

UCH-FC  
M86-F  
P892

UNIVERSIDAD DE CHILE  
FACULTAD DE CIENCIAS  
DEPARTAMENTO DE FISICA

PROPIEDADES MAGNETICAS DEL MODELO ANISOTROPIA  
MAGNETICA ALEATORIA CON ACOPLAMIENTOS DE IN  
TERCAMBIOS MIXTOS: FERROMAGNETICOS Y ANTIFERRO  
MAGNETICOS.



Tesis para optar al grado de  
Magister en Ciencias Físicas

JULIO POZO PEREZ

Octubre 1980

Patrocinante: Dr. Rodrigo Ferrer Parragué

FACULTAD DE CIENCIAS

UNIVERSIDAD DE CHILE

INFORME DE APROBACION  
TESIS DE MAGISTER

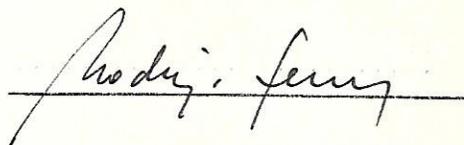
Se informa a la Comisión de Postgrado de la Facultad de Ciencias que  
la Tesis de Magister presentada por el candidato

Julio Pozo Pérez

ha sido aprobada por la Comisión Informante de Tesis como requisito  
para optar al grado de Magister en Ciencias Físicas.

Patrocinante de Tesis

Dr. Rodrigo Ferrer P.

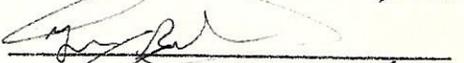


Comisión Informante de Tesis

Dr. Ricardo Ramírez L.



Sr. Jaime Roessler B.



Sr. Luís Moraga J.



## AGRADECIMIENTOS

Deseo agradecer al Dr. Rodrigo Ferrer P. por la valiosa ayuda prestada al desarrollo de este trabajo y al Dr. Martin J. Zuckermann por sus discusiones y análisis de algunos de los resultados teóricos previos a la publicación.

## RESUMEN

Se analiza el caso de acoplamientos mixtos entre primeros vecinos antiferromagnéticos y segundos vecinos ferromagnéticos usando el modelo propuesto por Harris et al. para la anisotropía magnética aleatoria.

Se presentan curvas de magnetización con campos críticos para el caso de transiciones metamagnéticas mostrándose además que estas llegan a ser discontinuas en presencia de un intercambio ferromagnético.

Se obtienen curvas de histeresis para diferentes parámetros utilizando la aproximación del campo molecular y comparándolas con trabajos realizados con anterioridad.

Los resultados se discuten a la luz de los trabajos experimentales.

## INDICE DE MATERIAS

CAPITULO 1: INTRODUCCION

CAPITULO 2: INTERACCIONES MIXTAS DENTRO DE LA APROXIMACION  
DEL CAMPO MOLECULAR (Caso Cristalino Simple).

2.1. Modelo de Heisenberg

2.2. Aproximación del Campo Molecular

2.3. Magnetización (ferromagnetismo, antiferromagnetismo)

2.4. Interacciones mixtas: Acoplamientos ferromagnéticos  
Antiferromagnéticos

CAPITULO 3: MODELO "ANISOTROPIA MAGNETICA ALEATORIA" (AMA)

3.1. Campo local y Anisotropía Magnética para sistemas  
amorfos

3.2. Modelo HPZ para AMA con interacciones mixtas

CAPITULO 4: CALCULOS CUANTICOS Y CLASICOS (J=1)

4.1. Estimación de Temperaturas Críticas

4.2. Energía libre y calor específico ( $H_{ext} = 0$ )

4.3. Cálculos clásicos

CAPITULO 5: RESULTADOS, DISCUSION Y CONCLUSIONES

5.1. Conclusiones finales

APENDICE A: Evaluación del potencial cristalino y Hamiltoniano  
del cristal.

APENDICE B: Programa Computacional

## 1. INTRODUCCION

El papel que desempeña la estructura en las propiedades magnéticas de ciertos amorfos, ha sido analizada por muchos autores utilizando el modelo de "Anisotropía Magnética Aleatoria" (AMA) propuesto por Harris, Plischke y Zuckermann (HPZ) [ 1]. Este modelo es particularmente adecuado para la descripción de aleaciones amorfas, en las cuales, las únicas componentes magnéticas son iones de tierras raras (TbAg, DyAg, HoAg), las que están acopladas a través de una interacción de intercambio indirecta vía los electrones de conducción 3d suponiéndolas fuertemente influenciadas por un campo electrostático local aleatorio, debido a las cargas de los iones vecinos. Las propiedades magnéticas de tales sistemas, fueron investigadas en presencia de interacciones de intercambio ya sean ferromagnéticas o antiferromagnéticas, utilizando la aproximación del campo molecular, en el límite clásico y cuántico. Estos resultados están contenidos en un trabajo realizado por Cochran et al. [ 2] y en otras publicaciones [ 3, 4, 5].

En aleaciones amorfas la interacción de intercambio indirecta entre iones magnéticos, es del tipo Ruderman - Kittel - Kasuya - Yoshida (RKKY) [ 6] la cual es muy sensible a la naturaleza del desorden atómico; debido a esto, pueden coexistir interacciones ferromagnéticas y antiferromagnéticas en el mismo sistema amorfo como lo sugiere Boucher [ 7] para aleaciones de tierras raras - Plata. La presencia de interac-

ciones de este tipo pueden por ejemplo ser utilizadas para explicar la magnetización de saturación de aleaciones amorfas  $Zr_{(40)} Cu_{(60-x)} M_{(x)}$ , (M denotando Gd y Tb;  $0 \leq x \leq 10$ ;) observadas por Gruzalski et al [8] y de amorfas TbAg observadas por Boucher [7], para las cuales la aproximación a la saturación es extremadamente lenta.

El interés en aleaciones metálicas amorfas es reciente, en 1960 Duwez y colaboradores obtuvieron una gran variedad de láminas metálicas no cristalinas. Estas aleaciones son estables a la temperatura ambiente y por sobre esta, aunque la naturaleza metaestable del estado amorfo, se manifiesta claramente por el hecho que al calentarlos, ellos se transforman irreversiblemente en mezclas de diferentes compuestos cristalinos. Estas aleaciones, originalmente estaban compuestas de elementos metálicos, un metal de transición o metal noble y un metaloide (P, C, O, B, Si). Posteriormente, aleaciones del mismo tipo metal-metaloide se fabricaron mediante, electrodeposición y deposición química, concluyéndose que las formas estructurales de éstas aleaciones resultan ser muy similares e independientes del método de preparación o de los constituyentes en particular, esto permitió a Bernal y Finney [2] formular un modelo simple de "Esferas duras distribuídas al azar" (EDDAA), estructura propuesta para metales líquidos, a través del cual se llegó a establecer que una aleación amorfa es básicamente un "metal líquido congelado"

La estructura de aleaciones amorfas del tipo tierras raras-metal transición, puede ser representada por el modelo (EDDAA). Exis

te una gran cantidad de compuestos cristalinos en concentraciones idénticas, tales como aleaciones cúbicas tipo "Laves" ( $TbFe_2$ ) los que permiten establecer una comparación directa entre las propiedades de los compuestos cristalinos y las aleaciones amorfas.

En este trabajo de tesis, se investigan algunas propiedades de sistemas amorfos, que pueden ser descritos por el modelo de "anisotropía magnética aleatoria" (AMA) considerando la aproximación del campo molecular para representar las interacciones mixtas correspondientes a acoplamientos antiferromagnéticos y ferromagnéticos. Como es conveniente para algunas magnitudes de interés, establecer una comparación directa entre sistemas amorfos y cristalinos, en el capítulo 2 se presenta el lenguaje básico a utilizar y algunos modelos para el caso cristalino simple. En el capítulo 3 aparece una descripción detallada del modelo (AMA) y su aplicación para el caso de sistemas amorfos con interacciones mixtas, finalmente, los resultados y conclusiones se presentan en los capítulos 4 y 5 respectivamente.

## 2. INTERACCIONES MIXTAS DENTRO DE LA APROXIMACION DEL CAMPO MOLECULAR (Caso Cristalino Simple).

### 2.1. Modelo de Heisenberg

En este modelo se supone que los átomos que contiene un cristal con momentos magnéticos  $\vec{\mu}$ , están asociados con sus momentos angulares de spin  $\vec{J}$  a través de

$$\vec{\mu} = g\mu_B \vec{J} \quad (2.1)$$

donde:  $g$  es el factor de Landé y  $\mu_B$  es el magnetón de Bohr.

Se supone además que los átomos magnéticos interactúan de a pares y esta interacción puede representarse por un Hamiltoniano de la forma

$$\mathcal{H}_{se} = -2 \sum_{i < j} J_{ij} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_j \quad (2.2)$$

Donde el operador  $\mathcal{H}_{se}$  se conoce con el nombre de Hamiltoniano de Heisenberg y da cuenta de la interacción spin-spin, originada entre iones magnéticos.

Se considera, además que estos átomos magnéticos interactúan con un campo externo  $\vec{H}_{ext}$  originando una interacción tipo Zeeman. Con esto el Hamiltoniano para el cristal completo está dado por

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_Z \quad (2.3)$$

donde  $\mathcal{H}_Z$  es el término de la energía de Zeeman. Si se supone un campo magnético externo aplicado a lo largo del eje Z. Luego (2.3) es de la forma

$$\mathcal{H} = -2 \sum_{i,j} J_{ij} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_j - g\mu_B H_{ext} \sum_i J_{iZ} \quad (2.4)$$

Si nos limitamos a tener en cuenta solamente interacciones entre vecinos más próximos, la expresión anterior se puede escribir

$$\mathcal{H} = -2 J_1 \sum_{v.p} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_j - g\mu_B H_{ext} \sum_i J_{iZ} \quad (2.5)$$

donde  $J_1$  es la interacción de intercambio entre vecinos más próximos y la primera suma es sobre todos los pares de estos vecinos.

Una forma simple de conocer las propiedades termodinámicas del sistema, es expresar (2.5) con la aproximación del campo molecular.

## 2.2. APROXIMACION DEL CAMPO MOLECULAR (ACM)

La aproximación del campo efectivo consiste en considerar solamente un átomo magnético y reemplazar sus interacciones con los demás átomos del cristal por un campo efectivo, además se supone que este campo efectivo es proporcional al promedio del momento magnético neto del cristal, a este campo, Weiss le llamó campo "molecular"

$$\vec{H}_e = \mu \vec{M} \quad (2.6)$$

donde  $\vec{M}$  es el momento magnético de la muestra y  $\mu$  el coeficiente del campo molecular de Weiss.

Consideremos sólo el primer término de (2.5), para un átomo

$$\mathcal{H} = -2 \mathcal{J} \vec{J}_i \cdot \sum_{j=1}^{\mathcal{D}} \vec{J}_j \quad (2.7)$$

donde la suma, es sobre los  $\mathcal{D}$  vecinos más próximos al  $i$ ésimo átomo. Además, se ha omitido el subíndice de  $\mathcal{J}$  por tratarse del mismo tipo de interacción con cada vecino, en este caso  $\mathcal{J}$  es una constante de acoplamiento. Al reemplazar la interacción en (2.7) por un campo efectivo se tiene

$$\mathcal{H} = -g\mu_B H_e \cdot \vec{J}_i \quad (2.8)$$

Comparando (2.7) con (2.8) resulta

$$\vec{H}_e = \frac{2\mathcal{J}}{g\mu_B} \sum_{i=1}^N \vec{J}_i \quad (2.9)$$

En esta aproximación cada  $\vec{J}_j$  puede ser reemplazada por su valor promedio  $\langle \vec{J}_j \rangle$ . Como todos los átomos magnéticos son equivalentes  $\langle \vec{J}_j \rangle$  está relacionado con el momento magnético total del cristal a través de

$$\vec{M} = N g \mu_B \langle \vec{J}_j \rangle \quad (2.10)$$

con esto

$$\vec{H}_e = (2\mathcal{J}/g\mu_B) \langle \vec{J}_j \rangle \quad (2.11)$$

Si se considera  $H_{\text{ext}}$  a lo largo del eje Z, el Hamiltoniano (2.5) se puede escribir dentro de la ACM como

$$\mathcal{H}^{\text{ACM}} = -g\mu_B H J_z \quad (2.12)$$

donde  $H = H_e + H_{\text{ext}}$

H es el campo total actuando sobre el i-ésimo átomo.

