

MODELO DE BLUME-CAPEL EN LA FASE
ANTIFERROMAGNÉTICA DEL SISTEMA FeMnAl

JUAN MANUEL OROZCO HENAO

UNIVERSIDAD DEL VALLE
FACULTAD DE CIENCIAS NATURALES Y EXACTAS
PROGRAMA ACADÉMICO DE FÍSICA
SANTIAGO DE CALI
FEBRERO DE 2013

MODELO DE BLUME-CAPEL EN LA FASE ANTIFERROMAGNÉTICA DEL SISTEMA FeMnAl

JUAN MANUEL OROZCO HENAO

Trabajo de grado presentado a la UNIVERSIDAD DEL VALLE como requisito
parcial para optar al título de FÍSICO

Director: Diego Peña Lara

UNIVERSIDAD DEL VALLE
FACULTAD DE CIENCIAS NATURALES Y EXACTAS
PROGRAMA ACADÉMICO DE FÍSICA
SANTIAGO DE CALI
FEBRERO DE 2013

UNIVERSIDAD DEL VALLE
FACULTAD DE CIENCIAS NATURALES Y EXACTAS
PROGRAMA ACADÉMICO DE FÍSICA

JUAN MANUEL OROZCO HENAO

**MODELO DE BLUME-CAPEL EN LA FASE
ANTIFERROMAGNÉTICA DEL SISTEMA FeMnAl**

Temas y palabras claves

- Modelo de Blume-Capel aleatorio.
- Sistema ternario FeMnAl .
- Diagrama de fases magnéticas.
- Grupo de renormalización de campo medio extendido.

Agradecimientos

A mis padres por todo, gracias.

Al profesor Diego Peña por su apoyo incondicional y permanente guía desde el mismo momento en que le expresé mi interés por su trabajo.

Al profesor Rubén Vargas Z por la oportunidad brindada al permitirme hacer parte del grupo de Transiciones de Fase en Sistemas no Metálicos, su disposición y afecto.

Al profesor Germán Pérez por sus valiosos aportes a éste trabajo.

A la Universidad del Valle y al Departamento de Física, por la formación académica de excelente calidad durante este proceso.

A todos los profesores y amigos que entre charlas y risas hicieron de ésta una grata experiencia.

A Fernando y Liliana

Índice general

Resumen	x
Abstract	xii
1. Introducción	1
2. Sistemas magnéticos	5
2.1. Generalidades	5
2.2. Transiciones de fases en sistemas magnéticos	6
2.3. Sistema magnético ternario FeMnAl	8
2.4. Campo cristalino	9
3. Modelos teóricos	11
3.1. Generalidades	11
3.2. Modelo de Ising	12
3.3. Modelo de Ising generalizado	14
3.4. Modelo de Blume-Capel aleatorio	15

4. Métodos de aproximación	16
4.1. Generalidades	16
4.1.1. Método de Newton-Raphson	17
4.2. Aproximación de pares	17
4.3. Método de grupo de renormalización de campo medio extendido	19
5. Aplicación al sistema magnético ternario FeAlMn	22
5.1. Generalidades	22
5.2. Resultados	23
6. Conclusiones	27
A. Ecuaciones aproximación de pares para el modelo Ising	32
B. Ecuaciones Aproximación de Pares para el modelo de Blume-Capel	34
C. Ecuaciones EMFRG	36

Índice de figuras

2.1. Ordenamiento magnético	6
2.2. Transición de segundo orden	7
2.3. Campo cristalino	10
3.1. Curva de Beth-Slater	12
4.1. Bloques de espines	20
5.1. $\bar{H}$ vs q para $p = 0,4$	23
5.2. $\bar{H}$ vs q para $p = 0,5$ y $p = 0,6$	25
5.3. Temperatura en función de la concentración de Mn (x) para una concentración de aluminio $q = 0,05$	26

Índice de cuadros

5.1. Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,4$	24
5.2. Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,5$	25
5.3. Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,6$	26

Resumen

Las propiedades magnéticas de la aleación FeMnAl se han podido explicar desde el punto de vista teórico mediante modelos de Ising diluido y competitivo, sin embargo se presentan algunas discrepancias con los datos experimentales. En el presente trabajo se realizan ajustes de campo hiperfino medio reducido en función de la concentración de aluminio para diferentes concentraciones de hierro y un diagrama de fases de la temperatura como función de la concentración de manganeso para una concentración fija de aluminio utilizando un modelo, que a diferencia de los antes mencionados, incluye el efecto de la anisotropía magnética en este sistema, obteniéndose un mejor ajuste con los datos experimentales.

El modelo utilizado fue el de Blume-Capel de espín 1, donde los valores propios del operador espín se asumieron como: +1 para la interacción ferromagnética del Fe, -1 para la antiferromagnética del Mn y 0 actúa como diluidor magnético que en este caso corresponde al Al. La probabilidad que se empleó tiene en cuenta la interacción FeFe (p^2), MnMn (x^2), FeMn ($2px$) y para el diluidor ($q(2-q)$), donde $p+q+x = 1$. La aproximación

para resolver el modelo fue la aproximación de pares, basada en la desigualdad de Bogoliubov para la energía libre, para obtener el comportamiento del campo hiperfino medio reducido como función de la concentración de aluminio; y la aproximación de grupo de renormalización de campo medio extendido para el diagrama de fases de la temperatura como función de la concentración de manganeso.

Abstract

The magnetic properties of FeMnAl alloy have been studied by considering diluted and competitive Ising models, however there are some discrepancies with the experimental data. In the present work reduced hyperfine field as a function of aluminum concentration for different iron concentrations and a phase diagram of the temperature as a function of manganese concentration for a fixed concentration of aluminum are obtained by using a model that includes the effect of the magnetic anisotropy, which is in a much better accord with the experimental data.

Spin 1 Blume-Capel was used, where the values of the spin operator were assumed as: +1 for ferromagnetic interaction (Fe), -1 for the antiferromagnetic one (Mn), and 0 took as magnetic diluter, which in this case corresponds to Al. The probability used takes into account the FeFe (p^2) interaction, MnMn (x^2), FeMn ($2px$) and the magnetic holes ($q(2 - q)$), where $p + q + x = 1$. The approach to solve the model was based on Bogoliubov inequality for the free energy to obtain the behavior of the reduced hyperfine mean field as a function of the concentration of aluminum, and the extended mean field

renormalization group for the phase diagram of the temperature as a function of the concentration of manganese.

CAPÍTULO 1

Introducción

Históricamente los *fenómenos magnéticos* fueron conocidos por los griegos, empezando con Tales de Mileto con el descubrimiento de cierta «piedra» que atraía al hierro, Sócrates y Platón hablan de un mineral de color negro y su propiedad que puede transmitirse al hierro. Tanto la «piedra» como el mineral de color negro se le conocían como PIEDRA DE IMÁN o MAGNETITA y se le atribuía muchas propiedades: Curaba el reumatismo, la gota y que permitía hablar con los dioses. Tanto Tales como Sócrates y Platón describen los efectos magnéticos, sin embargo, Empédocles trata de encontrar una explicación a este fenómeno y responder a la pregunta ¿por qué atrae el hierro al imán? Para él, el hierro es «empujado» hacia el imán porque produce emanaciones y porque el imán es una sustancia porosa, de forma que el tamaño de sus poros corresponde al de las emanaciones del hierro, así éste es arrastrado tras las emanaciones y atraído. Una explicación muy similar fue recogida por Lucrecio. Por tanto, desde hace un buen tiempo, se ha tratado

de dar una explicación coherente a los fenómenos magnéticos.

Hoy en día se conoce que cuando un material es sometido a la acción de un *campo magnético externo* adquiere una *magnetización* paralela al campo cuya intensidad es proporcional a la magnitud de éste y se denomina PARAMAGNÉTICO; si la magnetización es alta, incluso en ausencia del campo magnético externo, el material se denomina *ferromagnético*. P. Weiss defendió el concepto bien establecido en ese momento el cual estaba apoyado en datos experimentales: La magnetización en los cristales era siempre proporcional y en la dirección del campo aplicado. Este descubrimiento fue realizado durante el estudio de la magnetita para mostrar que aunque ésta cristaliza en forma cúbica, presenta una magnetización que normalmente no se encuentra en la dirección del campo. Esta *anisotropía* en comparación con la *isotropía* que presenta los materiales paramagnéticos, condujeron a Weiss intentar correlacionar la estructura cristalina con las propiedades magnéticas.

P. Curie, estudiando las propiedades térmicas de los materiales magnéticos, estableció que la *susceptibilidad magnética* de un paramagnético depende del inverso de la temperatura. También halló, sólo para los ferromagnéticos, un descenso de la magnetización hasta una temperatura que llegaba a un valor crítico [T_c (TEMPERATURA DE CURIE)], donde la magnetización se hace igual a cero y, por encima de T_c , los *ferromagnetos* se comportan como materiales paramagnéticos.

