

UNIVERSIDAD NACIONAL DE LA PLATA
FACULTAD DE CIENCIAS EXACTAS
Departamento de Física

Dimensionalidad magnética en compuestos
 $Y_{2-x}Dy_xBaCuO_5$

Trabajo de diploma

Lorena Baum
Director: Prof. Dr. Roberto C. Mercader
Octubre de 2003

Resumen

Los arreglos magnéticos de las denominadas "fases verdes", constituidas por los mismos elementos que los cupratos superconductores, siguen siendo objeto de estudio tanto porque algunas de ellas presentan ordenamientos de baja dimensionalidad como porque continúa sin conocerse el mecanismo que regula la interacción entre tierras raras y metales de transición 3d.

En este trabajo se estudian mediante susceptibilidad AC y difracción de neutrones la transición de dimensionalidad que surge en el Y_2BaCuO_5 al ser dopado con Dy. En particular se estudiaron muestras con el 1, 5, 10 y 25% de Dy y el propio Dy_2BaCuO_5 .

Los datos experimentales fueron tratados con modelos de Campo Medio y con Hamiltonianos de Baja Dimensionalidad a través de desarrollos en serie de alta temperaturas.

Los resultados muestran que con muy bajas concentraciones de Dy ($\sim 1 - 10\%$) el sistema no puede tratarse con esquemas que supongan la interacción entre distintas redes magnéticas tridimensionales (Campo Medio) sino que puede ser analizado con modelos de baja dimensionalidad. Esta característica se pierde mayores concentraciones de Dy frente a las cuales el sistema se arregla tridimensionalmente y se puede describir con modelos de campo medio simples.

Índice general

1. Introducción	2
1.1. Los modelos magnéticos	3
1.1.1. El campo molecular	3
1.1.2. Sistemas magnéticos de baja dimensionalidad	5
1.2. Estructuras cristalinas	6
1.3. Estructura magnética	8
2. Procedimientos y Resultados Experimentales	9
2.1. Preparación de Muestras	9
2.2. Suceptibilidad AC	9
2.3. Difracción de neutrones	10
3. Análisis de Resultados	12
3.1. Y_2BaCuO_5	12
3.1.1. Modelo de Curie Weiss	12
3.1.2. Desarrollo en Serie de Altas Temperaturas	12
3.2. $(Y_{1-x}Dy_x)_2BaCuO_5$	14
3.2.1. Modelo de Curie-Weiss	14
3.2.2. Difracción de neutrones	15
3.2.3. Desarrollo en Serie de Altas Temperaturas	16
4. Conclusiones	20
5. Anexos	24
5.1. La integral de intercambio	24
5.2. Hamiltonianos Asociados a los distintos modelos magnéticos	26
5.3. Suceptibilidad AC	26
5.3.1. Dispositivo experimental	27

Capítulo 1

Introducción

A diferencia de los paramagnetos (PM), algunos materiales presentan magnetización espontánea a bajas temperaturas debido a la interacción entre sus átomos o iones magnéticos. Son los materiales ferromagnéticos (FM), antiferromagnéticos (AFM) y ferrimagnéticos. Los FM han jugado un importante rol en la historia por sus bondades tecnológicas. El antiferromagnetismo es más reciente; en 1936 Néel [1] predijo la existencia de este fenómeno cooperativo cuyas generalizaciones llevaron a describir y descubrir los materiales ferrimagnéticos.

En un FM, las interacciones favorecen la alineación paralela de los momentos magnéticos. A 0 K la alineación es total y la magnetización adquiere su máximo valor posible. A medida que la temperatura aumenta, los efectos de la agitación térmica favorecen la orientación al azar de los momentos magnéticos y como consecuencia la magnetización espontánea decrece, llegando a ser nula a la temperatura que caracteriza la transición, conocida como la temperatura de Curie, T_c . Por encima de T_c el material se comporta como un PM.

En los antiferromagnetos ideales simples, las redes de átomos magnéticos pueden ser divididas en dos subredes equivalentes interpenetradas, de manera que los átomos en una subred (A), interactúan con los primeros vecinos en la otra subred (B) y viceversa. Las interacciones magnéticas son tales que causan que dichas subredes se orienten antiparalelamente. A la temperatura de cero absoluto, cada subred se encuentra en el máximo de su magnetización espontánea, la que se reduce conforme aumenta la temperatura por efectos de la agitación térmica, de la misma forma que ocurre con los FM. Sin embargo, el momento magnético neto del material es siempre cero para todas las temperaturas por la exacta cancelación de las magnetizaciones en cada subred. A temperaturas mayores que la de transición, llamada temperatura de Néel, T_N , donde la energía asociada a la agitación térmica es mayor que la asociada al orden magnético, las subredes no presentan magnetización espontánea.