Los autovalores de (2.12) están dados por

$$E = -g\mu_B m H ; m = J, J-1, \dots, -J \quad (2.14)$$

### 2.3. MAGNETIZACION (Ferromagnetismo, Antiferromagnetismo)

La magnetización de un sistema se puede calcular a partir de la relación termodinámica

$$M = - \partial F / \partial H \quad (2.15)$$

donde  $F$  es la energía libre de Helmholtz, que está relacionada con la función-partición  $Z$  a través de

$$F = - K_B T \ln Z \quad (2.16)$$

donde  $K_B$  es la constante de Boltzmann y  $T$  la temperatura absoluta.

La función-partición está definida por

$$Z = \sum_m e^{-E_m / K_B T} \quad (2.17)$$

En este caso, las  $E_m$  son los autovalores dados por (2.14), luego

$$Z_J = \sum_{m=-J}^J e^{-g\mu_B m H / K_B T} \quad (2.18)$$

si se reemplaza (2.18) en (2.16) y ésta en (2.15) se tiene

$$M = N g \mu_B J B_J(x) \quad (2.19)$$

donde  $B_J(x)$  es la función de Brillouin definida por

$$B_J(x) = \frac{2J+1}{2J} \coth\left(\frac{2J+1}{2J} x\right) - \frac{1}{2J} \coth\left(\frac{1}{2J} x\right) \quad (2.20)$$

con

$$X = \left( g \mu_B J / k_B T \right) H \quad (2.21)$$

### 2.2.1. FERROMAGNETISMO ( $J > 0$ )

En un material ferromagnético, la interacción entre los átomos magnéticos, favorece el alineamiento paralelo de los momentos magnéticos atómicos. A la temperatura del cero absoluto, el alineamiento es completo y la magnetización espontánea ( $H_{\text{ext}} = 0$ ) tiene su máximo valor posible. Cuando la temperatura se incrementa, los efectos de agitación térmica, favorecen la orientación al azar de estos momentos y la magnetización espontánea decrece con la temperatura, gradualmente al comienzo y luego más rápidamente hasta llegar a un valor cero a una temperatura característica conocida como temperatura de Curie,  $T_C$ .

Si en (2.7)  $J$  es positivo el estado de más baja energía tiene vectores momentos magnéticos paralelos que corresponden al estado ferromagnético. Si  $J < 0$  estos momentos son antiparalelos, lo que corresponde al estado antiferromagnético.

### 2.3.2 ANTIFERROMAGNETISMO ( $J < 0$ )

Modelo de las "subredes": El ordenamiento antiferromagnético más simple, es uno en el cual la red de átomos magnéticos puede ser subdividida en dos "subredes" "interpuestas" y equivalentes, A y B, tales que los átomos de la subred A tienen solamente átomos de la subred B como ve ci nos pr ó x i m os y viceversa.

En el tratamiento del campo molecular, debemos considerar dos campos moleculares diferentes  $\vec{H}_{eA}$  y  $\vec{H}_{eB}$  actuando sobre los átomos de las subredes A y B respectivamente. Como los átomos A interactúan solamente con átomos B y viceversa se tiene de (2.11):

$$\begin{aligned} \text{a) } \vec{H}_{eA} &= -\frac{2|J|}{g\mu_B} \langle \vec{J}_B \rangle \\ \text{b) } \vec{H}_{eB} &= -\frac{2|J|}{g\mu_B} \langle \vec{J}_A \rangle \end{aligned} \quad (2.22)$$

Los coeficientes de (2.11) se han multiplicado por 1/2 para no contar dos veces las interacciones y el signo menos aparece debido al cambio de signo de  $J$ .

La condición para que las subdivisiones de un sólido cristalino en dos subredes se pueda llevar a cabo es que dos primeros vecinos a un átomo dado no sean entre sí primeros vecinos, de modo que tales subredes sean conjuntos disjuntos de átomos; lo anterior es posible en redes cúbica simple, cúbica centrada en el cuerpo, pero no en cúbica centrada en las caras. En el caso de amorfos tal división es algo ambigua por no existir una definición precisa de lo que es primero o segundo vecino; por esto que dicha subdivisión debe ser completada con un criterio adicional; en nuestro caso hemos usado el criterio de las 2 semiesferas

(ver Cap. 3. Sección 3.2).

#### 2.4. INTERACCION MIXTA: ACOPLAMIENTOS FERROMAGNETICOS-ANTIFERROMAGNETICOS

En este caso, los campos efectivos de esta combinación para los átomos magnéticos de las "subredes" A y B están dados por

$$\vec{H}_{eA} = \vec{H}_{eA}(\text{ferro}) + \vec{H}_{eB}(\text{anti})$$

$$\vec{H}_{eB} = \vec{H}_{eB}(\text{ferro}) + \vec{H}_{eA}(\text{anti})$$

luego de (2.11) y (2.22) a) y b), teniendo presente (2.13) se tiene

$$a) \quad H_A = H_{\text{ext}} + \frac{J_f J_f}{g\mu_B} \langle J_A \rangle - \frac{J_a J_a}{g\mu_B} \langle J_B \rangle \quad (2.23)$$

$$b) \quad H_B = H_{\text{ext}} + \frac{J_f J_f}{g\mu_B} \langle J_B \rangle - \frac{J_a J_a}{g\mu_B} \langle J_A \rangle$$

con esto (2.19) se puede escribir como

$$\langle J_{A,B} \rangle = J B_J \left( \frac{g\mu_B J}{k_B T} H_{A,B} \right) \quad (2.24)$$

debido a que  $M/g\mu_B = \langle J \rangle$

2.4.1. ESTIMACION DE TEMPERATURAS CRITICAS  $J = 1$ 

En (2.24) cuando el campo externo es nulo y para valores pequeños del argumento de la función de Brillouin se tiene

$$B_J \left( \frac{g\mu_B J}{k_B T} H_{A,B} \right) \approx \frac{J+1}{3J} \frac{g\mu_B J}{k_B T} H_{A,B} \quad (2.25)$$

A partir de (2.24) y (2.25) se puede escribir el siguiente sistema de ecuaciones ( $J=1$ ) para  $T$  cerca de la temperatura crítica

$$a) \quad \langle J_A \rangle = \frac{2}{3} \left( \frac{J_f J_f}{k_B T} \langle J_A \rangle - \frac{J_a J_a}{k_B T} \langle J_B \rangle \right) \quad (2.26)$$

$$b) \quad \langle J_B \rangle = \frac{2}{3} \left( \frac{J_f J_f}{k_B T} \langle J_B \rangle - \frac{J_a J_a}{k_B T} \langle J_A \rangle \right)$$

Para encontrar las temperaturas críticas  $T_{N,C}$  se utilizan las expresiones (2.26)a)yb), teniendo presente que al comenzar el orden,  $\langle J_A \rangle$  y  $\langle J_B \rangle$  ya no son ceros, esta condición requiere que el determinante formado por los coeficientes de  $\langle J_A \rangle$  y  $\langle J_B \rangle$  sea cero, de donde

$$T_{C,N} = \frac{2}{3k_B} [J_f J_f \mp J_a J_a] \quad (2.27)$$

donde los signos (-) y (+) del lado derecho se refieren a las temperaturas de Curie ( $T_C$ ) y a la de Neel ( $T_N$ ) respectivamente.



### 3. MODELO DE "ANISOTROPIA MAGNETICA ALEATORIA" (AMA)

Las características de las propiedades magnéticas en aleaciones amorfas duras es decir, aquellas que presentan grandes campos coercitivos a bajas temperaturas o una aproximación extremadamente lenta a la saturación en la fase ordenada, están relacionados con la existencia de campos electrostáticos fuertes, esto permitió a Harris, Plischke y Zuckermann proponer que la contribución más importante de estos campos proviene de una anisotropía magnética aleatoria (AMA) local, la cual afecta a los espines de los electrones  $f$  y representa al acoplamiento entre los iones y el medio.

#### 3.1. CAMPO LOCAL Y ANISOTROPIA MAGNETICA PARA SISTEMAS AMORFOS

Para obtener una estimación de la anisotropía magnética en materiales amorfos, Cochrane et al [\*] han calculado utilizando el modelo de la carga puntual, el potencial electrostático en un sitio de su "racimo", el cual se puede generar mecánicamente mezclando esferas de dos tamaños y en forma numérica a través de un programa computacional

[\*] R.W. Cochrane, R. Harris and M. Plischke, J. Non-C solid 15 (1974)

que genere el tipo de estructura de esferas duras ordenadas en forma compacta.

La energía de un electrón en una capa incompleta debido al campo de las cargas atómicas puntuales es:

$$W(r_k) = -e \sum_j \frac{q_j}{|\vec{R}_j - \vec{r}_k|} \quad (3.1)$$

donde  $\vec{r}_k$  y  $\vec{R}_j$  son, respectivamente, las posiciones del k-ésimo electrón y el j-ésimo ion relativo al átomo que contiene al electrón.

Al expandir (3.1) en armónicos esféricos y considerando la teoría de perturbaciones, la energía del electrón está dada por referencia [\*: página anterior]

$$E = -e \sum_j q_j \sum_{\ell m} \frac{(-1)^m Y_{\ell}^{-m}(\theta_j, \phi_j)}{R_j^{\ell+1}} \left\langle r_k^{\ell} Y_{\ell}^m(\theta_k, \phi_k) \right\rangle \quad (3.2)$$

donde  $\langle \dots \rangle$  indica un valor de expectación en el estado fundamental del átomo. Sumando sobre todos los electrones de la capa, se encuentra la energía del campo "cristalino". La invariancia de la inversión temporal, garantiza que todos los términos con  $\ell$  impar son ceros y para cualquier capa atómica que contenga electrones con momento angular  $L$ , los términos con  $\ell > 2L$  son ceros ( $\ell$  es el número cuántico orbital del electrón considerado). De este modo para electrones 4f, en las tierras raras, la suma anterior termina en  $\ell = 6$  (ver apéndice A).

$$E = \sum_{\ell=0}^6 \sum_{m=-\ell}^{\ell} A_{\ell}^m \langle r_{\ell}^{\ell} Y_{\ell}^m(\theta_k, \phi_k) \rangle \quad (3.3)$$

donde

$$A_{\ell}^m = -e \sum_j \frac{q_j}{R_j^{(\ell+1)}} (-1)^m Y_{\ell}^m(\theta_j, \phi_j) \quad j \text{ par}$$

$$= 0 \quad j \text{ para } \ell \text{ impar}$$

En la fase cúbica "tipo laves" aparecen solamente términos de orden cuarto y sexto debido a la simetría cúbica (Ver Apéndice A). Cálculos realizados por Cochran et al. en amorfos [ref. al pie de la página 14] establecieron que los términos de segundo orden en la energía de anisotropía son los dominantes ya que  $E_4/E_2 \approx 0.08$  y el término de cuarto orden en la energía es de la misma magnitud que el encontrado en el caso cristalino. Luego en la fase amorfa que es la que interesa aparecen sólo términos de segundo orden ya que los órdenes superiores, en este caso son despreciables.

Dentro de una aproximación semi-clásica se minimiza el potencial

$$E_{\ell}(\theta, \phi) = \sum_{m=-\ell}^{\ell} A_{\ell}^m \langle r^{\ell} \rangle Y_{\ell}^m(\theta, \phi) \quad (3.4)$$

con respecto a las coordenadas electrónicas  $(\Theta, \phi)$ . La energía de anisotropía de orden  $\ell$  está definida como

$$\Delta E_\ell = \text{Max} E_\ell(\Theta, \phi) - \text{Min} E_\ell(\Theta, \phi) \quad (3.5)$$

Los ejes de fácil magnetización están identificados con la dirección de mínimo potencial.