En un intento de explicar este fenómeno, Weiss asumió que las interacciones entre las moléculas magnéticas se podrían descubrir empíricamente y, por tanto, introdujo un CAMPO MOLECULAR sin intentar describir las leyes microscópicas. Este campo actuaría sobre cada molécula como un campo externo y sería proporcional a la magnetización y al tipo de material. La mayoría de los ferromagnetos obedecen este comportamiento y se denomina la LEY CURIE-WEISS. También propuso que su campo tenía diferentes direcciones en algunos pedazos del sólido, para responder la pregunta ¿por qué no es el hierro espontáneamente ferromagnético? Barkhausen probó la hipótesis de Weiss por medio de amplificadores electrónicos; oyó los «clics» cuando un campo externo obliga a los dominios de Weiss a alinearse. Este comportamiento es irreversible lo que explica el

fenómeno de *histéresis*. Medidas de la razón giromagnética probaron además que éste no es magnetismo atómico o molecular, sino que sólo el *espín* electrónico participa de él.

Así, si una partícula cargada gira alrededor de un eje que pase por ella, se asocia un MOMENTO MAGNÉTICO INTRÍNSECO o ESPÍN, el cual es, en parte, responsable de los fenómenos magnéticos en la materia. Cuando un conjunto de estos espines por unidad de volumen se alinea en la misma dirección, se obtiene una MAGNETIZACIÓN macroscópica que se puede medir en función de la temperatura.

El modelo más simple de describir teóricamente el fenómeno magnético se denomina MODELO DE ISING. En este modelo se considera N átomos de espín $1/2$ (mecánico cuántico) en presencia de un campo magnético $\mathbf{H}$ en la dirección z ; la energía en conjunto es mínima cuando los espines vecinos están alineados. Las diferentes separaciones espaciales implican diferentes energías electrostáticas de interacción y la ENERGÍA DE INTERCAMBIO (J), mide esta diferencia. Esta energía es muy grande ($J \gg 1$ eV) comparada con la energía asociada a la interacción magnética entre los espines vecinos (10^{-4} eV). Sin embargo, como la fuerza magnéticas entre dos espines decae rápidamente (del orden de r^{-3} , siendo r la distancia entre los espines), el efecto del intercambio ocurre a muy corto rango y, por tanto, la restricción a interacción entre vecinos cercanos es bastante realista. Por tanto, las interacciones magnéticas han sido desde los puntos de vista experimental, teórico como de simulación en el estudio de materiales que tienen una amplia aplicación en la industria. En particular la aleación ternaria FeMnAl presenta varias fases magnéticas: *Ferromagnética*, *antiferromagnética*, *paramagnética*, *vidrio de espín* y *vidrio de espín reentrante* en función de la estequiometría y la temperatura.

Tanto las propiedades magnéticas como estructurales del FeMnAl han sido ampliamente estudiadas por espectroscopia Mössbauer, difracción de rayos X y susceptibilidad magnética [1 – 4]. Los resultados experimentales de esta aleación exhiben un comportamiento antiferromagnético, con un campo hiperfino casi constante ($H = 26$ kOe), en el intervalo de composición $0,5 < p < 0,65$ y $0 < q < 0,075$, donde p, q y x son, respectivamente, las concentraciones de Fe, Al y Mn, con la condición $p + q + x = 1$.

Desde el punto de vista teórico se ha podido explicar algunas propiedades magnéti-

cas utilizado el modelo de Ising con dilución por sitio o por enlace [1, 5, 6], el cual es solucionado por la desigualdad de Bogoliubov para la energía libre en la aproximación de pares [7], el grupo de renormalización de campo medio [8 – 10], entre otros, donde se han obtenido ajustes buenos con los datos experimentales reportados, pero quedan algunas discrepancias.

El presente trabajo tiene como objetivo ajustar los datos experimentales del *campo hiperfino reducido* como función de la concentración de Al a temperatura ambiente para diferentes concentraciones de Fe y obtener el diagrama de fase de la aleación FeAlMn para diferentes concentraciones de Mn, de manera que se reduzcan las discrepancias debidas al modelo de Ising. Para alcanzar el objetivo, se tendrá en cuenta la anisotropía magnética que presenta la aleación ternaria FeMnAl mediante el *modelo de Blume-Capel* [11, 12], el cual emplea el concepto de *campo cristalino* que se presenta en los iones del grupo del hierro ya que éstos tienen configuración electrónica 3d, siendo esta capa la responsable del paramagnetismo. ésta experimenta un intenso campo eléctrico no homogéneo producido por los iones vecinos. Este campo eléctrico no homogéneo se denomina CAMPO CRISTALINO [13]. Para este modelo se utiliza un principio variacional basado en la desigualdad de Bogoliubov para la energía libre empleado la teoría de la aproximación de pares y la aproximación extendida del grupo de renormalización. La densidad de probabilidad que se tendrá en cuenta es la de enlaces aleatorios.

La presentación del trabajo se encuentra dividida de la siguiente forma:

- En el capítulo 2 se introduce brevemente la teoría de los sistemas magnéticos y el sistema ternario FeMnAl.
- En los capítulos 3 y 4 se describen los modelos teóricos utilizados: Ising y Blume-Capel, junto con los métodos de solución: Aproximación de pares, método de Newton-Raphson y grupo de renormalización extendido.
- En el capítulo 5 se presenta la discusión de los resultados obtenidos.
- En el capítulo 6 Se dan las conclusiones y futuros trabajos.

CAPÍTULO 2

Sistemas magnéticos

2.1. Generalidades

Por un SISTEMA MAGNÉTICO se entiende un conjunto de dipolos magnéticos microscópicos. Las interacciones entre estos dipolos dan origen al ordenamiento magnético: Si aquellas tienden a alinearlos paralelamente, se tiene el FERROMAGNETISMO, pero si se tiene el caso opuesto (antiparalelos), es el ANTIFERROMAGNETISMO, como se ilustra en la figura 2.2. A altas temperaturas, estas interacciones son despreciables con respecto a la interacción térmica la cual es responsable que los dipolos apunten en direcciones aleatorias teniéndose un desordenamiento magnético conocido como PARAMAGNETISMO; por tanto, cuando la temperatura de un sistema magnético se incrementa, se puede pasar de una fase ordenada (ferro, antiferro o de otro tipo) a una fase termodinámicamente desordenada (paramagnetismo) y este cambio se conoce como una TRANSICIÓN DE FASES.

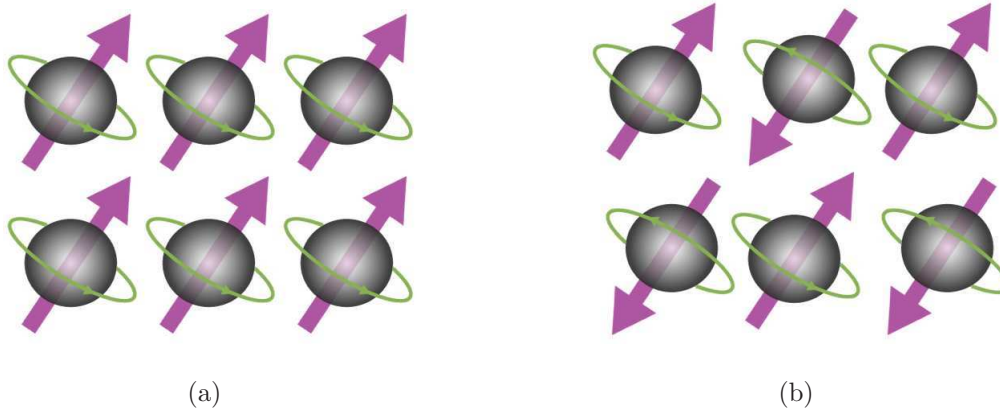


Figura 2.1: (a) Alineamiento paralelo de dipolos magnéticos microscópicos (ferromagnetismo). (b) Alineamiento antiparalelo (antiferromagnetismo).