Para temperaturas superiores a la de orden, a pesar de que no desaparecen los factores que disminuyen la energía del sistema cuando éste está ordenado, tanto los FM como los AFM se comportan de manera similar a los materiales paramagnéticos. La dependencia de la susceptibilidad con la temperatura sigue la forma aproximada [3]:

$$\chi = \frac{C}{T - \theta_w} \quad (1.1)$$

donde C es la llamada Constante de Curie y θ_w es la temperatura de Weiss, característica de cada material, que resulta positiva para los FM y, generalmente negativa para los AFM.

Cualquier teoría que pretenda explicar los fenómenos anti y ferromagnéticos, deberá entonces dar cuenta de la existencia de magnetización espontánea, de la localización de los puntos críticos,

del comportamiento de la susceptibilidad con la temperatura y de los fenómenos térmicos asociados. En general, el tratamiento teórico de cualquier fenómeno cooperativo requiere por un lado describir las interacciones que le dan lugar y por otro, un tratamiento estadístico apropiado, ya que nos encontramos ante sistemas de muchos cuerpos. Pierre Weiss en 1907 propuso que la magnetización espontánea era consecuencia de las interacciones entre átomos magnéticos, asociando el orden a las interacciones dipolares entre momentos magnéticos. Sin embargo, éstas producen efectos mucho menores que los observados y conducen a temperaturas críticas distintas a las que se obtienen experimentalmente.

A pesar de que se mantiene hasta hoy la idea de Weiss, fue necesario esperar el desarrollo de la mecánica cuántica para comprender el verdadero carácter de los fenómenos magnéticos. Estos se originan en interacciones puramente cuánticas que son consecuencia directa de la antisimetría de las funciones de onda impuesta por el Principio de Exclusión de Pauli. La interacción magnética tiene así su razón de ser en cuestiones exclusivamente electrostáticas unidas a que el intercambio de coordenadas espaciales y de espín de un par de electrones modifica los autovalores de la energía según las orientaciones relativas de los spines. Esta situación es entonces equivalente a una interpretación en términos de "interacciones" que tienden a ordenar el momento angular de espín y, con él, a los momentos magnéticos.

A partir de un Hamiltoniano electrónico, y utilizando teoría de perturbaciones -el tratamiento para un sistema de dos electrones puede encontrarse en el Anexo 5.1-, pueden calcularse las contribuciones energéticas en las cuales aparece la contribución de la *Energía de Intercambio*, esto es, una contribución energética producto del intercambio de electrones. En el caso de dos electrones:

$$E_S = E^0 + C_{ij} + J_{ij}; \quad E_T = E^0 + C_{ij} - J_{ij} \quad (1.2)$$

donde los subíndices S y T se refieren a los estados singlete y triplete respectivamente, C_{ij} corresponde a la contribución electrostática producto de la interacción electrón-electrón y J_{ij} es la llamada *Integral de Intercambio*.

Extendiendo estos conceptos a átomos multielectrónicos y espín arbitrario, escribimos para el Hamiltoniano de un sistema de N átomos:

$$H = -2 \sum_{i < j} \mathbf{J}_{ij}(\mathbf{s}_i \cdot \mathbf{s}_j) \quad (1.3)$$

El Hamiltoniano de la ecuación anterior es el punto de partida de una buena parte de los estudios sobre sistemas ferromagnéticos. Es el *Hamiltoniano de Heisenberg* y, si bien "muestra" sólo coordenadas de spin, encubre la dependencia de la distribución espacial de los estados electrónicos asociados a los spines correspondientes.

1.1. Los modelos magnéticos

El Hamiltoniano planteado en la ecuación 1.3, pese a su aspecto simple, resulta prácticamente insoluble analíticamente. Es por esta razón que se han realizado considerables esfuerzos para definir y analizar aproximaciones que permitan obtener soluciones tratables. A continuación se describen algunos casos en los que, con simplificaciones adecuadas, se llega a soluciones que dan cuenta de distintos resultados que son encontrados en diferentes sistemas magnéticos.

1.1.1. El campo molecular

El tratamiento más simple del Hamiltoniano 1.3, consiste en considerar sólo un átomo magnético y reemplazar su interacción con el resto de su entorno por un campo efectivo o

”campo medio”. Esto fue propuesto por *Pierre Weiss* en 1907 [2], quien sugirió que este campo efectivo es proporcional al momento magnético neto del material:

$$\mathbf{H}_e = \gamma \mathbf{M} \quad (1.4)$$

donde γ es una constante, generalmente llamada coeficiente de Weiss. Incorporando a esta propuesta, el tratamiento (propio de la mecánica cuántica) del momento magnético atómico como un operador:

$$\mu = g\beta \mathbf{S} \quad (1.5)$$

podemos reescribir la ecuación 1.3 considerando un sólo átomo y hacer uso del campo medio para escribir:

$$H_1 = g\beta S \mathbf{H}_e \quad \Rightarrow \quad H_e = \frac{2J}{g\beta} \sum_{j=1}^z S_j \quad (1.6)$$

donde la suma se extiende sobre los Z primeros vecinos.