Para un análisis completo (Mecánico-Cuántico) se debe escribir el promedio  $\sum_K \langle r_K^\ell Y_\ell^m(\Theta_K, \phi_K) \rangle$  en términos de sus operadores equivalentes, obteniéndose los cambios de energía en términos de los valores de expectación de productos de  $J_x$ ,  $J_y$  y  $J_z$  donde  $\vec{J}$  es el spin total. Los coeficientes  $A_\ell^m$  son generalmente dejados como parámetros libres determinados por el ajuste experimental.

Teniendo presente el método del operador equivalente (Apéndice A) y considerando sólo términos de segundo orden, es siempre posible elegir un sistema de ejes locales en cada sitio individual. Con esto el Hamiltoniano del cristal dado por la relación (A.12) del Apéndice A, se puede escribir en la forma

$$\mathcal{H}_c = B_0^2 O_0^2 + B_2^2 O_2^2 \quad (3.6)$$

donde

$$B_\ell^m = A_\ell^m \langle r^\ell \rangle \Theta_\ell$$

Al reemplazar los valores de  $O_0^2$  y  $O_2^2$  dados por (A.7,8) (Apéndice A) se tiene:

$$\mathcal{H}_c = A_i (J_{x_i})^2 + B_i (J_{y_i})^2 + C_i (J_{z_i})^2 \quad (3.7)$$

donde el subíndice  $i$  representa un ion en particular y  $(X_i, Y_i, Z_i)$  se refiere a los ejes principales del campo cristalino local al segundo orden.

### 3.2. MODELO HPZ PARA ANISOTROPIA MAGNETICA ALEATORIA (AMA) CON INTERACCIONES MIXTAS

El modelo de Harris, Plischke y Zuckermann HPZ [1] para Anisotropía Magnética Aleatoria (AMA) permite describir las propiedades magnéticas de aleaciones amorfas, tierras raras metal-transición, las cuales tienen una comparación directa con la correspondiente fase cristalina. Este es un modelo de Heisenberg en el cual cada momento de tierra rara está sujeto a una anisotropía local uniaxial que proviene del campo cristalino. El análisis de los resultados obtenidos por Cochrane et al [\*], permite establecer que la distribución de las direcciones de los ejes locales de fácil magnetización, es efectivamente isotropa y que estos pueden estar definidos en cada sitio de tierra rara. Luego dentro de este modelo, los ejes de anisotropía se consideran orientados al azar. Se asume además que la aleatoriedad de la anisotropía del campo, es la característica más importante del estado amorfo.

En el Hamiltoniano (3.7) el cual describe la AMA del  $i$ -ésimo sitio de tierra rara, es siempre posible elegir  $Z_i$  tal que en cada sitio el coeficiente  $C_i$  sea mucho mayor numéricamente que  $A_i$  y  $B_i$

, en este caso  $Z_i$  llega a ser un eje local de fácil magnetización, y una simple aproximación en la AMA es mantener sólo los

[\*] R.W. Cochrane, R. Harris and M. Plischke, J. Non-C Solid 15 (1974).

términos  $C_i(J_{iz_i})^2$ , reemplazando cada  $C_i$  por un valor promedio  $-D$ .  
Con esto el Hamiltoniano se puede escribir como

$$\mathcal{H}_c = -D \sum_i (J_{iz_i})^2 \quad (3.8)$$

$\mathcal{H}_c$  describe la AMA, supuesta uniaxial por simplicidad, siendo esta una aproximación razonable para iones con valores grandes de  $J$  [9];  $D$  es la constante de anisotropía promedio,  $Z_i$  es el eje fácil de magnetización en el sitio  $i$ -ésimo del ion tierra rara.

La naturaleza amorfa del sistema queda descrita al asumir que los ejes "fáciles"  $Z_i$  están distribuidos en direcciones al azar.

El Hamiltoniano AMA completo, para una aleación en la cual la única componente magnética corresponde a iones de tierras raras está dado por

$$\mathcal{H}_{AMA} = \mathcal{H}_Z + \mathcal{H}_{int} + \mathcal{H}_c \quad (3.9)$$

donde  $\mathcal{H}_Z$  es el término de Zeeman usual, debido a un campo magnético externo constante en la dirección  $z$  dado por

$$\mathcal{H}_Z = -g\mu_B H_{ext} \sum_i J_{iz} \quad (3.10)$$

donde  $J_{iz}$  es la componente z del operador momento angular  $\vec{J}$ , que describe al momento magnético de un ion de tierra rara en el sitio i.

$\mathcal{H}_{int}$ : es el término de interacción de intercambio RKKY entre los momentos de tierras raras por medio de los electrones de conducción. En general tales interacciones son de largo alcance en metales puros, compuestos y aleaciones diluídas. Sin embargo, como ellos dependen fuertemente del libre camino medio (l.c.m.), en el caso de metales amorfos resulta ser de mucho menor alcance debido a que en estos el (l.c.m) es del orden de las distancias interatómicas. Así un modelo de vecinos próximos puede ser adecuadamente razonable. La magnetización en la banda de conducción es despreciable en el modelo anterior, ya que se supone muy pequeño comparado con la polarización debido a los momentos 4f. La misma aproximación se utiliza para metales cristalinos de tierras raras, aleaciones y compuestos.

Luego, esta interacción se puede escribir como

$$\mathcal{H}_{int} = -\frac{1}{2} \sum_{i,j} J_{ij} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_j \quad (3.11)$$

$J_{ij}$  es la constante de acoplamiento para las interacciones RKKY entre los sitios de tierras raras i y j, considerada distinta de cero en (3.11) sólo para interacciones entre vecinos próximos. Sin embargo en este trabajo se incluye la posibilidad de interacciones mixtas con primeros y segundos vecinos.

En particular se supone que cada momento de tierra rara está acoplado ferromagnéticamente con  $\nu_f$  segundos vecinos y antiferromagnéticamente con  $\nu_a$  tierras raras primeros vecinos, tanto  $\nu_f$  como  $\nu_a$  son valores promedios los cuales dependen fuertemente de las aleaciones amorfas consideradas. Además,  $J_f$  y  $J_a$  son las constantes de acoplamiento de intercambio asociadas con  $\nu_f$  y  $\nu_a$  respectivamente.

Con todo lo anterior (3.9) se puede escribir como

$$\mathcal{H} = -g\mu_B H_{\text{ext}} \sum_i J_{iz} - \frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_j - D \sum_i J_{iz}^2 \quad (3.12)$$

Teniendo presente el capítulo 2, utilizando el modelo de las dos "subredes" y la aproximación del campo molecular (3.12) se puede escribir como

$$\mathcal{H}^{\text{ACM}} = -g\mu_B \sum_{i\alpha} \left[ H_\alpha^T J_{iz}^\alpha + D (J_{iz}^\alpha)^2 \right] \quad (3.13)$$

donde  $\alpha$  se refiere a las dos subredes A y B, las cuales en este caso se construyen de la siguiente manera con respecto a la dirección z del campo magnético externo. La "subred" A representa el conjunto de momentos magnéticos que están contenidos en la parte superior de

la semiesfera definida por la dirección del campo magnético externo (fig. 3.1). La subred B por otro lado, contiene todos los momentos magnéticos que se encuentran en la parte inferior de la semiesfera con respecto a la dirección del campo. La aleatoriedad del estado antiferromagnético, se construye "forzando" a todos los momentos magnéticos vecinos de un ion de tierra rara en la "subred" A, a yacer en la "subred" B y viceversa para valores infinitesimales del campo externo [ 3].

De este modo el criterio de la semiesfera completa la definición de primero y segundo vecino en el caso de un amorfo.

En este caso, los campos  $H_A$  y  $H_B$  según (2.23) a) y b), para  $J=1$  están dados por:

$$a) H_A^T = H_{ext} + \frac{v_f J_f}{g\mu_B} \langle\langle J_z^A \rangle\rangle - \frac{v_a J_a}{g\mu_B} \langle\langle J_z^B \rangle\rangle \quad (3.14)$$

$$b) H_B^T = H_{ext} + \frac{v_f J_f}{g\mu_B} \langle\langle J_z^B \rangle\rangle - \frac{v_a J_a}{g\mu_B} \langle\langle J_z^A \rangle\rangle$$

Las ecuaciones(3.13,14) se reducen a la ecuación de HPZ en [ 1] para  $v_f \neq 0$  y  $v_a = 0$  y a los resultados de Ferrer y Zuckermann [ 3] para acoplamientos antiferromagnéticos cuando  $v_f = 0$  y  $v_a \neq 0$ .

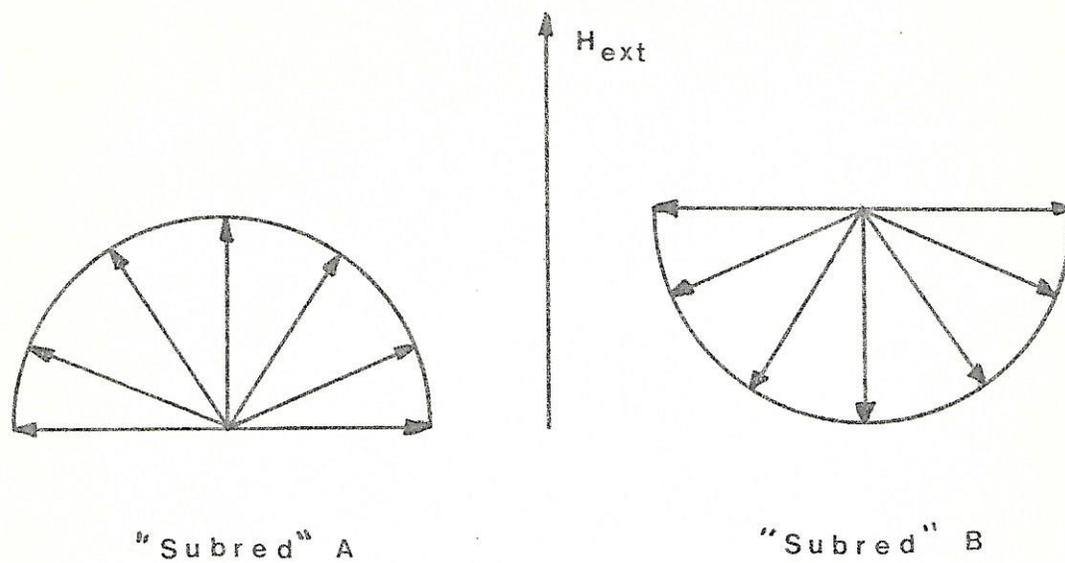


Fig. 3.1: Representación esquemática de la "subred" A y la "subred" B, para una dirección fija de un campo magnético externo infinitesimal  $H_{ext}$ . La difusión de las "subredes" es arbitraria para anorfos antiferromagnéticos y depende de la dirección de  $H_{ext}$ .

Es posible además, aplicar una descripción similar a la dada por Ferrer y Zuckermann [3] para acoplamientos antiferromagnéticos, aunque en este caso las ecuaciones autoconsistentes para  $\langle\langle J_z^A \rangle\rangle$  y  $\langle\langle J_z^B \rangle\rangle$  son ahora más complicadas, sin embargo este problema se puede resolver numéricamente utilizando el computador. El promedio  $\langle\langle \dots \rangle\rangle$  es el promedio usual del modelo HPZ el cual implica un promedio termodinámico sobre (3.13) y en promedio sobre los ejes "fáciles" de anisotropía magnética aleatoria.

El Hamiltoniano anterior se puede escribir como

$$\mathcal{H}^{ACM} = - \sum_i D (J_{iz}^{A,B})^2 + \lambda_{A,B} J_{iz}^{A,B} \quad (3.15)$$

donde

$$\lambda_{A,B} = \nu_f \int_f \langle\langle J_z^{A,B} \rangle\rangle - \nu_a \int_a \langle\langle J_z^{B,A} \rangle\rangle + g \mu_B H_{ext} \quad (3.16)$$

$\mathcal{H}^{ACM}$ : es una suma de Hamiltonianos de cada sitio, cada uno de los cuales, puede ser escrito en términos de  $\lambda$  y el ángulo  $\Phi_i$  formado por los ejes  $Z_i$  y  $z$  ( figura 3.2) de modo que el promedio sobre  $\Phi_i$  da origen a una ecuación autoconsistentes para  $\langle\langle J_z^{A,B} \rangle\rangle$  las cuales se pueden resolver numéricamente para varios valores de la razón

$P = \nu_f \int_f / \nu_a \int_a$  . En el capítulo 4, se analiza  $\mathcal{H}^{ACM}$  en el límite cuántico y clásico.

