITE(3,31)AKI,SG
31  FORMAT(2X,'KI=',F5.2,5X,'SG=',F6.4)
32  GO TO 100
33  WRITE(3,36)AKI,SG
34  FORMAT(2X,'KI=',F5.2,5X,'SG=',F6.4)
35  GO TO 100
100  WRITE(3,57) HI,XXX
57  FORMAT(15X,'HI=',F9.4,5X,'XXX=',F6.4,/)
105  AKI=AKI-0.2
110  IF(AKI) 25,25,15
25  STOP
EN)
C
C
C
FUNCTION FORAKT,SG)
COMMON AJ,DE,AL,Z,S4(9,9),HI,XXX
DIMENSION H(45),K(31),J(9),AV(9,9)
H(1) = MATRIZ HAMILTONIANA
DO 14 I=1,45
14  H(I)=0.0
H(1)=-2.0*AJ-1.0*(Z-1.0)*AJ*SG-2.0*DE
H(3)=-2.0*AJ-(Z-1.0)*2.0*AJ*SG-DE
H(5)=-2.0*AJ-0.000000*DE
H(13)=-2.0*AJ+(Z-1.0)*2.0*AJ*SG-DE
H(15)=-2.0*AJ+4.0*(Z-1.0)*AJ*SG-2.0*DE
H(21)=-2.0*AJ-(Z-1.0)*2.0*AJ*SG-DE
H(23)=-2.0*AJ-2.0*DE
H(35)=-2.0*AJ+(Z-1.0)*2.0*AJ*SG-DE
H(45)=-4.0*AJ-1.000000*DE
H(39)=-0.000000*DE*1.0+1+214
C
C
SUBROUTINA QUE DIAGNALIZA LA MATRIZ HAMILTONIANA
CALL EIGEN(H,R,9,0)
L=0
DO 99 M=1,9
99  L=L+M
DO 202 K=1,9
202  DO 501 I=1,9
501  AV(I,K)=K(9.0*(N-1)+1)

```

ACM00460
ACM00470
ACM00480
ACM00490
ACM00500
ACM00510
ACM00520
ACM00530
ACM00540
ACM00550
ACM00560
ACM00570
ACM00580
ACM00590
ACM00600
ACM00610
ACM00620
ACM00630
ACM00640
ACM00650
ACM00660
ACM00670
ACM00680
ACM00690
ACM00700
ACM00710
ACM00720
ACM00730
ACM00740
ACM00750
ACM00760
ACM00770
ACM00780
ACM00790
ACM00800
ACM00810
ACM00820
ACM00830
ACM00840
ACM00850
ACM00860
ACM00870
ACM00880
ACM00890
ACM00900

FILE: ACMO FORTRAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

```
502 CONTINUE
   TRAC=0.0
   PART=0.0
   DO 701 K=1,9
   UP=D(K)/AKI
   AD=EXP(-UP)
   DO 702 J=1,9
   DO 702 I=1,9
   TRAC=TRAC+AV(I,K)*SZ(I,J)*AV(J,K)*AD
701 PART=PART/PART
   UGU=TRAC/PART
   XXX=UGU/2.0
   HI=2.0*AJ*SG
   FJN=SG-XXX
   RETURN
   END
```

ACM00910
ACM00920
ACM00930
ACM00940
ACM00950
ACM00960
ACM00970
ACM00980
ACM00990
ACM01000
ACM01010
ACM01020
ACM01030
ACM01040
ACM01050
ACM01060

FILE: ACA FURKAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

```
C ACA ( APROXIMACION CONSTANTE DE ACOPLAMIENTO )
C PARA SPIN=1: HI/UB = CAMPO EFEC. POR VECINO: Z=NUM. DE VEC.
C AKT= KI: AJ=J(INTERCAMB.); DE=D(ANISOTROP.); A=ALFA(INT.BICUAD.)
C UINT= ENERG. INTERN.; SSK=ENTROPIA; FH= FUNC. DE HELMHOLTZ
C
C COMMON AJ,DE,AL,Z,RM15,RM25,PART,D(7),SZ(7,9)
C
C MATRIZ SZ
C DO 400 J=1,9
C DO 400 K=1,9
C SZ(J,K)=0.
C SZ(1,1)=2.
C SZ(2,2)=1.
C SZ(4,4)=-1.
C SZ(5,5)=-2.
C SZ(6,6)=1.
C SZ(8,8)=-1.
C READ(1,111)AJ,AL,DE,Z
C FURMAT(2X,F3.1,2X,F3.1,F5.2,2X,F3.1)
C WRITE(3,6)AJ,DE,AL
C FORMAT(/,5X,7J=1,F5.2,5X,1D=1,F5.2,5X,'A=',F5.2,/)
C
C ERTO=0.000001
C AKT=0.1
C HIJ=0.05
C HIU=0.1
C
C N=0
C K=FJ(AKT,HIG)
C AR=ABS(R)
C IF(AR.LT.EK) GO TO 50
C P=FJ(AKT,HU)
C AP=ABS(P)
C IF(AP.LT.EK) GO TO 35
C IF(P*R)70,71,71
C HIJ=HIU/1.5
C HIU=HIU+0.5
C N=N+1
C IF(N.LT.15) GO TO 20
C DO 70 TO 80
C HIJ=((AR/AP)*HIJ+HIU)/(1.+(AR/AP))
C FHJ=FU(AKT,HID)
C IF(FHID)60,50,+J
C
C HIJ=HID
C GO TO 20
C HIJ=HID
C GO TO 20
```

ACA00010
ACA00020
ACA00030
ACA00040
ACA00050
ACA00060
ACA00070
ACA00080
ACA00090
ACA00100
ACA00110
ACA00120
ACA00130
ACA00140
ACA00150
ACA00160
ACA00170
ACA00180
ACA00190
ACA00200
ACA00210
ACA00220
ACA00230
ACA00240
ACA00250
ACA00260
ACA00270
ACA00280
ACA00290
ACA00300
ACA00310
ACA00320
ACA00330
ACA00340
ACA00350
ACA00360
ACA00370
ACA00380
ACA00390
ACA00400
ACA00410
ACA00420
ACA00430
ACA00440
ACA00450

FILE: ACA FORTRAN A C M S - SERVICIOS DE INFORMACION

ACA00910
ACA00920
ACA00930
ACA00940
ACA00950
ACA00960
ACA00970
ACA00980
ACA00990
ACA01000
ACA01010
ACA01020
ACA01030
ACA01040
ACA01050
ACA01060
ACA01070
ACA01080
ACA01090
ACA01100
ACA01110
ACA01120
ACA01130
ACA01140
ACA01150
ACA01160
ACA01170
ACA01180
ACA01190
ACA01200
ACA01210
ACA01220
ACA01230