Suponiendo que cada \mathbf{S}_j puede ser reemplazado por su valor medio $\langle \mathbf{S}_j \rangle$ y considerando contribuciones equivalentes para cada átomo en la red, podemos escribir para el momento magnético total del cristal:

$$\mathbf{M} = Ng\beta \langle \mathbf{S}_j \rangle \quad \Rightarrow \quad \mathbf{H}_e = \frac{2zJ}{g\beta} \langle \mathbf{S}_j \rangle = \frac{2ZJ}{Ng^2\beta^2} \mathbf{M} \quad (1.7)$$

Si bien el *coeficiente de campo molecular* $\gamma = 2ZJ/Ng^2\beta^2$ depende del número N de átomos en la muestra, la magnitud del campo molecular es independiente de éste, tal como se esperaría en una teoría de campo medio. La forma de considerar los efectos del campo aplicado actuando sobre el i -ésimo átomo es proponer:

$$\mathbf{H} = \mathbf{H}_0 + \mathbf{H}_e \quad (1.8)$$

Donde, como es usual, \mathbf{H}_0 actúa a lo largo del eje \hat{z} y, si el modelo no incluye anisotropías, \mathbf{M} y \mathbf{H}_e se alinean en esa dirección. El Hamiltoniano de un átomo resulta:

$$H_1 = g\beta S_z H \quad \text{con autovalores:} \quad E = -g\beta m H \quad m = S, S-1, \dots, -S \quad (1.9)$$

La aplicación de la teoría a un AFM [3], nos lleva a considerar dos diferentes campos moleculares \mathbf{H}_{eA} y \mathbf{H}_{eB} , producto de la interacción de la red A con la B y viceversa. De esta manera:

$$\mathbf{H}_{eA} = 2\gamma \mathbf{M}_B \quad \mathbf{H}_{eB} = 2\gamma \mathbf{M}_A \quad (1.10)$$

entonces:

$$\mathbf{H}_A = 2\gamma \mathbf{M}_B + \mathbf{H}_0 \quad \mathbf{H}_B = 2\gamma \mathbf{M}_A + \mathbf{H}_0 \quad (1.11)$$

A partir de aquí y utilizando un procedimiento análogo al modelo de Curie para el paramagnetismo y las funciones de Brillouin, estas ecuaciones pueden resolverse simultáneamente. El momento magnético total $M = M_A + M_B$ del sistema resulta:

$$M = \frac{CH_0}{T - \theta_w} \quad \text{y} \quad \chi = \frac{C}{T - \theta_w} \quad (1.12)$$

Donde

$$\theta_w = 2zJ \frac{S(S+1)}{3k} \quad \text{y} \quad C = Ng^2\beta^2 \frac{S(S+1)}{3k} \quad (1.13)$$

definen a C (constante de Curie) y θ_w (temperatura de Weiss). Es importante notar los distintos roles de estos parámetros. Por un lado C depende directamente del número de espines en el sistema y es independiente del valor de J, mientras que es θ_w quien lleva el peso del intercambio.

Para definir la temperatura de transición, en condiciones de campo externo nulo, se impone la condición de que tanto M_A como M_B sean distintas de cero con lo cual:

$$\frac{\theta_w}{T_N} = -1 \quad , \quad M_A = -M_B \quad (1.14)$$

La aproximación de campo medio de Weiss es un intento de obtener una técnica que dé cuenta de las principales propiedades de un sistema de espines, con la ventaja de la simplicidad del tratamiento matemático. Sin embargo, numerosos sistemas presentan relaciones entre θ_w y T_N que se alejan del ideal. En particular no resulta útil a la hora de analizar sistemas de baja dimensionalidad. La razón fundamental para ello reside en el origen mismo de la aproximación de campo medio; al reemplazar las interacciones de un ion dado por un "efecto promedio" del resto de la red se pierden importantes características del comportamiento del sistema. Una consecuencia directa es que el modelo es incapaz de dar cuenta de las interacciones de corto alcance, que dependen de los vecinos más próximos y son una característica de los sistemas de baja dimensionalidad.