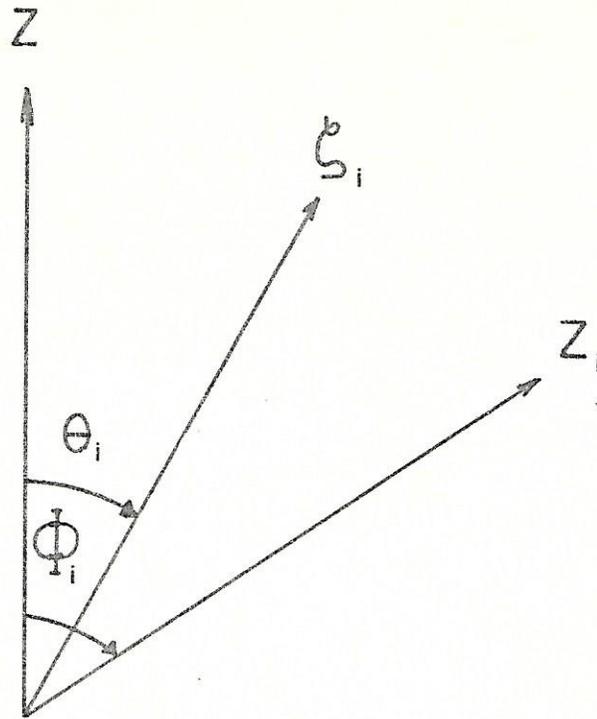


Fig. 3.2: Orientación relativa de los ejes.

eje  $z$  : Campo externo

$S_i$  : Dirección de espín

$z_i$  : Ejes locales de fácil magnetización

## 4. CALCULOS CUANTICOS Y CLASICOS (J=1)

Si se considera  $\Phi_i$  como se definió al final del capítulo 3, y los ejes de cuantización para el momento angular en el sitio  $i$ , a lo largo de los ejes locales de fácil magnetización, entonces  $J_{iz}$  en  $(\mathcal{H})^{ACM}$  es diagonal y  $J_{iz}$  está dado por

$$J_{iz} = J_{ix_i} \sin \Phi_i + J_{iz_i} \cos \Phi_i \quad (4.1)$$

Se asume que  $J_{iz}$  yace en el plano de  $Z$  y  $Z_i$ , con esto  $\mathcal{H}^{ACM}$  se puede escribir como sigue:

$$\mathcal{H}^{ACM} = \sum_i \mathcal{H}_{(i)}^{ACM}$$

donde  $\mathcal{H}_{(i)}^{ACM}$  está dado por

$$\mathcal{H}_{(i)}^{ACM} = -D (J_{iz_i}^\alpha)^2 - \lambda_\alpha J_{iz_i}^\alpha \quad (4.2)$$

desde (4.1) y (4.2),  $\mathcal{H}_{(i)}^{ACM}$  tiene los siguientes elementos matriciales en la base de ejes locales.

$$\mathcal{H}_{(i)}^{ACM} = \begin{bmatrix} -D - \lambda \cos \Phi_i & , & -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i & , & 0 \\ -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i & , & 0 & , & -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i \\ 0 & , & -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i & , & -D + \lambda \cos \Phi_i \end{bmatrix} \quad (4.3)$$

Los autovalores se encuentran al diagonalizar

$$\| \mathcal{H}_{(i)}^{ACM} - E_i \| = 0 \quad (4.4)$$

los tres autovalores y sus correspondientes autovectores, evaluados solamente en primer orden en  $\lambda$ , están dados por

$$a) E_i^{(1)} = 0 \quad ; |1_i\rangle = \left( -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i, 1, -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i \right)$$

$$b) E_i^{(2)} = -D - \lambda \cos \Phi_i \quad ; |2_i\rangle = \left( 1, \frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i, \frac{\lambda}{4D} \operatorname{sen}^2 \Phi_i \operatorname{sec} \Phi_i \right) \quad (4.5)$$

$$c) E_i^{(3)} = -D + \lambda \cos \Phi_i \quad ; |3_i\rangle = \left( \frac{\lambda}{4D} \operatorname{sen}^2 \Phi_i \operatorname{sec} \Phi_i, -\frac{\lambda}{\sqrt{2}} \operatorname{sen} \Phi_i, -1 \right)$$

El promedio termodinámico  $\langle J_{iz} \rangle$  está dado por

$$\langle J_{iz} \rangle = \frac{\sum_{m=1}^3 \langle m_i | J_{iz} | m_i \rangle e^{-E_i^{(m)}/k_B T}}{\sum_{m=1}^3 e^{-E_i^{(m)}/k_B T}} \quad (4.6)$$

Al utilizar las ecuaciones (4.1, 5, 6) resulta la siguiente expresión:

$$\langle J_{iz} \rangle_{\mu} = \lambda \left[ -\frac{2}{D} (1-\mu^2) + \frac{2\mu^2}{k_B T} e^{D/k_B T} + \frac{2}{D} (1-\mu^2) e^{D/k_B T} \right] \left( 1 + 2 e^{D/k_B T} \right)^{-1} \quad (4.7)$$

donde  $\mu = \cos \Phi_i$ , el subíndice  $\mu$ , que aparece en (4.7) sirve para indicar que  $\langle J_{iz} \rangle$  es una función de  $\Phi_i$ , de este modo sólo se ha realizado el promedio termodinámico.

Para encontrar  $\langle\langle J_z^{A,B} \rangle\rangle$  a partir de (3.14) y así  $\lambda_{A,B}$ , se debe realizar el promedio sobre  $\theta_i$ , esto, en general, está dado por

$$\langle\langle J_z \rangle\rangle = \int_0^1 d\mu \langle J_{iz} \rangle_{\mu} P(\mu) \quad (4.8)$$

donde  $P(\mu)$  es la probabilidad angular de distribución para los ejes de fácil magnetización  $z_i$ . Para el caso de una anisotropía magneto cristalina uniaxial, corresponde a una distribución  $P(\mu) = \delta(1-\mu)$  y para el caso amorfo, esta se supone completamente isotrópica  $P(\mu)=1$  ( $0 \leq \mu \leq 1$ ).

## 4.1. ESTIMACION DE TEMPERATURAS CRITICAS

Al reemplazar en (4.8)  $\langle J_{iz} \rangle_\mu$  dado por (4.7) y efectuar la integración se tiene para una distribución isótropa:

$$\langle\langle J_z^A \rangle\rangle = \frac{2 \lambda_A / k_B T}{(1 + 2 e^{D/k_B T})} \left[ \frac{2 k_B T}{3 D} (e^{D/k_B T} - 1) + \frac{1}{3} e^{D/k_B T} \right] \quad (4.9)$$

luego a partir de (3.10) para  $H_{\text{ext}} = 0$  y (4.9), es posible estimar las temperaturas críticas imponiendo la siguiente condición

$$\left. \frac{\partial \langle\langle J_z^A \rangle\rangle}{\partial \lambda} \right|_{\lambda_A = 0} = \frac{1}{\nu_f g_f \pm \nu_a g_a} \quad (4.10)$$

que equivale a igualar las pendientes de las dos curvas en  $\lambda_A = 0$ , luego al reemplazar (4.9) en (4.10) se obtiene

$$T_{c,N} = \frac{2 [\nu_f g_f \mp \nu_a g_a]}{k_B (1 + 2 e^{D/k_B T_{c,N}})} \left[ \frac{2 T_{c,N} k_B}{3 D} (e^{D/k_B T_{c,N}} - 1) + \frac{1}{3} e^{D/k_B T_{c,N}} \right] \quad (4.11)$$

A partir de (4.7) e imponiendo la condición  $\mu = 1$ , y luego reemplazando  $\langle J_{iz} \rangle_1$  en (4.10), se obtienen las temperaturas críticas para el "caso cristalinos" las cuales están dadas por

$$T_{c,N} \text{ (Cristalino)} = \frac{2}{k_B} (\nu_f g_f \mp \nu_a g_a) \frac{e^{D/k_B T_{c,N}}}{1 + 2 e^{D/k_B T_{c,N}}} \quad (4.12)$$

Los signos menos y más del lado derecho de las ecuaciones anteriores se refieren a la temperatura de Curie y Neel respectivamente.

La ecuación (4.11) muestra que  $T_N$  es siempre mayor que  $T_C$  para  $\nu_a J_a \neq 0$ , en consecuencia, dentro de la aproximación del campo molecular, el estado antiferromagnético es estable con campo magnético cero, debido a que este estado, es el que minimiza la energía libre como se verá más adelante (sección 4.2), esta estabilidad aumenta cuando aumenta  $p$  [10]. Esto se debe al hecho que las interacciones ferromagnéticas  $J_f J_f$  entre segundos vecinos próximos estabilizan la magnetización de la "subred" y por lo tanto esto hace más difícil destruir al estado antiferromagnético. La estabilidad del estado antiferromagnético a través del Campo Molecular es también evidente en la curva de energía libre en función de la temperatura figura 4.2.

4.2. ENERGIA LIBRE ( $H_{\text{ext}} = 0$ )

La función partición (2.17), en este caso está dada por

$$Z = \sum_{m=1}^3 e^{\bar{\epsilon}_i^{(m)}/K_B T} \quad (4.13)$$

al reemplazar los autovalores  $\bar{\epsilon}_i^{(m)}$  dados por (4.5) se tiene

$$Z = \left[ 1 + 2 e^{D/K_B T} \cosh(\lambda \cos \bar{\phi}_i / K_B T) \right] \quad (4.14)$$

Si se expande el coseno hiperbólico y se desprecian los términos de segundo orden en  $\lambda$  se puede escribir

$$Z = 1 + 2 e^{D/K_B T} \quad (4.15)$$

luego según (2.16), la energía libre de Helmholtz está dada por

$$F = -K_B T \ln(1 + 2 e^{D/K_B T}) \quad (4.16)$$

Al comparar los valores entregados por la expresión anterior, con los de la solución exacta entregada por el computador, se ve que esta

sólo da cuenta de la región paramagnética, lo que es de esperar debido a que en (4.16)  $F$  es independiente de  $\langle\langle J_z^A \rangle\rangle$  y  $\langle\langle J_z^B \rangle\rangle$ . Sin embargo, esto permite establecer una relación de orden entre las energías libres para los estados ferromagnéticos y antiferromagnéticos correspondientes a las temperaturas críticas  $T_C$  y  $T_N$  respectivamente, como  $T_N$  es siempre mayor que  $T_C$  cuando  $\nu_a \rho_a \neq 0$ , esto trae como consecuencia que  $F(T_N) < F(T_C)$  luego el estado antiferromagnético es el que minimiza la energía libre y es por lo tanto el estado estable. Además cuando  $D = 0$ , se obtiene  $F = -k_B T \ln 3$  que corresponde al caso cristalino simple debido a que se obtiene el mismo resultado que entregan las ecuaciones (2.18) y (2.16) para  $J = 1$ .

#### 4.3 CALCULOS CLASICOS

Las ecuaciones (3.13) y (3.14) a) y b) entregan una descripción mecánico cuántica de interacciones mixtas dentro del modelo AMA. Sin embargo, es interesante examinar los efectos de histéresis para diferentes valores de  $p$ . Para escribir las ecuaciones autoconsistentes para la magnetización de las subredes dadas por (3.14) a) y b) en el límite clásico, se emplea el mismo método utilizado por Callen et al [11] y Sung et al [5].