2.2. Transiciones de fases en sistemas magnéticos

Físicamente, se da una transición de fase cuando una función termodinámica adecuada se comporta de manera no suave al variar uno de sus parámetros (como la temperatura). Esta variación puede ser de dos tipos:

1. Una función termodinámica presenta un salto en un valor específico de un parámetro. Se dice que hay una TRANSICIÓN DE FASE DISCONTINUA O TRANSICIÓN DE PRIMER ORDEN.
2. Todas las funciones termodinámicas son continuas; sin embargo, alguna tiene una derivada que no es suave, e. d., la derivada tiene un salto o diverge al infinito. En este caso, se dice que hay una TRANSICIÓN CONTINUA O TRANSICIÓN DE SEGUNDO ORDEN, como se puede observar en la figura 2.2

Para el caso magnético, la magnetización M puede verse como

$$M = -\left(\frac{\partial \mathcal{F}}{\partial H}\right)_T \quad (2.1)$$

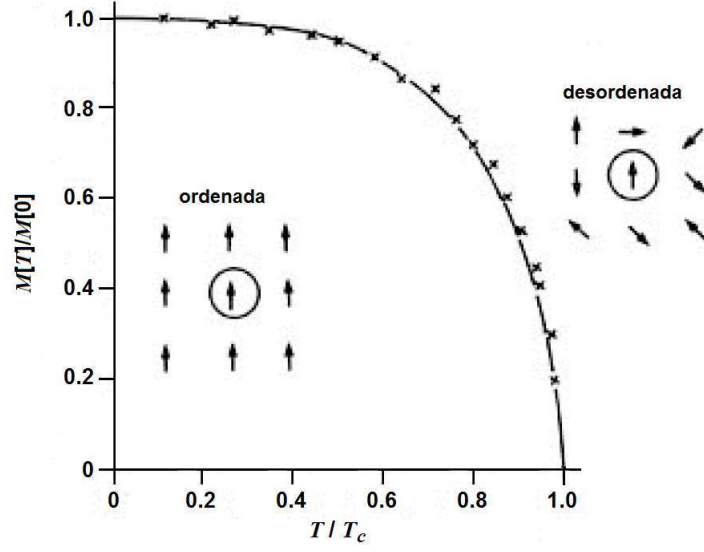


Figura 2.2: La magnetización en la fase ordenada es diferente de cero y tiende a cero en la temperatura de Curie T_c .

siendo $\mathcal{F}[T, H]$ la energía libre y H el campo magnético externo que se aplica al sistema. Para el caso $H = 0$, la figura 2.2 ilustra el comportamiento de M como función de T , donde se tiene una fase ordenada (presente a bajas temperaturas) y otra desordenada (presente a altas temperaturas).

En estas transiciones de fases, es de gran utilidad considerar un operador cuya media termodinámica se anula en la fase desordenada y sea diferente de cero en la fase ordenada. La media hecha sobre un ensamble apropiado de este operador es el PARÁMETRO DE ORDEN. Si el parámetro de orden cambia discontinuamente a lo largo de la frontera de fases, la transición de fases es de PRIMER ORDEN, pero si el parámetro de orden es una función continua, es decir, varía suavemente al pasar por la frontera, la transición de fases es de SEGUNDO ORDEN.

La función termodinámica para el sistema magnético se describe por

$$\mathcal{F}[T, H] = -k_B T \log[Z[T, H]] \quad (2.2)$$

siendo T la temperatura absoluta, k_B la constante de Boltzmann y Z la función de partición, definida como

$$Z[T, H] = \sum_S \exp[-\beta E_m[H, S]] \quad (2.3)$$

con $\beta \equiv (k_B T)^{-1}$ el inverso de la temperatura y E_m la energía magnética dado por

$$E_m[H, S] = -\mu H \sigma \quad (2.4)$$

siendo μ el momento magnético y S los valores propios del operador espín σ . Para el caso de $S = \pm 1$, el valor de M es:

$$M = \mu \tanh \left[\frac{\mu H}{k_B T} \right] \quad (2.5)$$

Si $\beta \mu H \gg 1$, esto es, campos externos grandes, se tiene que $M \rightarrow \mu$, de tal forma que todos los espines tienden a alinearse con el campo aplicado. Por el contrario, para campos pequeños, $\beta \mu H \ll 1$, se tiene

$$M = \frac{\mu^2}{k_B T} H, \quad (2.6)$$

la magnetización es proporcional al campo cuando éste es pequeño.

2.3. Sistema magnético ternario FeMnAl

Las aleaciones de FeMnAl son un interesante sistema para el estudio desde diferentes puntos de vista: teórico, experimental y tecnológico. Tecnológicamente han sido estudiadas ampliamente para el mejoramiento y desarrollo de sus propiedades mecánicas y magnéticas así como sus características para ser empleadas en aplicaciones de corrosión y de aceros inoxidables convencionales [14, 15]. Experimentalmente exhiben una gran variedad de fases magnéticas dependiendo de la composición de la aleación y tratamiento térmico; se reportan las fases ferromagnética (F), antiferromagnética (AF), paramagnética (P), vidrio de espín (VE) y vidrio de espín reentrante (VER) [16, 17]. Teóricamente se ha tratado de describir sus propiedades considerando dos aspectos fundamentales: La distribución aleatoria de los átomos constituyentes y la competencia en la interacción de los primeros vecinos [1, 5, 6].

Los trabajos teóricos han utilizado el modelo de Ising (usando la desigualdad de Bogoulibov), para obtener el diagrama de fases a temperatura ambiente; se encontró la fase F para concentraciones altas de Fe y la fase P para concentraciones bajas de Fe [1]. Para este caso, los átomos de Al y Mn se consideraron como diluidores magnéticos. Justar los datos experimentales del campo hiperfino medio reducido como función de la concentración de aluminio, hierro y manganeso. Con un modelo de Ising diluido (usando el grupo de renormalización de campo medio), se propuso un diagrama de fases teórico en función de la concentración de Fe para diferentes contenidos de Al. En este caso, Mn se considera AF, Fe como F y Al como un diluidor magnético. Se postularon las fases VE Y VER [8] y después se evidenciaron experimentalmente [16, 18]. En general se ha utilizado el modelo de Ising aleatorio y diluido para explicar el comportamiento magnético donde se asume que los átomos Al se comportan como un agente diluidor (hueco magnético), mientras que los Fe y Mn hacen las veces de sitios magnético y antiferromagnético, respectivamente.

Aunque el modelo de Ising se ajusta bien a los datos experimentales del comportamiento del campo hiperfino reducido medio como función de las concentraciones de Fe, Mn y Al, se evidencian discrepancias sutiles, p. ej., la línea de ajuste teórica no pasa por casi todos los puntos experimentales. Para los diagramas de fases, se ajusta bien cuando se pasa de la fase F a la P, sin embargo, al tratar de ajustar la línea de transición VE a la P y de VER a la F, los resultados no son los esperados. En parte se debe a que el sistema ternario FeMnAl presenta anisotropía magnética que no es considerada en el modelo de Ising. Para tener en cuenta este tipo de anisotropía, se debe recurrir a otro tipo de modelo, como el de Blume-Capel, donde hay un término de campo cristalino responsable de la anisotropía magnética.

2.4. Campo cristalino

La teoría del campo cristalino está basada en la idea de que existe una interacción de naturaleza puramente electrostática entre el ion metálico central y los átomos (o moléculas)

las) que lo rodean formando la unidad básica de lo que se ha dado en llamar un ion complejo. esta teoría fue originalmente desarrollada por van Vleck [13] para sólidos establece que si se tiene un metal aislado, sus 5 orbitales «d» (d_{xy} , d_{yz} , d_{xz} , $d_{x^2-y^2}$ y d_x^2) son degenerados, es decir, tienen la misma energía. Cuando el ligante¹ se aproxima al metal, sus orbitales d son perturbados por la carga negativa del ligante. La energía del ion más los ligantes es menor cuando los ligantes son atraídos hacia el metal, pero hay también una repulsión entre los electrones externos del metal y las cargas negativas de los ligantes. Esta interacción se conoce como CAMPO CRISTALINO, se incrementa la energía de los electrones d , como se observa en la figura 2.3.

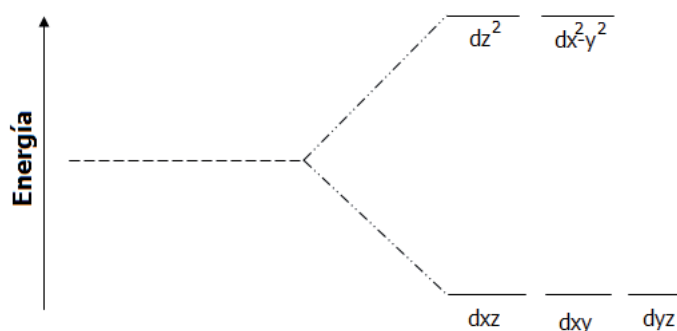


Figura 2.3: Diagrama de separación de energías de los orbitales d , a la izquierda el orbital d degenerado y, a la derecha, la separación en dos grupos con una diferencia de energía de interacción Δ o campo cristalino.

¹Un metal tiende a perder electrones en una reacción química pero no se hayan aislados, interactúan con aniones asociándose covalentemente al centro metálico; los iones o moléculas que rodean al ion metálico se conocen ligantes.