1.1.2. Sistemas magnéticos de baja dimensionalidad

Existen muchos sistemas anisotrópicos en los cuales las interacciones magnéticas difieren notablemente de acuerdo a las direcciones cristalográficas consideradas. En algunos casos, estas anisotropías permiten definir redes de distinta dimensionalidad tanto de su espin como de las integrales de intercambio. Consideremos por ejemplo el Hamiltoniano derivado del 1.3:

$$H = -2J \sum_{i>j} [aS_j^z S_j^z + b(S_j^x S_j^x + S_j^y S_j^y)] \quad (1.15)$$

donde hemos considerado $J^x = J^y = J^z = -J$ y restringido la sumatoria a los vecinos próximos. De acuerdo a los valores de los parámetros a y b podemos pasar de un modelo a otro. Si a=b=1, tenemos el llamado *modelo isótropo de Heisenberg*, si a=0 y b=1 estamos en el *modelo XY* y en el otro extremo de la anisotropía nos encontramos con el *modelo de Ising* en el cual b=0 y a=1. En todos estos casos la dimensionalidad está asociada a la anisotropía del sistema. Estos modelos difieren entre sí en las características del parámetro de orden, definido habitualmente como la magnetización espontánea. En el modelo de Ising, el parámetro será un escalar ya que las posibles orientaciones de la magnetización serán arriba y abajo, mientras que en los modelos XY y Heisenberg, serán vectores de dos y tres dimensiones respectivamente.

Desarrollos en Serie de Altas Temperaturas -DSAT-

El efecto de las correlaciones de corto alcance en sistemas de baja dimensionalidad ha sido investigado ampliamente contrastando predicciones de modelos tipo Heisenberg, Ising y XY con datos experimentales. Las interacciones de corto alcance se vuelven más importantes al disminuir la dimensionalidad del sistema [4] y dado que existe un pequeño número de soluciones

analíticas cualquiera sea el modelo elegido, se han desarrollados distintas estrategias para el análisis de éstos. Uno de los enfoques más fructíferos ha sido el desarrollo en serie de las funciones termodinámicas de los sistemas. Estos son desarrollos en serie en algún parámetro de la temperatura, usualmente J/k , que son exactos en el sentido que los coeficientes se calculan de forma exacta pero se trabaja con un número finito de términos extrapolando luego al comportamiento de una serie infinita por diversos métodos. La validez de estos desarrollos de series "truncas" ha sido corroborada en modelos que existen soluciones analíticas (principalmente Ising con $d=1$ y 2). En algunos casos, la mayor parte de información cuantitativa en lo que se refiere a los fenómenos críticos del sistema proviene de esos desarrollos (en particular, sistemas con anisotropías).

Las series empleadas son de la forma:

$$F(T) = \sum_{n=1}^{\infty} a_n \left(\frac{\phi}{kT}\right)^n \quad (1.16)$$

donde F es la función termodinámica a estudiar y ϕ el único parámetro a ajustar. Los coeficientes a_n se calculan mediante técnicas de conteo de gráficos múltiplemente conectados según la estructura de cada modelo y dependen del tipo y dimensión de la red que se consideren, así como el rango de convergencia, que dependerá de las características de cada red particular.

En el presente trabajo, la función termodinámica que se estudia es la susceptibilidad magnética y el parámetro de ajuste J/k . Dado que $\chi(T)$ no presenta singularidades, el método para determinar el radio de convergencia es el de "susceptibilidad oscilante" [5] y hemos realizado el ajuste considerando una red cuadrada AFM de Heisenberg de $Z=4$ [6].

1.2. Estructuras cristalinas

La síntesis y estudio sistemático de los óxidos cerámicos de estequiometría R_2BaMO_5 , donde R es Y o alguna tierra rara y M es un metal de transición 3d, se remonta a comienzos de la década de los '80 [7]. La serie de óxidos sintetizados abarca prácticamente todos los iones R^{3+} , y varios M^{2+} de la serie de tierras raras y metales de transición 3d. Se han identificado y caracterizado los diferentes grupos espaciales en los que cristaliza cada miembro de la serie, que depende de la identidad de los iones R y M intervinientes. Los distintos empaquetamientos observados son: a) tipo Sm_2BaCuO_5 (Grupo espacial $Pnma$), b) tipo Nd_2BaPtO_5 (Grupo espacial $P4/mbm$) y c) tipo Nd_2BaNiO_5 (Grupo espacial $Immm$). Si bien, algunos de estos compuestos presentan polimorfismo, los compuestos estudiados en este trabajo, que cristalizan en el sistema ortorrómbico, grupo espacial $Pnma$, no poseen esta característica. La estructura correspondiente a los compuestos con grupo espacial $Pnma$ (figura 1.1), puede describirse mediante las pirámides distorsionadas (respecto al plano basal) de coordinación del Cu^{2+} (CuO_5) (figura 1.2), que están unidas por capas de prismas RO_7 paralelas al plano ab . Los prismas RO_7 están agrupados de a pares, compartiendo tres oxígenos que forman una cara común, generando unidades de estequiometría R_2O_{11} . Los iones Ba^{2+} están coordinados con once oxígenos, formando poliedros irregulares y relativamente aislados del resto (figura 1.2). El estudio de las diferentes fases del sistema Y-Cu-Ba-O tuvo un vigoroso impulso cuando, en 1987, se identificó al Y_2BaCuO_5 ($Pnma$) como una de las fases espurias en la preparación del superconductor de alta temperatura crítica $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. A partir de dicho descubrimiento, las investigaciones apuntaron en dos direcciones principales: a) construir el diagrama de fases de este sistema ternario para lograr muestras sin fases espurias y b) identificar posibles relaciones existentes entre las propiedades estructurales, magnéticas y/o electrónicas del Y_2BaCuO_5 con los mecanismos responsables de