Si  $\theta_i$  es la dirección del  $i$ -ésimo spin con respecto al eje  $Z$  (figura 3.2) en el límite clásico

$$a) \hat{J}_{iz} / J \longrightarrow \cos \theta_i$$

$$b) \hat{J}_{iz_i} / J \longrightarrow \cos(\Phi_i - \theta_i) \quad (4.22)$$

$$c) \mathcal{H}^{ACM} \longrightarrow E$$

Al reemplazar las expresiones anteriores en (4.2) y manteniendo una notación similar a la de Sung para las magnetizaciones espontáneas reducidas  $\sigma_A$  y  $\sigma_B$  que representan a los átomos de las subredes A y B respectivamente, se puede escribir

$$E_{A,B} = - \left[ \nu_f \int_f \sigma_{A,B} - \nu_a \int_a \sigma_{B,A} + g\mu_B H_{ext} \right] \cos \theta_{A,B} - D \cos^2(\Theta_{A,B} \mp \theta_{A,B}) \quad (4.23)$$

donde  $E_{A,B}$  representa la energía de los spines de la subred A y B respectivamente y los ángulos  $\theta_A, \theta_B$ ,  $\Theta_A$  y  $\Theta_B$  son los que se muestran en la (figura 4.1)

En la aproximación del campo molecular y con temperatura nula, un espín se encuentra en el plano formado por el eje Z y el de anisotropía. Además se observa que el ángulo entre estos ejes toma valores entre 0 y  $\pi/2$  :

Para un eje de anisotropía dada, la orientación del spin (en su posición de equilibrio) debe ser tal que su energía es extrema, luego imponiendo esta condición a las ecuaciones (4.23) se tiene

$$a) \quad C_B \operatorname{sen} \theta_A = \operatorname{sen} 2(\Theta_A - \theta_A)$$

(4.24)

$$b) \quad C_A \operatorname{sen} \theta_B = - \operatorname{sen} 2(\Theta_B + \theta_B)$$

donde

$$a) \quad C_B = \frac{g \mu_B H_{\text{ext}} + \nu_f \int_f \sigma_A - \nu_a \int_a \sigma_B}{D}$$

(4.25)

$$b) \quad C_A = \frac{g \mu_B H_{\text{ext}} + \nu_f \int_f \sigma_B - \nu_a \int_a \sigma_A}{D}$$

Debido a que los ejes de anisotropía son aleatorios, las magnetizaciones reducidas deben promediarse sobre la semiesfera superior

$$\bar{\sigma}_{A,B} = \frac{\int_0^{\pi/2} \cos \theta_{A,B} \sin \Theta_{A,B} d\Theta_{A,B}}{\int_0^{\pi/2} \sin \Theta_{A,B} d\Theta_{A,B}} \quad (4.26)$$

Las ecuaciones (4.24) a (4.26) forman un conjunto de ecuaciones autoconsistentes para  $\bar{\sigma}_{A,B}$ . Estas ecuaciones se resuelven numéricamente para diferentes valores de los parámetros  $d$  y  $p$  dados por:

$$d = D/\nu_a \mathcal{J}_a \quad ; \quad p = \nu_f \mathcal{J}_f / \nu_a \mathcal{J}_a \quad (4.27)$$

Los resultados están descritos en el capítulo 5.

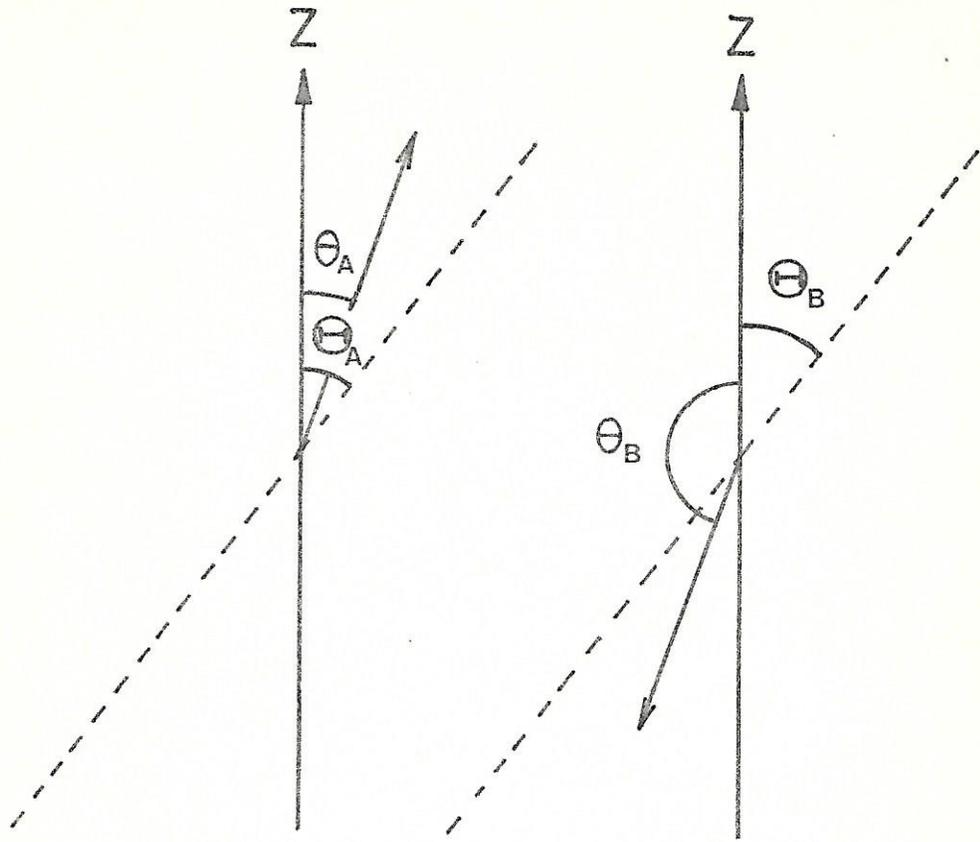


Fig. 4.1  $\theta_A$  y  $\theta_B$  son los ángulos entre el eje z y la dirección de magnetización de las "subredes"  $\sigma_A$  y  $\sigma_B$  respectivamente.  $\odot_A$  y  $\otimes_B$  son las direcciones de los ejes de fácil magnetización de la anisotropía magnética aleatoria [4].

## 5. RESULTADOS, DISCUSION Y CONCLUSIONES

Los resultados de la magnetización total  $M$  en función del campo magnético externo  $H_{\text{ext}}$  se muestra en la (figura 4.3) a una temperatura dada  $T$ , para un valor de  $d = 10$  y diferentes valores de  $p$ , los resultados se obtienen por integración numérica y la solución autoconsistente de las ecuaciones (3.13) y (3.14) a) y b) para  $J = 1$  y  $T \ll T_N$ .

La (figura 4.2) muestra la estabilidad del estado antiferromagnético dado por el comportamiento de la energía libre en función de la temperatura. Se ve además el campo magnético crítico para el cual ocurre la transición metamagnética desde el estado antiferromagnético al ferromagnético, tal campo crítico debe aumentar cuando se aumenta  $J_f \int f$  a una temperatura dada, lo que resulta evidente en la figura 3.

Los gráficos de la figura 4.3 presentan las siguientes propiedades:

- i) Cuando están presentes solamente las interacciones antiferromagnéticas ( $p = 0$ ), la transición metamagnética es continua como se muestra en la referencia 3.
- ii) A medida que las interacciones ferromagnéticas entre segundos vecinos es considerada ( $p \neq 0$ ) la transición metamagnética llega a ser aguda y discontinua. Esto también se ve en el diagrama de energía libre de la figura 4.2.
- iii) Como se discutió anteriormente, el campo crítico  $H_c$  aumenta cuando se aumenta  $p$ .

- iv) El valor numérico de  $M$ , disminuye con el aumento de  $p$  para un valor dado de  $H_{\text{ext}} < H_C$ , y la transición metamagnética llega a ser aguda para valores grandes de  $p$ .
- v)  $M$  aumenta con  $p$  para campos magnéticos  $H_{\text{ext}} > H_C$ .

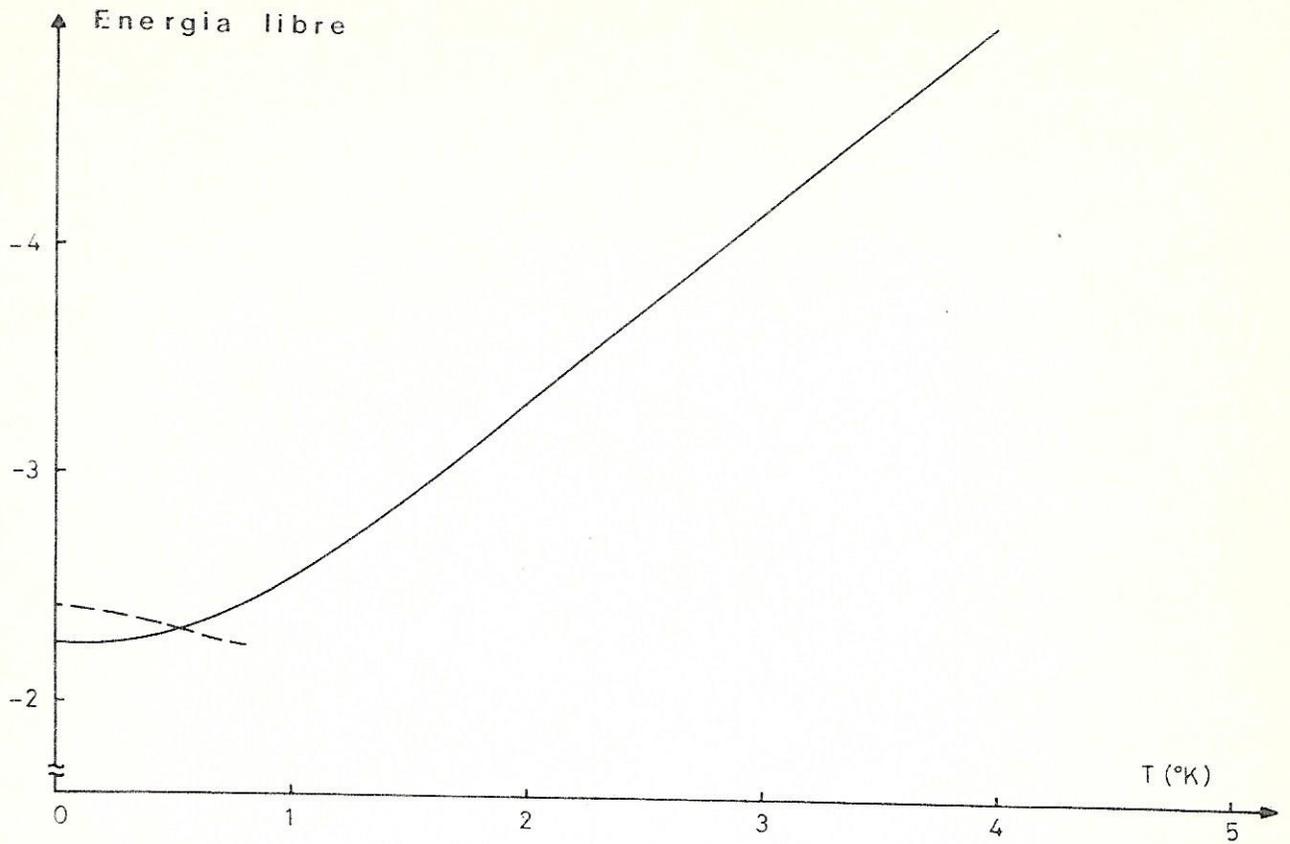


Fig. 4.2 Energía libre en función de la temperatura para  $J = 1$ ,  $D = 2K$ ,  $p = 1$  y  $H_{\text{ext}} = 0.8K$  en el límite cuántico, la curva continua representa al estado antiferromagnético y la segmentada al ferromagnético.