CAPÍTULO 3

Modelos teóricos

3.1. Generalidades

Para justificar teóricamente el orden magnético y estar de acuerdo con los resultados experimentales, se introduce la existencia de una interacción no clásica entre los momentos magnéticos dentro del sistema. La INTERACCIÓN DE INTERCAMBIO es una consecuencia de la naturaleza cuántica del sistema. Cuando las funciones de onda de dos átomos se solapan, debe existir una correlación entre los espines de los electrones de los dos átomos ya que pueden intercambiar sus papeles. Normalmente, el sistema tiene menor energía si los espines son antiparalelos. Sólo en los materiales ferromagnéticos, la orientación paralela tiene menor energía. La magnitud de la interacción de intercambio depende del grado de solapamiento de las funciones de onda de los electrones. El campo molecular de Weiss es una representación clásica aproximada de la interacción de intercambio en la mecánica

cuántica.

La energía asociada a la interacción de intercambio entre dos átomos i y j de espines σ_i y σ_j es:

$$\varepsilon_{ij} = -2J\sigma_i \cdot \sigma_j \quad (3.1)$$

donde J es la integral de intercambio y relaciona el solapamiento de las funciones de onda de los átomos i y j . En los átomos de Fe, Co y Ni, la integral de intercambio tiene un valor positivo. Para que J tenga un valor positivo y haya un alineamiento de espines $\uparrow\uparrow$, la relación entre el espaciado atómico y el diámetro del orbital $3d$ debe estar en el rango entre 1,4 a 2,7 como se muestra en la figura 3.1 [19].

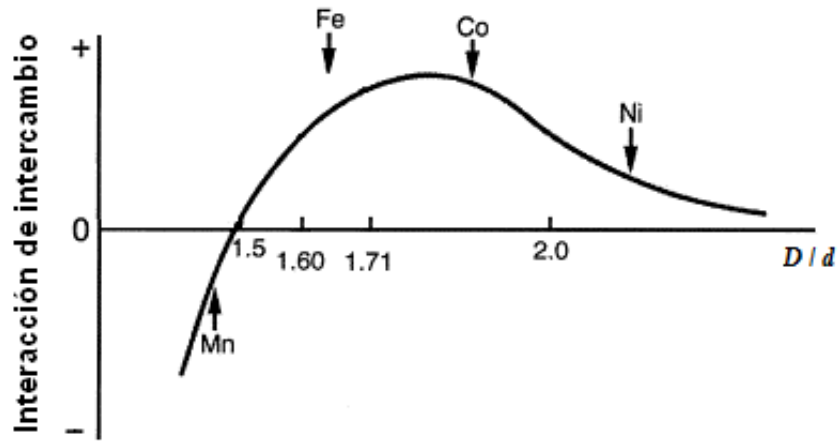


Figura 3.1: Valor de la integral de intercambio en función de la razón D/d , donde D es la separación atómica y d el diámetro del orbital $3d$.

3.2. Modelo de Ising

Cualquier modelo que se proponga para describir el comportamiento magnético, debe incorporar la energía de interacción de intercambio. La descripción teórica más simple es proporcionada por el primer modelo que predijo la existencia de una transición de fases y se denomina MODELO DE ISING [20]. En este modelo se considera una red de N sitios

donde en cada uno de ellos está ocupado por un átomo cuya representación mecánico-cuántica es una flecha que apunta para arriba o para abajo, en presencia de un campo magnético externo H en la dirección z . En esta representación, los espines modelan los electrones sin pareja en los átomos que tienen momentos magnéticos, como el hierro. La interacción de intercambio tiende a alinear los espines vecinos en la red. Denotando por σ_i el valor del espín en el sitio i , que puede tomar los valores $+1$ y -1 , se tiene hamiltoniano de Ising:

$$\mathcal{H}_I[\sigma] = - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sigma_i \sigma_j + H \sum_i \sigma_i \quad (3.2)$$

donde la nomenclatura $\langle ij \rangle$ se refiere a la suma sobre los pares atómicos de vecinos más cercanos. El término $\sigma_i \sigma_j$ mide la energía magnética asociada a pares de espines cada uno de los cuales crea un campo $\mathbf{H}_i$, por tanto la energía asociada a cada par es proporcional a $\sum \sigma_i \sigma_j$ y la constante de proporcionalidad J_{ij} se denomina constante de energía de intercambio entre espines.

El primer término de la expresión (3.2) muestra que la energía es mínima cuando los espines vecinos están alineados. Las diferentes separaciones espaciales implican diferentes energías electrostáticas de interacción y, por tanto, la energía de intercambio, mide esta diferencia. Como J , de origen electrostático y del orden de 1 eV, es mayor que la energía asociada con la interacción magnética entre los espines vecinos, del orden de 10^4 eV, además que la fuerza magnética entre dos espines vecinos decae como r^3 , siendo r la distancia entre los espines, se tiene que el efecto del intercambio ocurre a muy corto rango, y por ende, la restricción a interacción entre vecinos cercanos es bastante realista.

Este modelo con $\sigma = 1/2$ se ha utilizado para el ajuste teórico del comportamiento del campo hiperfino reducido medio como una función de las concentraciones de Al, Mn o Fe para las aleaciones de FeAlMn, así como la transición de vidrio de espín para las aleaciones FeNiMn. Los resultados obtenidos son buenos pero hay ciertas discrepancias porque no se ha tenido en cuenta la anisotropía magnética presente en estos sistemas magnéticos y que no se tiene en cuenta en el modelo de Ising. En estos estudios, se consideró una distribución de probabilidad $P[J_{ij}]$ la cual explica la transición continua que exhiben estas

aleaciones en la fase desordenada [1, 5, 6].

Como las propiedades termodinámicas de un sistema magnético están sujetas a interacciones electrostáticas debido a las cargas vecinas, se conoce que estas interacciones, en una primera aproximación, se puede simular mediante la introducción de un campo cristalino Δ [13]. La simetría y la intensidad de Δ afecta los niveles electrónicos del sistema. Es decir, Δ reduce la degeneración (ya que no hay orientación preferida del momento angular y, por lo tanto, ninguna orientación preferida del momento magnético debido a la rotación) de los niveles electrónicos de dos espines correlacionados.

Para poder explicar las discrepancias del comportamiento del campo hiperfino reducido medio como una función de las concentraciones de Al, Mn o Fe para las aleaciones de FeAlMn, así como la transición de vidrio de espín para las aleaciones FeNiMn, se intentará usar un modelo tipo Ising generalizado con $\sigma = 1$.

3.3. Modelo de Ising generalizado

Un modelo de Ising de espín general σ está dado por el siguiente hamiltoniano:

$$\mathcal{H}_{BC}[\sigma] = - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \sigma_i \sigma_j + \sum_i \Delta_i \sigma_i^2 \quad (3.3)$$

donde la primera sumatoria corre sobre todos los pares de primeros vecinos para N sitios reticulares, $J > 0$ es la constante de acoplamiento, σ_i los espines con valores $-S, -S + 1, \dots, S - 1, S$ y Δ es el campo cristalino.

Para el caso $\sigma = 1$, el hamiltoniano (3.3) corresponde al modelo de Blume-Capel [11, 12], originalmente propuesto por M. Blume en el estudio de las transiciones de fases de primer y segundo orden del sistema UO_2 y H. Capel en el estudio de un sistema de iones trivalentes con campo de desdoblamiento cero o campo cristalino e interacciones de intercambio entre los primeros vecinos. Como este modelo no tiene una solución exacta para dimensiones $d \geq 2$, se ha estudiado extensivamente en esquemas como la aproximación

de campo medio, simulaciones Monte Carlo [21], métodos de grupo de renormalización de campo medio [22], entre otros.

Este modelo presenta un diagrama de fases en el plano de temperatura como función del campo cristalino dos regiones (F y P) donde sus transiciones de fases cambian de una de segundo orden a otra de primer orden en un punto especial que se denomina PUNTO TRICRÍTICO.

3.4. Modelo de Blume-Capel aleatorio

La aleatoriedad en este modelo se logra asignando una distribución de probabilidad en las interacciones de intercambio $P[J_{ij}]$. La propuesta en este trabajo es considerar la siguiente distribución:

$$P[J_{ij}] = p^2\delta[J_{ij} - J] + x^2\delta[J_{ij} + \alpha J] + 2px\delta[J_{ij} - \gamma J] + q(2 - q)\delta[J_{ij}] \quad (3.4)$$

donde p^2 es la probabilidad de tener dos átomos de Fe con interacción J , x^2 la probabilidad de que dos átomos de Mn tengan interacción αJ , $2px$ la probabilidad entre dos átomos FeMn con interacción γJ y $q(2 - q)$ representa todos los enlaces no magnéticos con Al (FeAl, MnAl y AlAl), dados por $q^2 + 2qp + 2qx = q(2 - q)$. Aquí p, x y q son las concentraciones de Fe, Mn y Al, respectivamente; $p + q + x = 1$ y α, γ son parámetros de ajuste.