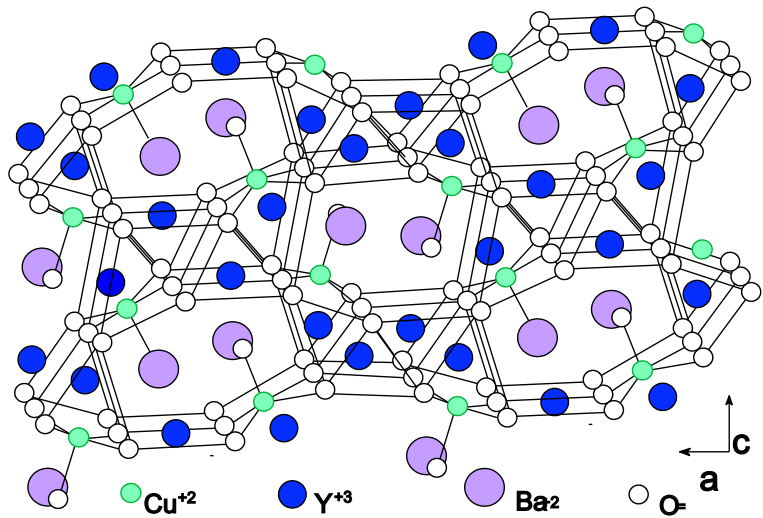


Figura 1.1: Estructura Pnma

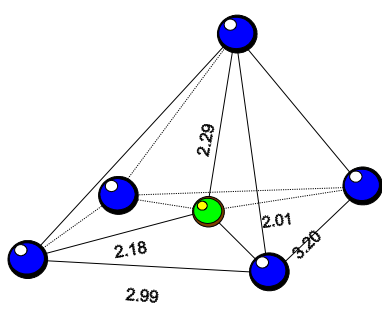


Figura 1.2: Poliedro de coordinación del Cu

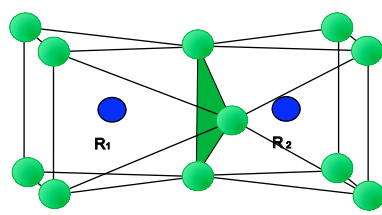


Figura 1.3: Coordinación del Ba

la superconductividad en la fase superconductora relacionada. Si bien es sabido que la superconductividad está en gran medida asociada a los planos de CuO_2 , se desconoce aún cuál es el mecanismo mediador del apareamiento electrónico. Cualquiera sea el mecanismo propuesto para este fenómeno, para ser satisfactorio deberá dar cuenta de la ausencia de superconductividad en R_2BaCuO_5 . De aquí surge la especial importancia de la caracterización precisa de estos óxidos.

1.3. Estructura magnética

La estructura magnética del Y_2BaCuO_5 ha sido estudiada por distintos autores [9][11][12] quienes no han logrado una única interpretación. Existen tres propuestas sobre la configuración de la red de espines, todas ellas provenientes del análisis de difractogramas de neutrones. La primera de ellas consiste en dos redes AFM de Cu, con los momentos magnéticos paralelos al plano **ac** (figura 1.4 1), formando un ángulo de 39° respecto del eje cristalográfico **c**. La figura 1.4 2 corresponde a una estructura colineal, en el plano **ac**, de los espines de *Cu* en sentidos paralelo y antiparalelo al eje **c**, y la figura 1.4 3 muestra dos estructuras propuestas que difieren entre sí en la orientación de los spines (FM o AFM) dentro de la celda cristalina aunque ambas conducen a una celda unidad AFM.