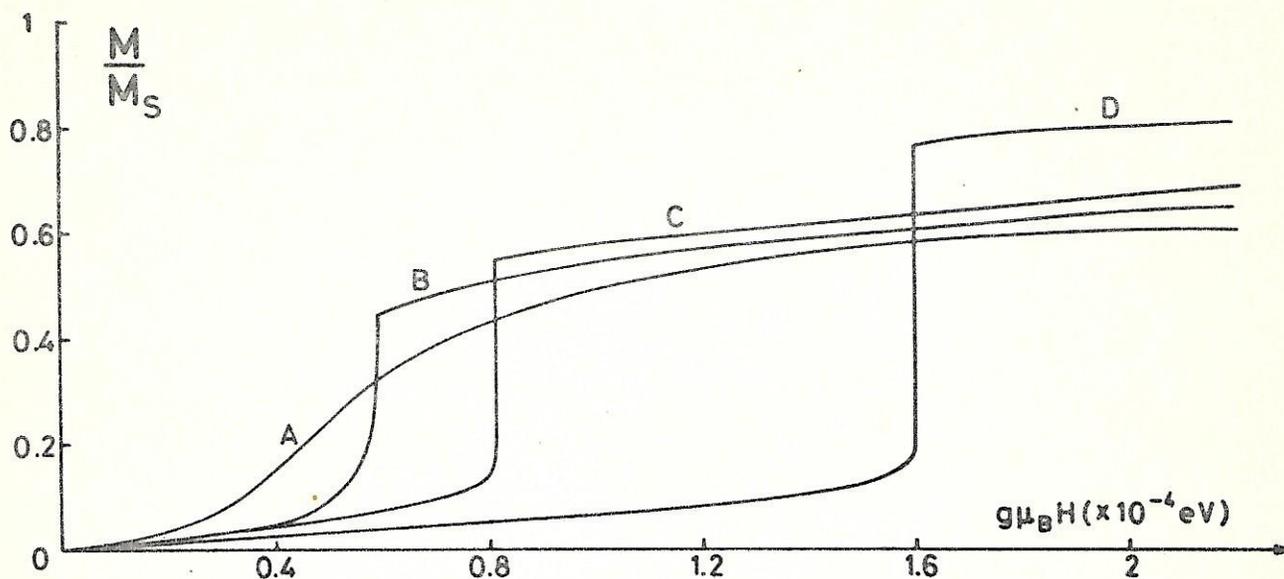


Figura 4.3 Magnetización total  $M$  (normalizada a la magnetización de saturación  $M_S$ ) en función del campo magnético externo  $H_{\text{ext}}$ , para diferentes valores de  $p$  en el límite cuántico. Los parámetros utilizados son  $J = 1$ ,  $D = 10\text{K}$ ,  $T = 0,2$  y  $\nu_a \mathcal{J}_a = 1\text{K}$ , la temperatura  $T$  se elige mucho menor que  $T_N$  para todos los valores de  $p$ . Las curvas corresponden a los siguientes valores de  $p$ : (A)  $p = 0$ , (B)  $p = 0,5$ , (C)  $p = 1,0$ , (D)  $p = 10,0$ .

Las curvas de histéresis a temperatura cero, se obtienen numéricamente a partir de las ecuaciones (4.24) a (4.26) para un valor fijo de  $d = 1.0$  y para diferentes valores  $p$ . Estos resultados se muestran en las figuras 4.4. La figura 4.4 a) muestra que para  $p$  suficientemente pequeño, la curva de histéresis es suave y tiene la misma forma que las encontradas por Sung et al [4]. Solamente para interacciones de intercambio antiferromagnético a medida que  $p$  aumenta, las curvas de histéresis cambian su forma y presentan un comportamiento discontinuo para un campo magnético característico  $H^*$  (el cual no debe ser confundido con el campo coercitivo).  $H^*$  aumenta a medida que  $p$  aumenta y las curvas de histéresis, empiezan a adoptar una forma aproximadamente cuadradas para  $p = 4$  figura 4.4 e). Tal forma cuadrada es característica de las curvas de histéresis obtenidas tanto desde el campo molecular como de cálculos Monte Carlo para pequeños "racimos", en el caso de interacciones de intercambio puramente ferromagnéticos y utilizando el modelo Anisotropía Magnética Aleatoria (AMA) [1, 10, 11, 12]. Sin embargo, las figuras 4 muestran que las curvas de histéresis, en la aproximación del campo molecular, para aleaciones amorfas con interacciones mixtas son siempre más suaves que las curvas de histéresis obtenidas dentro de la misma aproximación, cuando solamente se considera el caso de interacciones ferromagnéticas. Esto se debe a la presencia de interacciones antiferromagnéticas. Esto lleva a la conclusión de que la existencia de una discontinuidad aguda en las curvas de histéresis

de aleaciones amorfas de tierras raras, no implica necesariamente que todas sean interacciones ferromagnéticas como se sugiere en [8]. Para que tal discontinuidad pueda ocurrir en interacciones antiferromagnéticas entre primeros vecinos, la condición es que a lo menos estén presente interacciones ferromagnéticas entre segundos vecinos de la misma magnitud promedio ( $p \gtrsim 1$ ).

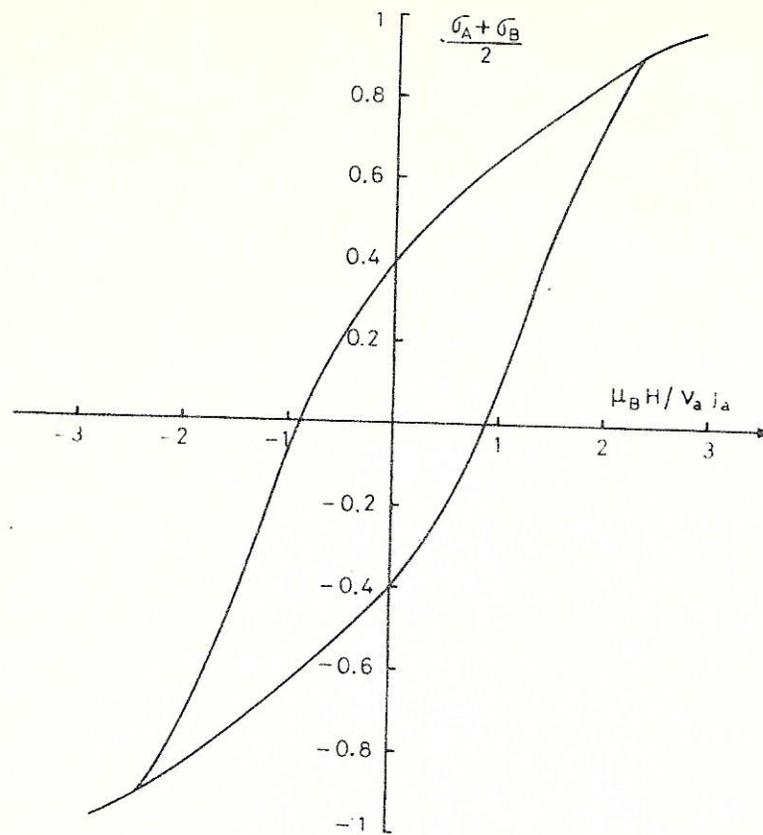


Figura 4.4.a) Curva de histéresis calculada en el límite clásico para  $d = 1.0$  y  $p = 0.2$ .

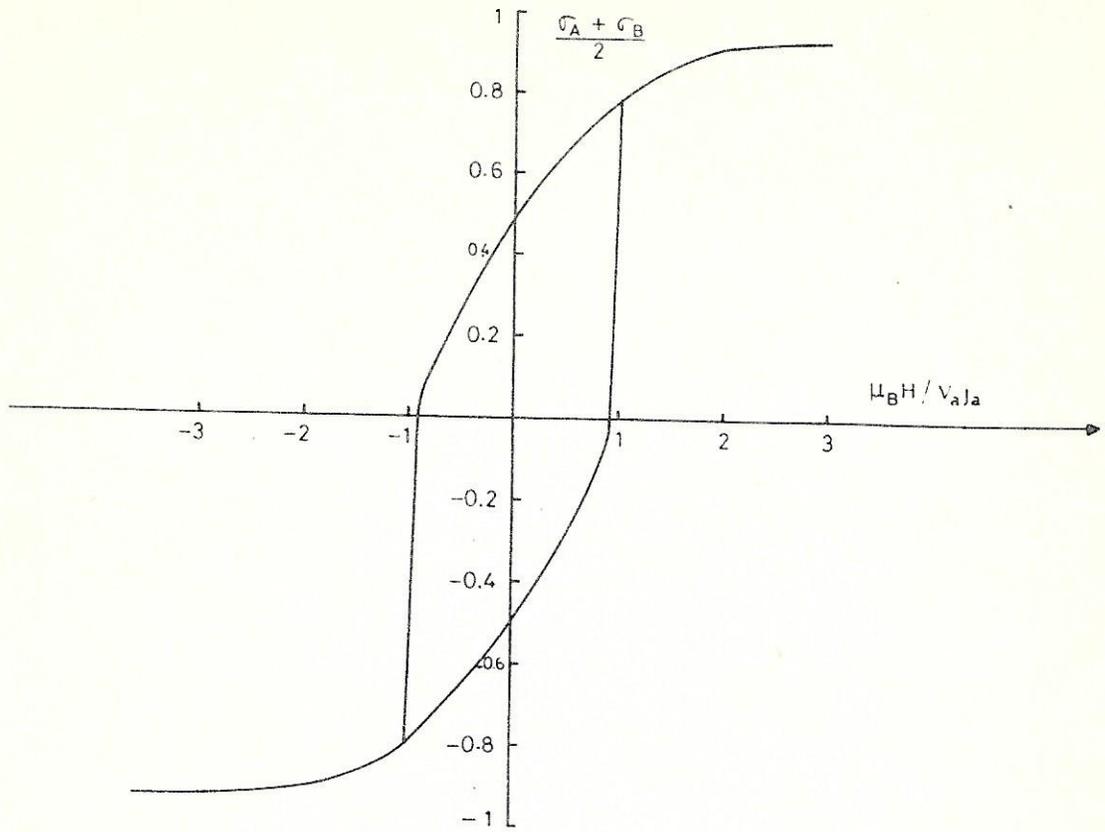


Figura 4.4.b) Curva de histéresis calculada en el límite clásico para  $d = 1.0$  y  $p = 1.0$ .

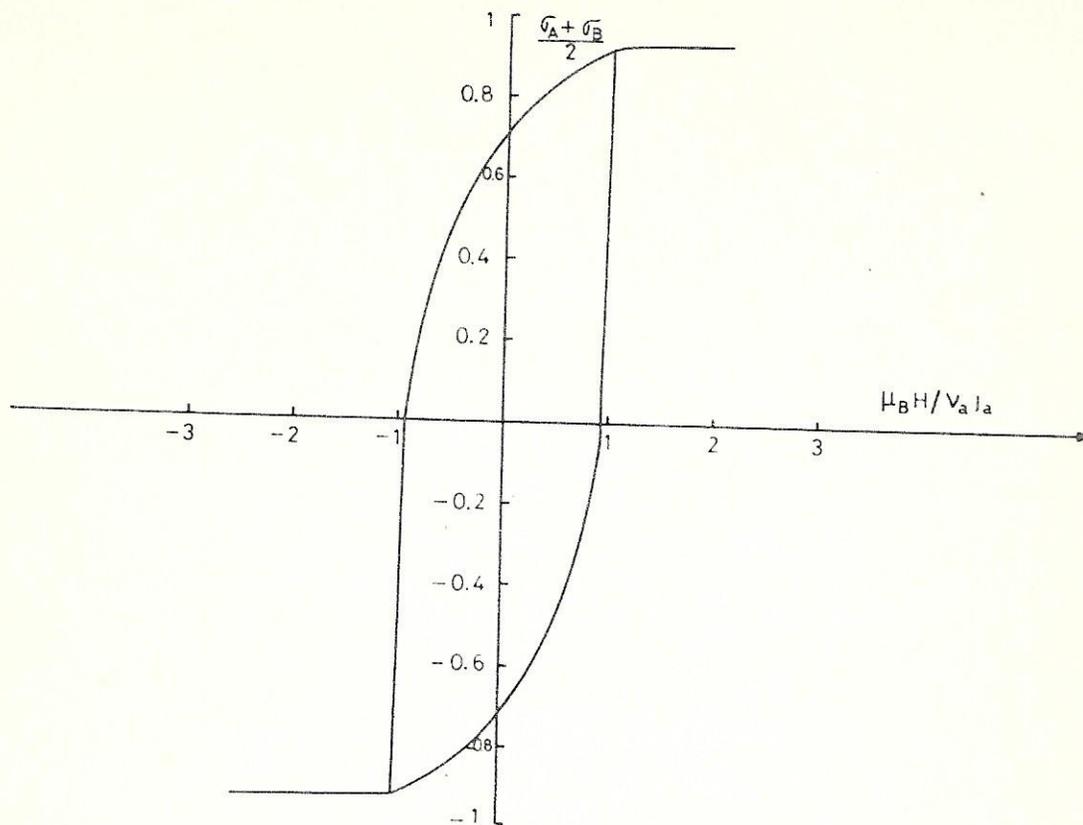


Figura 4.4.c) Curva de histéresis calcula en el límite clásico para  $d = 1.0$  y  $p = 2.0$ .