CAPÍTULO 4

Métodos de aproximación

4.1. Generalidades

Los modelos físicos para describir el comportamiento magnético, en general, no tienen una solución exacta en una y, menos en dos y tres dimensiones, por ende, es necesario recurrir a métodos numéricos. Éstos constituyen procedimientos alternativos donde hay dificultad de utilizar métodos analíticos tradicionales, siendo la única opción posible de solución. Sus resultados son aproximaciones de un «verdadero» valor que asume(n) la(s) variable(s) de interés; la repetición consistente de la técnica, que se denomina ITERACIONES, es lo que permite acercarse cada vez más a la solución buscada.

4.1.1. Método de Newton-Raphson

La técnica numérica utilizada para la solución de los modelos de Ising y Blume-Capel se basó en el MÉTODO DE NEWTON-RAPHSON. Este es un método iterativo abierto que nos permite aproximar la solución de una ecuación del tipo $f[x] = 0$, con la función $f[x]$ derivable sobre un intervalo cerrado $[a, b]$, e. .d, $f[x]$ tiene una pendiente definida y una única línea tangente en cada punto en $[a, b]$, sin embargo su convergencia global no está garantizada (depende de $f[x]$).

Se parte de una estimación inicial de la solución x_0 y se construye una sucesión de aproximaciones de forma recurrente mediante la fórmula:

$$x_{i+1} = x_i - \frac{f[x_i]}{f'[x_i]}$$

4.2. Aproximación de pares

Para obtener los diagramas de fases del modelo de Blume-Capel de espín $\sigma = 1$ dado por el hamiltoniano (3.3) se empleará la APROXIMACIÓN DE PARES basada en la desigualdad de Bogoliubov para la energía libre [7]:

$$F \leq \Phi \equiv F_0 + \langle \mathcal{H} - \mathcal{H}_0 \rangle_0, \quad (4.1)$$

donde F es la energía libre del hamiltoniano $\mathcal{H}$ dado por la expresión (3.3), F_0 es la energía libre de un hamiltoniano de prueba $\mathcal{H}_0$ (convenientemente parametrizado) y $\langle \cdots \rangle_0$ indica la media termodinámica sobre un ensamble definido por $\mathcal{H}_0$. En este caso, el hamiltoniano $\mathcal{H}_0$ es

$$\mathcal{H}_0 = \sum_{si} \mathcal{H}_s + \sum_{ps} \mathcal{H}_p, \quad (4.2)$$

con $\mathcal{H}_s$ el hamiltoniano para un espín aislado, dado por

$$\mathcal{H}_s = -\gamma_s \sigma_1 - \Gamma_s \sigma_1^2 + \Delta \sigma_1^2, \quad (4.3)$$

y $\mathcal{H}_p$ el hamiltoniano para un par de espines que se encuentra como

$$\mathcal{H}_p = -\gamma_p(\sigma_1 + \sigma_2) - \Gamma_p(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - J\sigma_1\sigma_2 + \Delta(\sigma_1^2 + \sigma_2^2). \quad (4.4)$$

La primera suma en la ec. (4.2) corre sobre los $N - 2n$ espines aislados (*si*) y la segunda sobre los n pares de espines (*ps*) desconexos, siendo N el número total de espines. Los parámetros variacionales $\gamma_s, \Gamma_s, \gamma_p$ y Γ_p se determinan por la condición de minimización de la energía libre [7].

La energía libre F_0 en este caso está dada por:

$$\begin{aligned} f_0 \equiv -\frac{\beta F_0}{N} &= \ln[\text{Tr}\rho_0] \\ &= \frac{z}{2} \ln[\text{Tr}\rho_p] + (1 - z) \ln[\text{Tr}\rho_s] - \\ &\quad (1 - z)\{\gamma_s\langle\sigma\rangle_0 + \Gamma_s\langle\sigma^2\rangle_0\} - z\{\gamma_p\langle\sigma\rangle_0 + \Gamma_p\langle\sigma^2\rangle_0\} \end{aligned}$$

donde z es el número de coordinación de la red y las matrices densidades ρ_s y ρ_p están dadas por:

$$\rho_s = \exp[-\beta\mathcal{H}_s], \quad (4.5)$$

$$\rho_p = \exp[-\beta\mathcal{H}_p] \quad (4.6)$$

Se asume ahora que los valores medios $m = \langle\sigma\rangle$ y $q = \langle\sigma^2\rangle$ se obtienen de los hamiltonianos $\mathcal{H}_s$ y $\mathcal{H}_p$, esto es,

$$m = \text{Tr}\rho_s\sigma = \frac{1}{2}\text{Tr}\rho_p\sigma, \quad (4.7)$$

$$q = \text{Tr}\rho_s\sigma^2 = \frac{1}{2}\text{Tr}\rho_p\sigma^2 \quad (4.8)$$

La minimización de (4.5) en función de los parámetros variacionales $\gamma_s, \Gamma_s, \gamma_p$ y Γ_p , tomando $n = Nz/2$ [23] conduce a las siguientes relaciones:

$$(z - 1)\gamma_s = z\gamma_p, \quad (z - 1)\Gamma_s = z\Gamma_p. \quad (4.9)$$

Las ecuaciones (4.7)–(4.9) presentan, en general, diferentes soluciones para el *parámetro de orden* m . De esto que, un análisis del diagrama de fases debe ser realizado numéricamente por medio de una comparación de las diferentes energías libres; mediante esto se

obtienen las líneas de transición de segundo orden. En el apéndice B se ilustran explícitamente las ecuaciones a utilizar.

4.3. Método de grupo de renormalización de campo medio extendido

En el punto crítico la longitud de correlación es infinita y en su vecindad es grande. Consecuentemente, la criticalidad es un problema donde todas las longitudes de correlación están presentes y, por tanto, acarrea muchos grados de libertad. El GRUPO DE RENORMALIZACIÓN es una técnica que reduce, paso a paso, una fracción de los muchos grados de libertad. La acción de generar un hamiltoniano nuevo para los nuevos grados de libertad a partir de uno viejo se conoce como TRANSFORMACIÓN GR. Un aspecto importante de la transformación GR es obtener puntos donde la transformación sea invariante. Estos puntos se denominan PUNTOS FIJOS y sus propiedades caracterizan la transición de segundo orden.

El GRUPO DE RENORMALIZACIÓN DE CAMPO MEDIO (GRCM) ha sido eficiente y de fácil aplicabilidad en el estudio de la *criticalidad* de modelos de espines clásico como cuántico, tanto ordenados como desordenados, entre otros. Los resultados obtenidos son satisfactorios aun considerando apenas bloques menores, es decir, para un espín y un par de espines. En particular, la *temperatura crítica* T_c es igual a la obtenida por la *aproximación de Bethe* (AB) [24], siendo que los *exponentes críticos* no son clásicos. No obstante, cuando el mismo método se aplicado al modelo de Ising de espín $\sigma \geq 1$, los resultados obtenidos con los bloques menores no son equivalentes a los suministrados por la AB y, además de esto, se obtiene una temperatura crítica $T_c \neq 0$ para los modelos unidimensionales (tal comportamiento, no especificado explícitamente, fue obtenido en el estudio del *modelo de Blume-Capel* de espín $\sigma = 1$ [25, 26]).

Para aplicar el GRCM extendido, se parte del hamiltoniano (3.3):

$$\mathcal{H} = -J \sum_{\langle ij \rangle} \sigma_i \sigma_j + \Delta \sum_i \sigma_i^2, \quad (4.10)$$

Se toma inicialmente los bloques menores. Así, el hamiltoniano para el bloque de un espín ($N' = 1$) conforme se muestra en la figura 4.1(a) es

$$-\mathcal{H}_1 \equiv -\beta H_1 = zK'b'\sigma_1 + zq_1\sigma_1^2 - D'\sigma_1^2,$$

donde $K' = \beta'J'$, $D' = \beta'\Delta'$, $\beta' = (k_B T')^{-1}$, k_B la constante de Boltzmann, T' la temperatura y z es el número de coordinación de la red. $b' \ll 1$ es el *campo de quiebra de simetría* que actúa en la frontera del bloque y está relacionado con el *parámetro de orden* del sistema ($\langle \sigma \rangle$). q_1 es un parámetro adicional relacionado con el valor medio del cuadrado del espín $\langle \sigma^2 \rangle$.