Si bien las medidas sobre las cuales se basaron estos trabajos datan de principios de los 90, los problemas fundamentales en la interpretación de los difractogramas de neutrones siguen siendo los mismos. Por un lado las dificultades propias de las muestras policristalinas, por otro el fuerte impacto de las impurezas superconductoras en las medidas a bajas temperaturas y la imposibilidad de asegurar su ausencia y, finalmente, las características propias de las reflexiones magnéticas del *Cu* que se manifiestan con picos de muy débil intensidad. La imposibilidad de

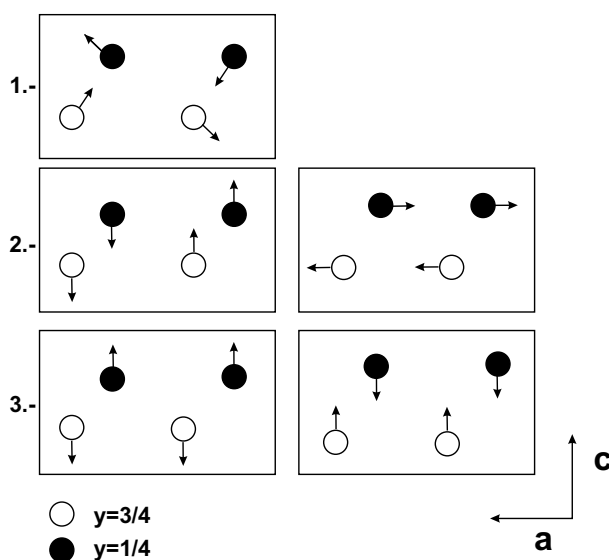


Figura 1.4: Esquema de las estructuras propuestas para los iones Cu^{2+} . 1[9]; 2[11]; 3[12]

discernir entre los posibles modelos de estructura del *Cu* exclusivamente a partir de un estudio tradicional de difracción de neutrones, evidencia la necesidad de profundizar en la caracterización magnética del sistema para abordar una sistemática conjunta de reducción de posibilidades. En ese marco, la localización de las temperaturas de transición y el seguimiento de éstas en función de impurezas o dopajes es muy relevante.

Capítulo 2

Procedimientos y Resultados Experimentales

2.1. Preparación de Muestras

Se prepararon muestras con las siguientes concentraciones:

Nomenclatura	Contenido de Dy (%)	
M1	0	Y_2BaCuO_5
M2	1	
M3	5	
M4	10	
M5	25	
M6	100	Dy_2BaCuO_5

El método de preparación fue una reacción estándar sólido-sólido, a partir de los compuestos Y_2O_3 , CuO , CO_3Ba y Dy_2O_3 , en proporciones estequiométricas [14]. La mezcla homogénea fue primero llevada a $400^\circ C$, enfriada hasta temperatura ambiente y luego calentada a $1000^\circ C$ durante 24 hs, repitiéndose esta parte del proceso tres veces. La muestra policristalina resultante, de color verde, fue analizada por difracción de rayos X. En todos los casos las muestras fueron realizadas en el Departamento de Química de la Universidad de Durham, Reino Unido.

Es importante destacar que muestras que no mostraban impurezas superconductoras en sus difractogramas de RX, si las evidenciaban en sus medidas de susceptibilidad (figura 2.1). Es por esta razón que algunas de las muestras (aquellas con concentraciones del 1, 5 y 10% de Dy) fueron sometidas en otras dos oportunidades al tratamiento térmico a $1000^\circ C$. No resulta posible asegurar el carácter monofásico de las muestras. Sin embargo, en la determinación del comportamiento magnético y, en particular, de la estructura magnética de la red de espines resulta crítica la eliminación de la fase superconductoras frente a la de otros posibles óxidos segregados.

2.2. Susceptibilidad AC

Se realizaron medidas de susceptibilidad magnética (χ') con un Susceptómetro AC LakeShore 7130, siguiendo un procedimiento de barrido con estabilización de temperatura en cada medida (modo "listado"). El error asociado a las medidas resulta típicamente en $\pm 3\%$ del valor absoluto de la susceptibilidad y de ± 1 K para el valor de la temperatura durante la medición. La figura

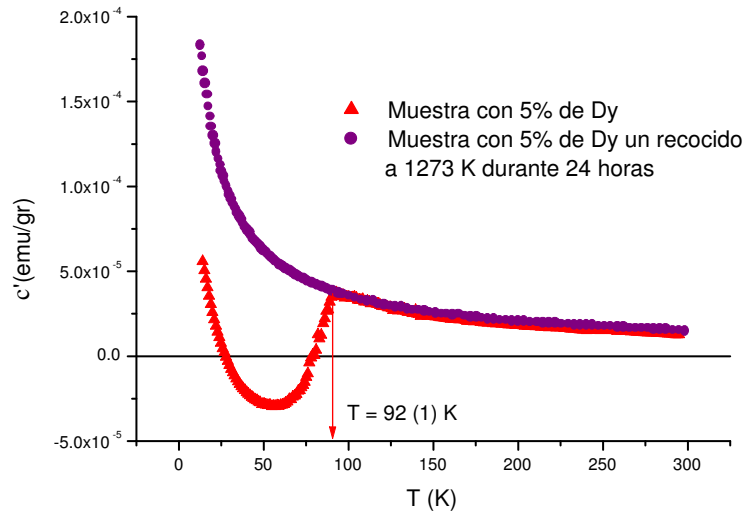


Figura 2.1: Evidencia de impurezas superconductoras en curvas de susceptibilidad

2.2 muestra las curvas obtenidas para las distintas concentraciones de Dy.