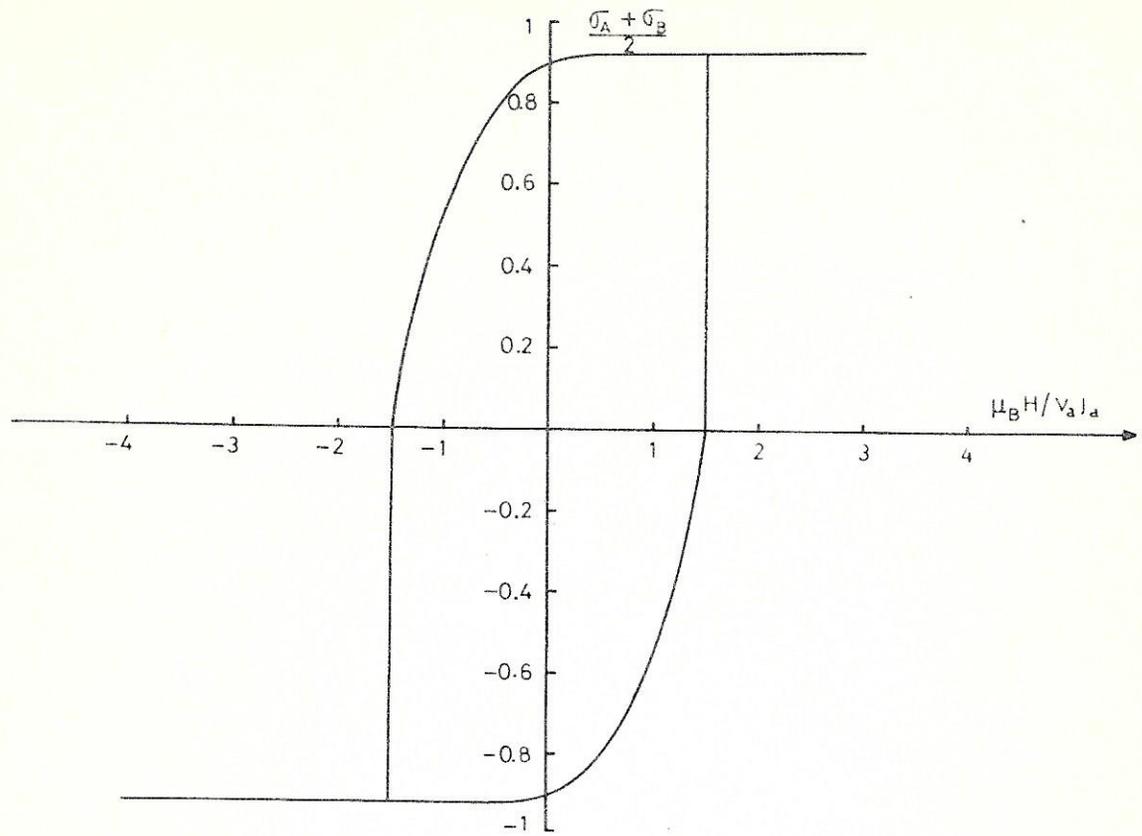


Figura 4.4.d) Curva de histéresis calculada en el límite clásico para  $d = 1.0$  y  $p = 3.0$ .

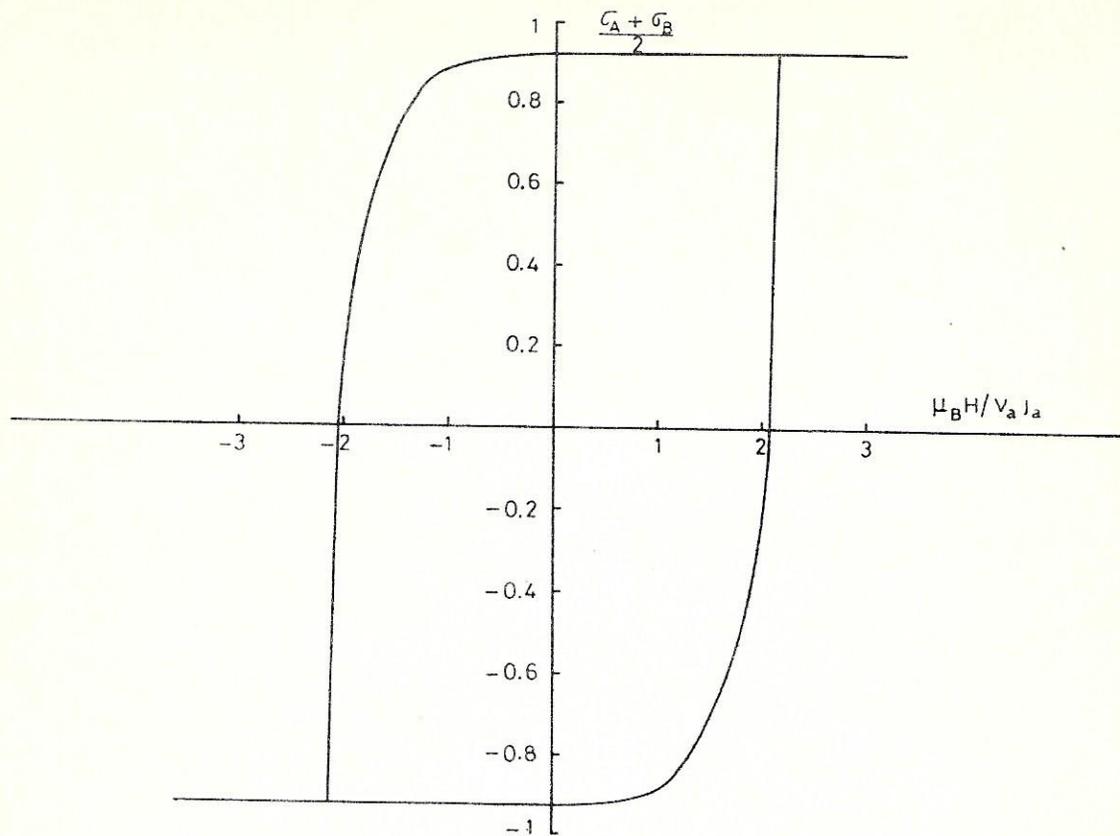


Figura 4.4.e) Curva de histéresis calculada en el límite clásico para  $d = 1.0$  y  $p = 4.0$ .

### 5.1. CONCLUSIONES FINALES

- i) La transición metamagnética, llega a ser una transición de fase aguda de primer orden, cuando se incluyen interacciones mixtas en el formalismo de una anisotropía magnética aleatoria, y los cálculos se realizan dentro de la aproximación del campo molecular (ver figura 4.3).
- ii) La presencia de interacciones ferromagnéticas entre segundos vecinos, trae como consecuencia una disminución en la magnetización total  $M$ , para campos magnéticos pequeños  $H_{\text{ext}} < H_C$  (ver figura 4.3). Esto puede ser utilizado para dar una explicación cualitativa de la lenta saturación en la magnetización  $M$  que se observa en diferentes aleaciones amorfas de tierras raras [1, 7, 8]. Sin embargo, es posible que el estado fundamental de un sistema amorfo el cual presenta una anisotropía magnética aleatoria sea como un estado espin-glass [1, 13]. Un análisis detallado de esto requiere de cálculos Monte Carlo en grandes "racimos" [13] con la posibilidad de órdenes superiores en los términos de anisotropía aleatoria [14] para el caso de interacciones mixtas.
- iii) Los resultados que muestran las figuras 4.4, pueden ser usados para la interpretación de curvas de histéresis experimentales como las encontradas por Boucher [7] para aleaciones a-

morfas de tierras raras-Ag. Sin embargo, es importante destacar que al efectuar algunos cálculos, en los que se usa una anisotropía magnética aleatoria con interacciones de intercambio puramente ferromagnéticas, se obtienen curvas de histéresis sin discontinuidad, por ejemplo las encontradas por Jayaprakash y Kirkpatrick [ 13] por medio del método de cálculo Monte Carlo para "racimos" grandes usando el modelo AMA en el límite Ising, son suaves y anchas.

Es por lo tanto interesante obtener curvas de histéresis utilizando el método Monte Carlo en conjunto con interacciones de intercambio antiferromagnéticas o mixtas para comparar con las variadas formas mostradas en las figuras 4.4. obtenidas usando la aproximación del campo molecular [ 15].

Es importante notar además que los resultados de la figura 2 son cualitativamente los mejores debido a que se ha elegido un valor no real para el momento angular de la tierra rara ( $J=1$ ). Sin embargo la figura 4.2 se obtuvo usando el hamiltoniano axial (3.13). Estas curvas de magnetización en principio deberían tener la misma forma que aquellas que se obtuvieron para valores grandes de  $J$ , es decir  $J \geq 6$ , debido a que para ciertos valores de la constante de anisotropía y de la interacción de intercambio, ambos modelos axial y no axial [ 9, 16] "presentan" las mismas características cualitativas.

## BIBLIOGRAFIA

- [ 1] Harris R., Plischke M. and Zuckermann M.J., Phys. Rev. Lett. 31 (1973) 160).
- [ 2] Cochrane R.W., Harris R. and Zuckermann M.J., Physics Reports, 48 (1978) 1-63.
- [ 3] Ferrer R. and Zuckermann M.J., Canad. J. Phys. 56 (1978) 1098.
- [ 4] Sung S.H., Harris R. and Zuckermann M.J., Canad. J. Phys.
- [ 5] Sung S.H., Harris R., and Zuckermann M.N
- [ 6] Ver Mattis D., (1965) *The Theory of Magnetism*.
- [ 7] Boucher B.Y., I.E.E.E. Trans. Mag. MAG-13 (1977) 1601; J. de Phys. Letters 37 (1976) L345
- [ 8] Gruzalski G.R. and Sellmeyer D.J., Phys. Rev. B20 (1979) 184
- [ 9] Fert A. and Cambell L.A., J. Phys. (London) F8 (1978) L57
- [ 10] Smart J.S., (1966) "Effective Field Theories of Magnetism". W.B. Saunders Company Phyladelphia and London.
- [ 11] Callen E., Liu Y.J. and Cullen J.R., Phys. Rev. B16 (1977) 263

- [ 12] Chi M.C. and Alben R.J., Appl. Phys. 48 (1977) 2987; Patterson J.P. Gruzalski, G.R. and Sellmeyer D.J., Phys. Rev.
- [ 13] Jayaprakash C. and Kirkpatrick S., Phys. Rev.
- [ 14] Fert A., private communication.
- [ 15] Harris R., J. Phys. F (1980) to be published.
- [ 16] Hernández M., Ferrer R. and Zuckermann M.J., Canad. J. Phys. 58 (1980) 629
- [ 17] J.S. Griffith "The Theory of Transition-Metal Ions" Cambridge Univ. Press, London and New York, 1961.
- [ 18] J.L. Prether "Atomic Energy Levels Crystals" N.B.S. Monograph N°19, (1961).
- [ 19] B. Bleary and K.W.H. Stevens, Rept. progr. Phys. 16 (1953).
- [ 20] M.T. Hutchings, Solid State Phys. ed. F. Seitz D. Turboll and H. Ehrenreich, Academic Press, N.Y. 16 (1964).

APENDICE A

Evaluación del Potencial Cristalino y Hamiltoniano del Cristal

El potencial cristalino puede ser calculado en base a un modelo simple de la carga puntual, este potencial  $V(r, \theta, \phi)$  debido a las cargas vecinas en el punto  $(r, \theta, \phi)$  cerca del origen de un ion magnético en cuestión está dado por

$$V(r, \theta, \phi) = \sum_j \frac{q_j}{|\vec{R}_j - \vec{r}|} \quad (\text{A.1})$$

donde  $q_j$  es la carga del  $j$ -ésimo vecino y  $\vec{R}_j$  la distancia del origen.

El método de cálculo está discutido por Friffith y Prather en las referencias [ 17] y [ 18] y está basado en el teorema de adición de los armónicos esféricos.