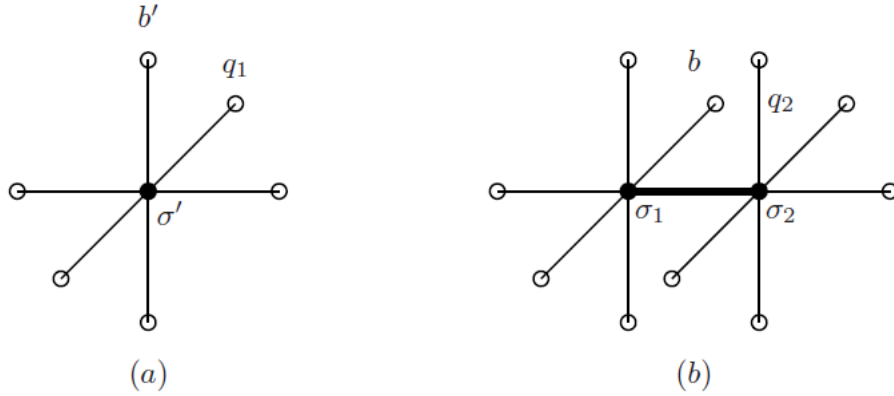


Figura 4.1: (a) Bloque de un espín; (b) Bloque de dos espines.

Similarmente, para el bloque de un par de espines como se aprecia en la figura 4.1(b) ($N = 2$), tenemos

$$-\beta \mathcal{H}_2 = K\sigma_1\sigma_2 + (z-1)Kb(\sigma_1 + \sigma_2) + (z-1)q_2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) - D(\sigma_1^2 + \sigma_2^2), \quad (4.11)$$

donde K , D , $b \ll 1$ y q_2 tienen los mismos significados arriba.

Para estos casos se tiene en cuenta el número de vecinos en los parámetros q_1 y q_2 visando una escala futura entre los mismos.

Para estos bloques tenemos:

$$m_1 = f_1(K', D', q_1)b' + g_1(K', D', q_1)b'^3, \quad (4.12)$$

$$Q_1 = h_1(K', D', q_1), \quad (4.13)$$

donde $m_1 = \langle \sigma_1 \rangle_1$ y $Q_1 = \langle \sigma_1^2 \rangle_1$ son los valores medios relacionados con el bloque de un espín y

$$m_2 = f_2(K, D, q_2)b + g_2(K, D, q_2)b^3, \quad (4.14)$$

$$Q_2 = h_2(K, D, q_2), \quad (4.15)$$

donde $m_2 = \langle \sigma_1 \rangle_2 = \langle \sigma_2 \rangle_2$ y $Q_2 = \langle \sigma_1^2 \rangle_2 = \langle \sigma_2^2 \rangle_2$ son los valores medios relacionados con el bloque de un par de espines. En las ecuaciones (4.12) y (4.14) las *magnetizaciones* fueron expandidas hasta el orden cúbico en b' y b , respectivamente.

En el apéndice C, se ilustran explícitamente las ecuaciones a utilizar.

CAPÍTULO 5

Aplicación al sistema magnético ternario FeAlMn

5.1. Generalidades

Los resultados experimentales han sido obtenidos de la referencia [9] donde el comportamiento teórico ha sido ajustado usando el modelo de Ising bajo la aproximación de un campo molecular homogéneo y tomando campos moleculares que dependen del sitio atómico, a través de una densidad de probabilidad por sitios aleatorios. En este caso, se considera a los átomos de Al como huecos magnéticos (actúa como un diluidor) y se tienen en cuenta las interacciones de intercambio $J_{\text{Fe-Fe}}$, $J_{\text{Fe-Mn}}$ y $J_{\text{Mn-Mn}}$ como parámetros de ajuste. Se considera el parámetro J tiene una dependencia sólo con q , dada por:

$$J[q] = J_1 - qJ_0$$

siendo J_1 y J_0 otros parámetros de ajuste. Los valores de éstos son $J_1 = 15,3$ y $J_0 = 2,81J_1$ [10].

Para calcular el parámetro de orden $\langle \bar{\sigma} \rangle \equiv m \propto \bar{H}$, siendo $\bar{H}$ el campo hiperfino medio reducido, se utiliza la aproximación de pares y para el diagrama de fases de la temperatura como función de la concentración, se utiliza la aproximación de campo medio. Los resultados muestran un comportamiento bueno pero con algunas inconsistencias debido a que no se tuvo en cuenta la anisotropía magnética.

5.2. Resultados

El cálculo de la magnetización por medio de la aproximación de pares se da en el apéndice A para el modelo de Ising y para el modelo de Blume-Capel en el apéndice B. En el apéndice C se exponen las ecuaciones para el grupo de renormalización de campo medio extendido para el modelo de Blume-Capel.

La figura 5.1 ilustra el comportamiento del campo hiperfino medio reducido H como función de la concentración de aluminio q para una concentración de hierro $p = 0,4$.

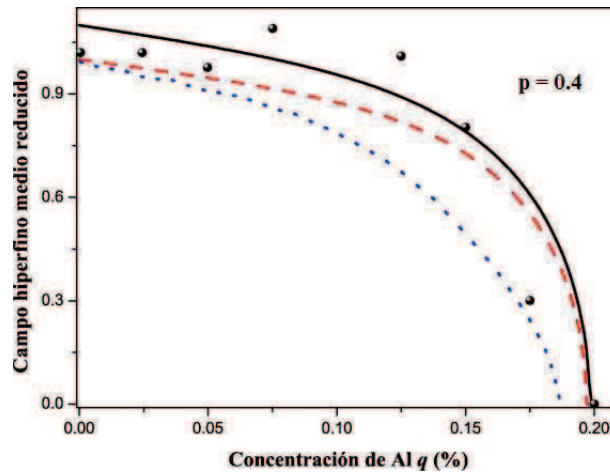


Figura 5.1: Comportamiento del campo hiperfino medio reducido H como función de la concentración de aluminio q para una concentración de hierro $p = 0,4$.

Se observa que los datos experimentales del campo hiperfino medio reducido están directamente relacionados con la magnitud de la magnetización calculada por el modelo. La línea a trazos roja corresponde al ajuste hecho por el modelo de Ising con los valores

de los parámetros J_{FeFe} , J_{MnMn} y J_{FeMn} , los cuales se muestran en la tabla 5.2. La línea azul punteada es el ajuste reportado mediante el modelo de Ising con un campo molecular que depende del sitio atómico [9]. La línea continua negra son los resultados obtenidos por el modelo de Blume-Capel, donde los valores de los parámetros se dan en la tabla 5.2.

	$J_{\text{FeFe}}(\text{meV})$	$J_{\text{MnMn}}(\text{meV})$	$J_{\text{FeMn}}(\text{meV})$	$\Delta(\text{meV})$
I	$15,3(1 - 2,81q)$	$-15,3x$	$13,77x$	—
BC	$15,3(1 - 2,81q)$	$-48,96x$	$13,77x$	$-2,05$

Cuadro 5.1: Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,4$.

Se puede ver que los resultados teóricos obtenidos por el modelo de Ising bajo diferentes aproximaciones (campo molecular homogéneo y campos moleculares que dependen del sitio atómico) tienen un comportamiento bueno con los datos experimentales, sin embargo no ajustan satisfactoriamente. El ajuste utilizando el modelo de Blume-Capel, que tiene en cuenta la anisotropía magnética, concuerda mejor con los datos experimentales. Esta concordancia se debe al hecho que el modelo de Blume-Capel de $\sigma = 1$, relaciona los valores propio del espín como sigue: +1 corresponde al ferromagnetismo (Fe), -1 al antiferromagnetismo (Mn) y 0 como el diluidor (Al), tal como se reportó para el sistema $(\text{Fe}_{0,65}\text{Ni}_{0,35})_{1-x}\text{Mn}_x$ and $\text{Fe}_p\text{Al}_q\text{Mn}_x$ [10] y recientemente al sistema FeMnAl [27].

En las figs. (5.2)(a) y (b) se observa un comportamiento similar de la figura 5.1 para concentraciones de hierro $p = 0,5$ y $p = 0,6$, respectivamente. Los valores de los parámetros de ajuste se reportan en tablas 5.2 y 4.3. Las convenciones son las mismas de la fig. 5.1.

Se observa mejor los ajustes teóricos del modelo que tiene en cuenta la anisotropía magnética para el caso de $p = 0,6$, sin embargo, cuando se usó el modelo de Ising tradicional con los mismos parámetros usado en el modelo de Blume-Capel, se nota una diferencia grande con los datos experimentales, reforzando que el sistema FeMnAl presenta una anisotropía magnética.