Los trabajos realizados previamente sobre la susceptibilidad de las fases verdes incluían medidas de susceptibilidad DC (χ) [8][9]; dado que éstos trabajos fueron relevantes en la definición del método de análisis a seguir en nuestras muestras, fue necesario indagar sobre la equivalencia de las medidas (ver Anexo 5.3). La linealidad entre M y H es el factor relevante en la relación entre χ y χ' y fue verificada [10] para los intervalos de campo entre 0 y 5 kOe y temperaturas entre 6 y 290 K. Otro factor a tener en cuenta es la variación o no del comportamiento del sistema según cambie la frecuencia del campo AC aplicado (ver Anexo 5.3). Hemos realizado sobre nuestras muestras medidas de la susceptibilidad a diferentes frecuencias y confirmada la independencia de las mismas.

2.3. Difracción de neutrones

En este trabajo se presentan medidas de difracción de neutrones realizadas en el Institut Laue-Langevin (ILL), Grenoble; con el Difractómetro D20. Se trabajó con muestras de alrededor de 4 g, dopadas al 1 y 5% de Dy, con una longitud de onda de 2.4 Å y con temperaturas entre 1.5 y 100 K. Las modalidades de registro fueron las siguientes:

Para la muestra con el 1% de Dy

- 3 corridas a 1.6, 10 y 35 K durante 20 minutos.
- Rampas a 0.1K/100s entre 1.6 y 10 K (7 corridas) y entre 10 y 35 K (21 corridas); a 0.1K/50s entre 35 y 100 K (21 corridas).

Para la muestra con el 5% de Dy

- 6 corridas a 1.6, 10 y 35 K durante 10 minutos.
- Rampas a 0.1K/100s entre 3 y 40 K (31 corridas).