Si se representa por  $\omega$  el ángulo entre los vectores  $\vec{r}$  y  $\vec{R}$  en términos de los ángulos polares  $(\theta_i, \phi_i)$  y  $(\theta_j, \phi_j)$ , se supone además que este potencial satisface la ecuación de Laplace. De modo que se puede expandir en términos de polinomio en la forma

$$\frac{1}{|\vec{R} - \vec{r}|} = \sum_{l=0}^{\infty} \frac{r^l}{R^{l+1}} P_l^0(\cos \omega) \quad (\text{A.2})$$

si se expresa el teorema de adición de armónicos esféricos en términos de armónicos teserales, zonales o sectoriales  $Z_{l\alpha}$  se tiene

$$P_l^0(\cos \omega) = \frac{4\pi}{(2l+1)} \sum_{\alpha} Z_{l\alpha}(\vec{r}) Z_{l\alpha}(\vec{R}) \quad (\text{A.3})$$

luego para k cargas

$$V(r, \theta, \phi) = \sum_{l=0}^{\infty} \sum_{\alpha} r^l Y_{l\alpha} Z_{l\alpha}(\theta, \phi) \quad (\text{A.4})$$

donde

$$Y_{l\alpha} = \sum_{j=1}^K \frac{4\pi}{(2l+1)} q_j \frac{Z_{l\alpha}(\theta_j, \phi_j)}{R_j^{l+1}} \quad (\text{A.5})$$

Argumentos de simetría reducen considerablemente el número de términos en la expansión de (A.5). Primero: para los electrones d y f se toman expansiones superiores a  $l = 4$  y  $l = 6$ , la razón para hacer esto es que función de onda de los electrones pueden ser también

expandida en funciones armónicas  $\psi_i \sim R(r_i) Y_l^m$  donde  $R(r_i)$  se refiere a la parte radial de la función de onda. Los elementos de matriz son de la forma  $\int \psi_l^i V_e^m \psi_l^i$  por lo tanto son cero para todos aquellos potenciales en que  $l > 2L$ . Esto también se puede ver a partir de un razonamiento teórico de grupo. Los electrones d transforman como el grupo de rotaciones  $D_2$ . El producto directo de dos funciones de onda implica una representación mayor que cuatro. Similares consideraciones se aplican a los electrones f. Segundo: todos los términos con  $l$  impar deben ser nulos debido a que el producto  $\psi_m^i \psi_u^i$  no cambia con una inversión de simetría (es decir  $x \rightarrow -x$ ;  $y \rightarrow -y$ ;  $z \rightarrow -z$ ) mientras que el potencial cambia de signo. Tercero: el término  $l = 0$  en la expansión es una constante. Estas restricciones limita a  $l$  a tomar los valores 2 y 4 para el grupo "fierro" y 2, 4 y 6 para las tierras raras y los grupos actinio.

El Hamiltoniano perturbado se construye a partir de la energía potencial clásica de un ion magnético en un campo eléctrico cristalino, luego

$$\mathcal{H}_c = -|e| \sum_i V(x_i, y_i, z_i) \quad (\text{A.6})$$

Es conveniente, utilizar el método del operador equivalente de Stevens, para expresar (A.6) en función  $J_x, J_y, J_z$ , este método permite encontrar un operador que tiene las mismas propiedades de transformación bajo rotación que el potencial. El procedimiento consiste en expresar  $V(x,y,z)$  en coordenadas cartesianas, luego reemplazar los productos de  $x, y, z$  por expresiones que contengan todas las diferentes combinaciones de  $J_x, J_y, J_z$  y luego dividir por el número total de combinaciones [19] [20] (ejemplo  $\sum_i x_i^2 = \alpha_J \langle r^2 \rangle \left( \frac{J_x J_y + J_y J_x}{2} \right)$ ) esto permite evaluar fácilmente los elementos de matrices del potencial cristalino entre funciones de ondas acopladas, especificadas por valores particulares del momento angular  $\vec{J}$ .

Algunos ejemplos simples son:

$$\sum_i (3z_i^2 - r_i^2) = \alpha_J \langle r^2 \rangle [3J_z^2 - J(J+1)] = \alpha_J \langle r^2 \rangle O_2^0 \quad (\text{A.7})$$

$$\sum_i (x_i^2 - y_i^2) = \alpha_J \langle r^2 \rangle [J_x^2 - J_y^2] = \alpha_J \langle r^2 \rangle O_2^2 \quad (\text{A.8})$$

donde  $\alpha_J$  es una constante numérica dependiente del número cuántico orbital de los electrones.

Se define una función cartesiana  $f_{l\alpha}(x,y,z)$  que está relacionada con  $Z_{l\alpha}(x,y,z)$  a través de

$$Z_{\ell d} = \text{constante} \cdot f_{\ell d} / r^{\ell}$$

Estas funciones  $f_{\ell d}(x, y, z)$  (o más bien  $f_{\ell d}^c(x, y, z)$ ) así definidas, a su vez están relacionadas con los operadores equivalentes  $O_{\ell}^m$  mediante

$$\sum_i f_{\ell m}^c(x_i, y_i, z_i) = \Theta_{\ell} \langle r^{\ell} \rangle O_{\ell}^m \quad (\text{A.9})$$

donde  $\Theta_{\ell}$  es el factor multiplicativo;  $\Theta_2 = \alpha_J$ .

Algunos  $O_{\ell}^m$  más comunes están dados en la tabla VIII de la referencia [11].

Utilizando la notación de Stevens

$$-|e|/V(x, y, z) = \sum_{\ell m} A_{\ell}^m f_{\ell m}^c(x, y, z) \quad (\text{A.10})$$

donde  $A_{\ell}^m = \int_{\Omega} (-|e|) \cdot$  (factor numérico relacionado con  $Z_{\ell m}^c$ ) si se reemplaza (A.10) en (A.6) se tiene

$$\mathcal{H}_c = \sum_i \sum_{\ell m} A_{\ell}^m f_{\ell m}^c(x_i, y_i, z_i) \quad \sigma \quad (\text{A.11})$$

$$\mathcal{H}_c = \sum_{\ell m} [A_{\ell}^m \langle r^{\ell} \rangle \Theta_{\ell}] O_{\ell}^m \quad (\text{A.12})$$

## APENDICE B

```

C *** CASO: H P Z ( A X I A L ) ***
C
C ** ESTE PGM CALCULA <<JZ>> A PARTIR DE LAS EC. (3.13 ,14) ***
C
COMMON T , DD, RH, ETA,RJ
EXTERNAL TRAM
C ** DATOS PARA EFECTUAR EL <...> SOBRE EL ANGULO AL LLAMAR FUN. AREA
A=0.0
B=1.0
N=10
ETA=3.0
C ** MOMENTO ANGULAR TOTAL **
RJ=1.0
C ** PARAMETRO DE ANISOTROPIA **
DD=0.863*22.0
C ** TEMPERATURA **
DO 12 L=4,34,2
T=0.863*L/100
C ** SE INICIA EL CALCULO AUTO CONSISTENTE **
C ** COEFICIENTE ANTIFERROMAGNETICO ***
BETA=1.0
C ** CAMPO MAGNETICO EXTERNO **
RX=0.0
C ** COEFICIENTE FERROMAGNETICO **
DO 12 K=3,6,3
ALFA=1.0*K
WRITE(3,103)ALFA,BETA,RX,T
103 FORMAT(/1HO,5X,'ALFA=' ,F5.2,3X,'BETA=' ,F5.2,3X,'RX=' ,F7.2,
13X,'T=' ,E15.5)
SA=0.7
SB=1.0
C ** CAMPO MOLECULAR SUBRED A * * EC. (3.14A)
1 RH=RX+ALFA*SA-BETA*SB
SAI=AREA(A,B,N,TRAM)
IF(ABS(SAI-SA).LE.0.001) GO TO 2
SA=SAI
GO TO 1
C ** CAMPO MOLECULAR SUBRED B * * EC. (3.14B)
2 RH=RX+ALFA*SB-BETA*SAI
SB1=AREA(A,B,N,TRAM)
IF(ABS(SB1-SB).LE.0.001) GO TO 3
SB=SB1
GO TO 1
3 S=(SAI+SB1)/2.0
C ** SE ESCRIBEN LAS SOL. AUTO CONSISTENTES PARA <<JZA>> y <<JZB>> **
WRITE(3,102)SAI,SB1,S,DD
102 FORMAT(/1HD,5X,'SAI=' ,E15.5,5X,'SB1=' ,E15.5,5X,'S=' ,E15.5,5X,
1'DD=' ,E15.5)

```

```

12 CONTINUE
STOP
END
FUNCTION TRAM(X)
C ** DIAGONALIZACION DEL HAMILTONIANO E.C. (3.13) Y CALCULO DEL
C ** DEL PROMEDIO TREMICO ESTADISTICO DEL OPERADOR JZ **
COMMON T, DD,RH,ETA,RJ
DIMENSION A(6),D(3),2(3,3),C(3,3),R(9),AD(3)
M=6
NA=3
C ** PARAMETROS DEL MODELO AXIAL **
ALFA=0.0
BETA=0.0
GAMA=-DD*(3.0+ETA)/6.0
TRAC=0.0
PART=0.0
C MATRIZ SIMETRICA ** (HAMILTONIANO)
DO 301 J=1,M
301 A(J)=0.0
J=0
DO 302 K=1,NA
J=J+K
U=((BETA+ALFA)/2.0)*(RJ*(RJ+1.0)-(K-RJ-1)**2)
V=-RH*X*(RJ+1.0-K)+GAMA*(K-RJ-1.0)**2
302 A(J)+V+U
J=0
DO 303 K=2,NA
J=J+K
W=-RH*SQRT(1.0-X*X)/2.0
WW=SQRT(RJ*(RJ+1.0)-(K-RJ-1.0)*(K-RJ-2.0))
303 A(J)=W*WW
J=1
DO 304 K=3,NA
J=J+K
Y=(ALFA-BETA)/4.0
RAJ=RJ*(RJ+1.0)
YY=SQRT((RAJ-(K-RJ-1.0)*(K-RJ-2.0))*(RAJ-(K-RJ-2.0)*(K-RJ-3.0)))
304 A(J)=Y*YY
C ** DIAGONALIZACION **
C ** SUBROUTINA QUE DIAGONALIZA **
CALL EIGEN(A,R,3,0)
C ** MATRIZ DEL OPERADOR JZ **
DO 402 J=1,NA
402 C(J,J)=(RJ+1.0-J)*X
C(1,2)=SQRT(1.0-X*X)/SQRT(2.0)
C(2,1)=C(1,2)
C(2,3)=C(1,2)
C(3,2)=C(1,2)
C(1,3)=0.0
C(3,1)=0.0

```

```

C  ** AUTOVECTORES **
      DO 502  K=1,NA
      DO 501  I=1,NA
501  2(I,K)=R(NA*(K-1)+I)
502  CONTINUE
C  ** AUTOVALORES **
      L=0
      DO 601  M=1,NA
      L=L+M
601  D(M)=A(L)
C  CALCULO FINAL
C  ** CALCULO DEL PROMEDIO TERMICO ESTADISTICO **
      DO 701  K=1,NA
      UP=D(K)/T
      IF(UP.GT.170.0)GO TO 1000
      RUP=-(UO+70.0)
      AB=EXP(RUP)
      GO TO 1001
1000 AB=0.0
1001 DO 702  J=1,NA
      DO 702  I=1,NA
C  ** TRAZA **
702  TRAC=TRAC+Z(I,K)*C(I,J)*Z(J,K)*AB
C  ** FUNCION-PARTICION **
701  PART=PART+AB
      TRAM=TRAC/PART
      RETURN
      END

C  ** SUBROUTINA DE INTEGRACION **
      FUNCTION AREA(A,B,N,FINT)
      M=2*(N/2+1)
      FIX=M
      L=M/2-1
      HH=(B-A)/FIX
      AREA=FINT(A)+FINT(B)
      TT=A+HH
      S1=FINT(TT)
      S2=0.0
      DO I      I=1,L
      TT=TT+HH
      S2=S2+FINT(TT)
      TT=TT+HH
1  S1=S1+FINT(TT)
      AREA=AREA+4.0*S1+2.0*S2)*HH/3.0
      RETURN
      END

```