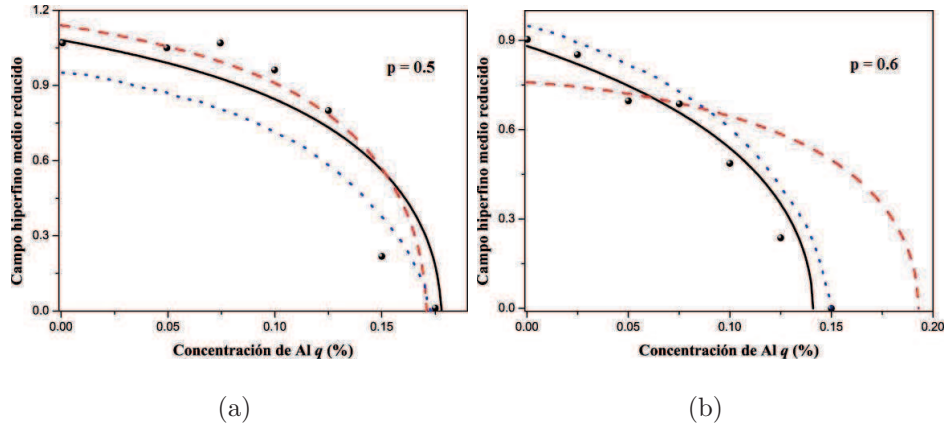


Figura 5.2: Comportamiento del campo hiperfino medio reducido H como función de la concentración de aluminio q para una concentración de hierro (a) $p = 0,5$ y (b) $p = 0,6$.

	$J_{FeFe}(\text{meV})$	$J_{MnMn}(\text{meV})$	$J_{FeMn}(\text{meV})$	$\Delta(\text{meV})$
I	$15,3(1 - 2,81q)$	$-3,06x$	$7,65x$	0
BC	$15,3(1 - 2,81q)$	$-45,9x$	$7,65x$	$-2,05$

Cuadro 5.2: Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,5$.

Por último, la figura 5.3 muestra el comportamiento de la temperatura como función de la concentración de manganeso x , que varía entre 0 y 0,5 para una concentración fija de aluminio $q = 0,05$. Los puntos negros corresponden a los datos experimentales, la línea punteada corresponde al ajuste hecho por el modelo de Ising con la aproximación de campos moleculares que dependen del sitio atómico [9]. La línea negra sólida es el ajuste obtenido mediante el modelo de Blume-Capel bajo la aproximación del grupo de renormalización campo medio extendido.

Como se puede notar, el ajuste teniendo en cuenta la anisotropía está más de acuerdo con los datos reportados experimentalmente que aquel que no tiene en cuenta este fenómeno.

	$J_{FeFe}(\text{meV})$	$J_{MnMn}(\text{meV})$	$J_{FeMn}(\text{meV})$	$\Delta(\text{meV})$
I	$15,3(1 - 2,81q)$	$-7,65x$	$-7,65x$	0
BC	$15,3(1 - 2,81q)$	$-27,54x$	$-7,65x$	$-2,05$

Cuadro 5.3: Valores de los parámetros utilizados en los modelos de Ising y Blume-Capel para una concentración de hierro, $p = 0,6$.

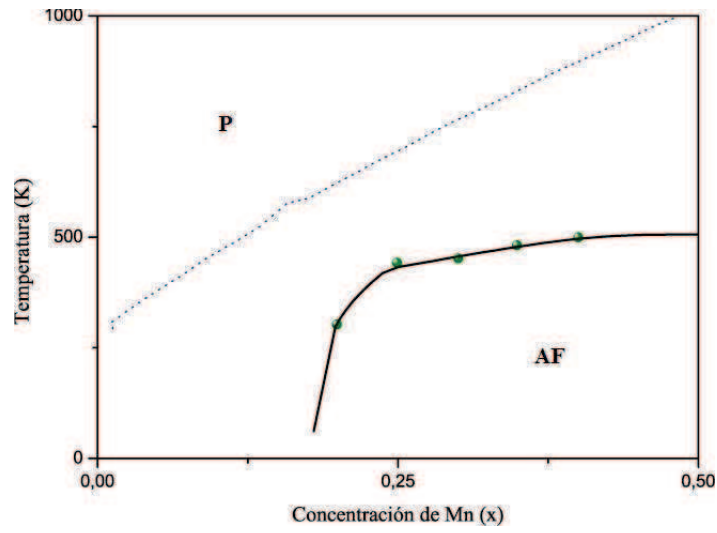


Figura 5.3: Temperatura en función de la concentración de Mn (x) para una concentración de aluminio $q = 0,05$

CAPÍTULO 6

Conclusiones

Hemos realizado los ajustes teóricos a los datos experimentales del campo hiperfino medio reducido como función de la concentración de aluminio para diferentes concentraciones de hierro y el diagrama de fases de la temperatura como función de la concentración de manganeso, para una concentración de aluminio fija del sistema FeMnAl, reportados en la referencia [9]. Los modelos que se utilizaron fueron: Modelo de Ising tradicional y el modelo de Blume-Capel con la misma distribución de probabilidad dada por (3.4). También se comparó con los resultados obtenidos por el modelo de Ising con campos moleculares que dependen del sitio atómico.

Para el modelo que tiene en cuenta la anisotropía se asumió que los átomos de hierro interactúan ferromagnéticamente (+1), los de manganeso lo hacen de manera antiferromagnética (−1) y los de aluminio hacen las veces de huecos magnéticos cumpliendo con el efecto diluidor (0).

Para los comportamientos del campo hiperfino medio reducido en función de la concentración de aluminio se ajustan mejor que los obtenidos por los modelos que no tienen en cuenta la anisotropía magnética. Para el modelo de Blume-Capel e Ising tradicional, el parámetro J_{FeFe} dependía de la concentración de Al q , y los parámetros de interacción J_{MnMn} y J_{FeMn} se encontraron dependientes de la concentración de Mn x . Esto tiene sentido ya que al aumentar o disminuir la cantidad de átomos antiferromagnéticos, es decir, la concentración de Mn, se incrementa o disminuye, según sea el caso, la magnitud entre las interacciones J_{FeFe} y las de J_{MnMn} .

El comportamiento de la temperatura como función de la concentración de manganeso para una concentración fija de aluminio mejoró notablemente si se tiene en cuenta la anisotropía magnética, demostrando que el modelo de Blume-Capel tiene en cuenta las interacciones ferromagnéticas, antiferromagnéticas y de dilución para el sistema FeMnAl.

Como futuros trabajos se pretende obtener el diagrama de fases teórico y compararlo con algunos datos experimentales reportados [17] donde se presentan las fases ferromagnética, antiferromagnética, vidrio de espín y vidrio de espín reentrante.

Bibliografía

- [1] G. A. Pérez Alcázar, J. A. Plascak, and E. Galvão da Silva, *Phys. Rev. B* **38**: 2816 (1988).
- [2] G. A. Pérez Alcázar, E. Galvão da Silva, and C. Paduani, *Hyperfine Interact.* **66**: 221 (1991).
- [3] L. E. Zamora, G. A. Pérez Alcázar, A. Bohórquez, and J. A. Tabares, *J. Magn. Magn. Mater.* **137**: 339 (1994).
- [4] J. Restrepo, G. A. Pérez Alcázar, and J. M. González, *J. Appl. Phys.* **87**: 7425 (2000).
- [5] Bohórquez, L. E. Zamora, and G. A. Pérez Alcazar, *Phys. Rev. B* **49**: 16 035 (1994).
- [6] A. Osorio, Ligia E. Zamora, G. A. Pérez Alcázar, *Phys. Rev. B.*, **53**: 8176 (1996).
- [7] H. Falk, *Am. J. Phys.* **38**: 858 (1970).
- [8] A. R. Rivera, G. A. Pérez Alcázar, and J. A. Plascak, *Phys. Rev. B* **41**: 4 774 (1990).
- [9] A. Osorio, W. R. Aguirre Contreras, Ligia E. Zamora and G. A. Pérez Alcázar, *Phys. Rev. B.*, **68**: 024420 (2003).

- [10] D. Peña Lara, G. A. Pérez Alcázar, Ligia E. Zamora and J. A. Plascak, Phys. Rev. B., **80**: 014427 (2009).
- [11] M. Blume, Phys. Rev. **141**: 517 (1966).
- [12] H. W. Capel, Physica **32**: 966 (1966).
- [13] J. H. Van Vleck, *The Theory of Electric and Magnetic Susceptibilities*, Oxford University Press, New York, (1978).
- [14] G. L. Kayak, Met. Sci. Heat Treatment, **2**: 95 (1969).
- [15] P. D. Bilmes, A. C. González, C. L. Llorente, Cuyás, and M. Solari. Rev. Metal. Madrid., **30**: 298 (1994).
- [16] Ligia E. Zamora, G. A. Pérez Alcázar, J. A. Tabares, A. Bohórquez, J. F. Marco and J. M. González, J. Phys.: Condens. Matter., **12**:611 (2000).
- [17] C. González, G. A. Pérez Alcázar, Ligia E. Zamora, J. A. Tabares and J. M. Greneche, J. Phys.: Condens. Matter, **14**: 6531 (2002).
- [18] Ligia E. Zamora, G. A. Pérez Alcázar, A. Bohórquez and J. A. Tabares, J. Mag. Mag. Matter., **137**: 339 (1997).
- [19] R. C. O’Handley, *Modern Magnetic Materials: Principles and Applications*, John Wiley & Sons, Inc., New York, (2000).
- [20] B. A. Cipra, Amer. Math. Monthly **94**: 937 (1987).
- [21] D. Peña Lara, J. A. Plascak, S. J. Ferreira, and O. F. Alcântara Bonfim, J. Mag. Mag. Mat. **177**: 163 (1998).
- [22] Peña Lara and J. A. Plascak, Mod. Phys. Lett. B **10**, 1067 (1996).
- [23] L. G. Ferreira, S. R. Salinas and M. J. Oliveira, phys. stat. sol. (b) **83**: 229 (1977).
- [24] H. A. Bethe, Proc. Roy. Soc. (London) A **150**, 552 (1935).