```
H(10)=-2.*AJ-2.*AJ*AL+(Z-1.)#HI-DE  
H(15)=-2.*AJ-2.*AJ*AL+2.*(Z-1.)#HI-2.*#DE  
H(21)=-2.*AJ-2.*AJ*AL-(Z-1.)#HI-DE  
H(28)=-2.*AJ-2.*AJ*AL-2.*#DE  
H(30)=-2.*AJ-2.*AJ*AL+(Z-1.)#HI-DE  
H(+5)=-4.*AJ-0.*AJ*AL-1.333333*DE  
H(39)=-0.000000*DE*1.414214
```

C SUB-RUTINA QUE DIALIZA LA MATRIZ HAMILTONIANA
CALL EIGEN(M,K,Y,C)

```
LEO  
DO 99 M=1,Y  
LEL+M  
J(4)=H(L)  
DO 502 K=1,Y  
DO 501 I=1,Y  
501 AV(I,K)=K*(K-1)+1  
502 CONTINUE  
TRAC=0.0  
PART=0.0  
DO 701 K=1,Y  
JP=J(K)/ANI  
AD=EXP(-UP)  
DO 702 J=1,Y  
J0=J  
JTRAC=JTRAC+AV(I,K)*JL(I,J)*AV(J,K)*AD  
PART=PART+AV  
5Z25=JTRAC/PART  
KM25=5Z25/Z.0  
702  
701  
FUERAS-FM25  
NEJEN  
END
```

R E F E R E N C I A S

1. J.S. Smart, "Effective field theories of Magnetism" (Saunders, Philadelphie, 1966)
2. G. Rado y H. Suhl, "Magnetism". Vol 1 (Academic, N.Y. 1963)
3. C. Kittel, "Introducción a la física del estado sólido" (Ed. Reverté, 2a. Edición, 1965)
4. B. Bleaney y K.W.H. Stevens, Rep. Prog. Phys. 16, 108 (1953)
5. A.R. Edmonds, "Angular Momentum in Quantum Mechanics" (Princeton Univ. Press; Princeton 1957)
6. K.W.H. Stevens, Proc. Phys. Soc (London) A 65, 209 (1952)
7. M.T. Hutchings, Solid State Phys. 16, 227 (1964)
8. W. Low, Sol. Stat. Phys. Supplement 3 (1960)
9. P.W. Kasteleijn y J. van Kranendonk, Physica 22, 317 (1952)
10. T. Oguchi, Prog. Theor. Phys. (Kyoto) 13, 148 (1955)
11. B. Strieb, H. Callen y G. Horwitz, Phys. Rev. 130, 1798 (1963)
12. H. Callen y E. Callen, Phys. Rev. 136, A 1675 (1964)
13. H.A. Brown, Am. J. Phys. 45, 707 (1977)

14. P.G. de Gennes y J. Friedel, J. Phys. Chem. Sol. 4, 71
(1958)
15. G.S. Rushbrooke y P.J. Wood, Mol. Phys. 1, 257 (1958)
16. F.B. Anderson y H.B. Callen, Phys, Rev. 136, A 1068 (1964)
17. J. Devlin, Phys. Rev. B 4, 136 (1971)
18. E. Schrödinger, Proc.Roy Irish Acad. A 48, 39 (1941)
19. G.A.T. Allan y D.D. Betts, Proc. Phys. Soc. 91, 341 (1967)
20. E.A. Harris y J. Owen, Phys, Rev. Lett. 11, 9 (1963)
21. D.S. Robdell, I.S. Jacobs, J. Owen y E.A. Harris, Phys.
Rev. Lett. 11, 10 (1963)
22. M.Tiwari y R.N. Srivastava, Il Nuovo Cimento 58B, 323
(1980)
23. M.E. Lines y E.D. Jones, Phys. Rev. 141, 525 (1966)
24. R. Harris, M. Plischke y M.J. Zuckermann, Phys, Rev. Lett.
31, 160 (1973)