- [25] O. F. de Alcantara Bonfim, *Physica A* **130**, 367 (1985).
- [26] W. Figueiredo, *Bras. J. Phys.* **22**, 313 (1992).
- [27] D. Peña Lara, J. E. Diosa, and C. A. Lozano, *Phys. Rev. E.* (2013). En prensa.

APÉNDICE A

Ecuaciones aproximación de pares para el modelo Ising

A continuación se presentan las ecuaciones utilizadas para realizar los ajustes mediante el modelo de Ising. Los siguientes valores se presentan durante el desarrollo de éstas.

z es el número de coordinación de la red.

$$\beta = \frac{1}{k_B T}.$$

σ es el valor del espín: $0, \pm 1$.

$$K = \beta J.$$

J es el parámetro de interacción de intercambio.

$$r = \frac{z-1}{z}.$$

γ_s es un parámetro relacionado a σ_1 .

$$a = \beta \gamma_s.$$

γ_p es un parámetro relacionado con $\sigma_1 + \sigma_2$

En este caso, el Hamiltoniano para un solo espín y un par de espines es respectivamente:

$$H_s = -a\sigma_1 \tag{A.1}$$

$$H_p = K_{1,2}\sigma_1\sigma_2 - ra(\sigma_1 + \sigma_2) \tag{A.2}$$

La función de partición correspondiente es:

$$Z_s = 2 \cosh(a) \tag{A.3}$$

$$Z_p = 2e^{-K_{1,2} + 2e^{K_{1,2}} \cosh(2ra)} \quad (\text{A.4})$$

La magnetización está dada por:

$$m_s = \tanh(a) \quad (\text{A.5})$$

$$m_p = \frac{2e^{K_{1,2}} \sinh(2ar)}{e^{-K_{1,2}} + e^{K_{1,2}} \cosh(2ar)} \quad (\text{A.6})$$

APÉNDICE B

Ecuaciones Aproximación de Pares para el modelo de Blume-Capel

A continuación se presentan las ecuaciones utilizadas para realizar los ajustes. Los siguientes valores se presentan durante el desarrollo de éstas.

z es el número de coordinación de la red.

$$\beta = \frac{1}{k_B T}.$$

σ es el valor del espín: $0, \pm 1$.

$$K = \beta J.$$

J es el parámetro de interacción de intercambio.

$$r = \frac{z-1}{z}.$$

Δ es el campo cristalino.

$$d = \beta \Delta.$$

γ_s es un parámetro relacionado a σ_1 .

$$a = \beta \gamma_s.$$

δ_s es un parámetro relacionado a σ_1^2 .

$$b = \beta \delta_s.$$

$$\delta_1 = \beta(\delta_s - \Delta) = b - d.$$

$$\delta_2 = \beta(\delta_p - \Delta) = rb - d.$$

El Hamiltoniano en el modelo de Blume-Capel para un espín y un par de espines es:

$$H_s = -a\sigma_1 - \delta_1\sigma_1^2 \tag{B.1}$$

$$H_p = -K_{1,2}\sigma_1\sigma_2 - ra(\sigma_1\sigma_2) - \delta_2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \quad (\text{B.2})$$

La función de partición correspondiente a cada uno está dada por:

$$Z_s = 1 + 2e^{\delta_1} \cosh(a) \quad (\text{B.3})$$

$$Z_p = 1 + 2e^{-K_{1,2}+2\delta_2} + 4e^{\delta_2} \cosh(ra) + 2e^{K_{1,2}+2\delta_2} \cosh(2ra) \quad (\text{B.4})$$

De acuerdo a esto, la magnetización para un solo espín y un par está dada, respectivamente por:

$$m_s = \frac{2e^{\delta_1} \sinh(a)}{1 + 2e^{\delta_1} \cosh(a)} \quad (\text{B.5})$$

$$m_p = \frac{4e^{\delta_2}(1 + 2e^{\delta_2+K_{1,2}})ra}{1 + 4e^{\delta_2} + 4e^{2\delta_2} \cosh(K_{1,2})} \quad (\text{B.6})$$

La expresión para el cuadrupolo en ambos casos es:

$$Q_s = \frac{2e^{\delta_1} \cosh(a)}{1 + 2e^{\delta_1} \cosh(a)} \quad (\text{B.7})$$

$$Q_p = \frac{4e^{\delta_2}(1 + 2e^{\delta_2} \cosh(K_{1,2}))}{1 + 4e^{\delta_2} + 4e^{\delta_2} \cosh(K_{1,2})} \quad (\text{B.8})$$

APÉNDICE C

Ecuaciones EMFRG

Se muestran a continuación las ecuaciones respectivas al modelo de EMFRG. Los siguientes valores se presentan durante el desarrollo de éstas.

z es el número de coordinación de la red.

σ es el valor del espín: $0, \pm 1$.

J es el parámetro de interacción de intercambio.

Δ es el campo cristalino.

$$\beta = \frac{1}{k_B T}.$$

$$K = \beta J.$$

b' Campo de ruptura de simetría.

$$\delta_1 \equiv z\beta\gamma_1 - \beta\Delta.$$

b'_1, b'_2 Campos de ruptura de simetría.

$$I_0 \equiv zK'b'.$$

$$I_1 \equiv (z-1)K_1b_1.$$

$$I_2 \equiv (z-1)K_2b_2.$$

$$\delta_2 \equiv (z-1)\beta\gamma_2 - \beta\Delta.$$

El hamiltoniano para un solo espín y un par de espines es:

$$H_1 = -I_0\sigma_1 - \delta_1\sigma_1^2 \tag{C.1}$$

$$H_2 = -K_{1,2}\sigma_1\sigma_2 - I_1\sigma_1 - I_2\sigma_2 - \delta_2(\sigma_1^2 + \sigma_2^2) \tag{C.2}$$

La función de partición correspondiente está dada por:

$$Z_1 = 1 + 2e^{\delta_1} \cosh(I_0) \quad (\text{C.3})$$

$$Z_2 = 1 + 2e^{\delta_2} [\cosh(I_1) + \cosh(I_2)] + 2e^{2\delta_2+K_{1,2}} \cosh(I_1 + I_2) + 2e^{2\delta_2-K_{1,2}} \cosh(I_1 - I_2) \quad (\text{C.4})$$

Para la magnetización se tiene:

$$m_1 = \frac{2e^{\delta_1} \sinh(I_0)}{1 + 2e^{\delta_1} \cosh(I_0)} \quad (\text{C.5})$$

$$m_2 = \frac{2e^{\delta_2} (\sinh(I_1) + e^{\delta_2+K_{1,2}} \sinh(I_1 + I_2) + e^{\delta_2-K_{1,2}} \sinh(I_1 - I_2))}{1 + 2e^{\delta_2} (\cosh(I_1) + \cosh(I_2)) + 2e^{2\delta_2+K_{1,2}} \cosh(I_1 + I_2) + 2e^{2\delta_2-K_{1,2}} \cosh(I_1 - I_2)} \quad (\text{C.6})$$

Las ecuaciones para el cuadrupolo son:

$$Q_1 = \frac{2e^{\delta_1} \cosh(I_0)}{1 + 2e^{\delta_1} \cosh(I_0)} \quad (\text{C.7})$$

$$Q_2 = \frac{2e^{\delta_2} (\cosh(I_1) + \cosh(I_2) + 2e^{\delta_2+K_{1,2}} \cosh(I_1 + I_2) + 2e^{\delta_2-K_{1,2}} \cosh(I_1 - I_2))}{1 + 2e^{\delta_2} (\cosh(I_1) + \cosh(I_2)) + 2e^{2\delta_2+K_{1,2}} \cosh(I_1 + I_2) + 2e^{2\delta_2-K_{1,2}} \cosh(I_1 - I_2)} \quad (\text{C.8})$$