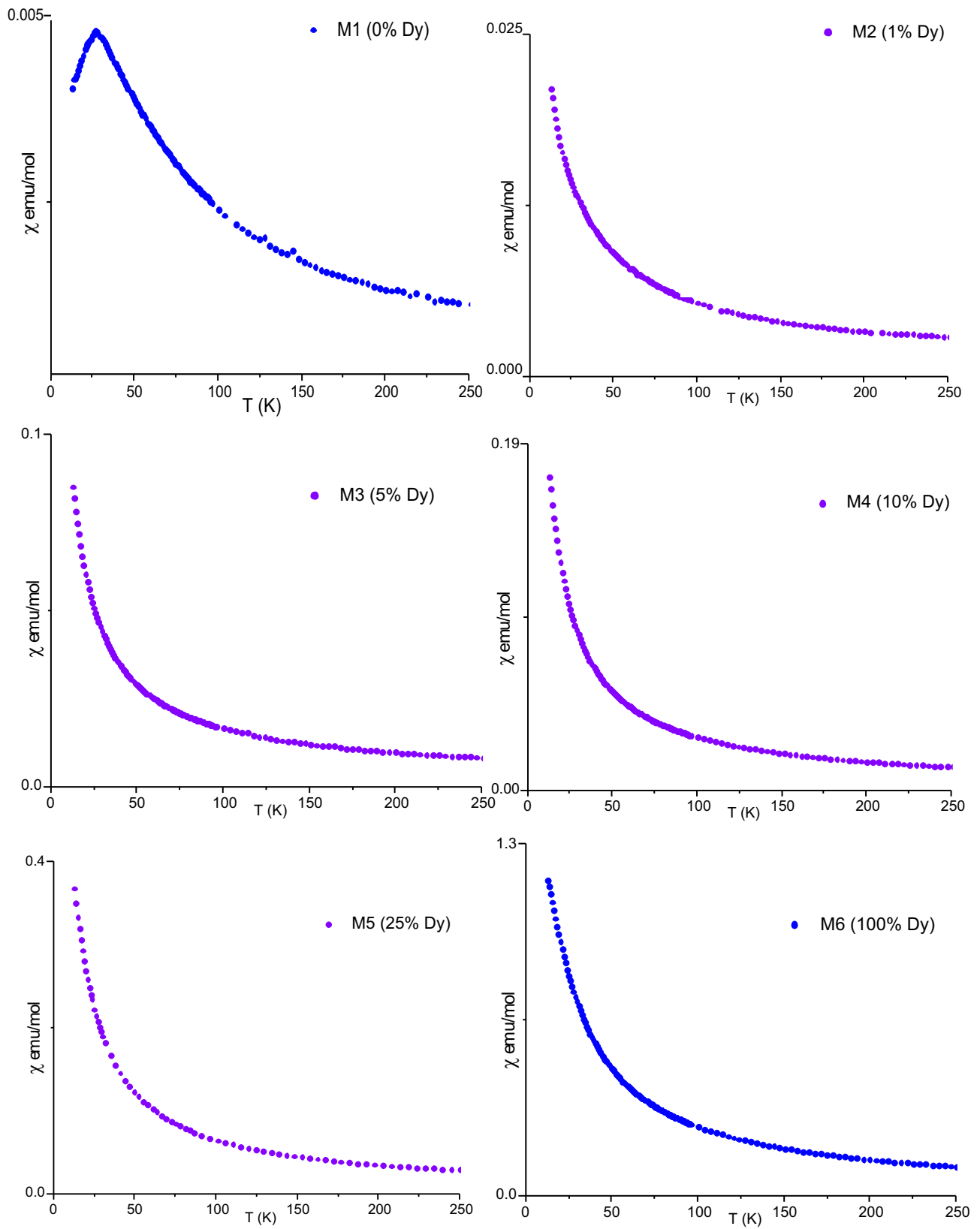


Figura 2.2: Medidas realizadas con H_{AC} de $10e$ y frecuencia $825Hz$, con temperaturas entre 14 y 300 K

Capítulo 3

Análisis de Resultados

3.1. Y_2BaCuO_5

3.1.1. Modelo de Curie Weiss

De acuerdo al modelo desarrollado en la sección 1.1.1, se trabajó en la región de altas temperaturas definida a partir de $T > 2T(\chi_{max})$ según el criterio usual[4], encontrándose los siguientes resultados: $C = 0,39(1)JK$ y $\theta_w = 56,2(7)K$. El ajuste correspondiente se muestra en la figura 3.1.

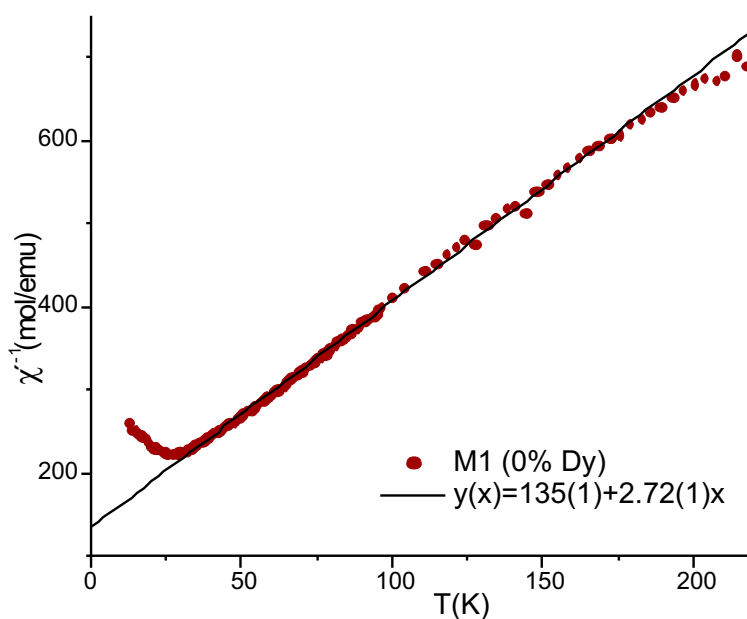


Figura 3.1: Ajuste CW para Y_2BaCuO_5

3.1.2. Desarrollo en Serie de Altas Temperaturas

Se trabajó con un desarrollo en serie AFM, de Heisenberg, para una red cuadrada de $Z=4$ con los coeficientes determinados por Lines [6].

Explícitamente, el desarrollo en serie tiene la forma:

$$\frac{Ng^2\mu_B^2}{\chi J} = 3\theta + \sum_{n=1}^{\infty} \frac{C_n}{\theta^{(n-1)}} \quad (3.1)$$

donde $\theta = kT/JS(S+1)$ y los coeficientes C_n fueron calculados desde el formalismo general planteado en [5].

El análisis de los resultados del ajuste DSAT debe hacerse considerando que, a diferencia del modelo de Curie Weiss, estos dependen de la región de temperaturas cercanas a $T(\chi_{max})$ donde las correlaciones de corto alcance son muy importantes. De Jongh y Miedema [4] sugieren que la caracterización de un sistema magnético de baja dimensionalidad debe realizarse comparando ciertos parámetros característicos. Los más importantes se muestran en la tabla 3.1.2, donde se comparan los valores teóricos[4] con los hallados en nuestro sistema, los cuales se encuentran dentro de los intervalos de error aceptables para asegurar la validez del modelo.

	AFM de Heisenberg	Y_2BaCuO_5
$\frac{kT(\chi_{max})}{JS(S+1)}$	2.53	2.24
$\frac{\chi_{max}T(\chi_{max})}{C}$	0.356	0.335
$\frac{\chi_{max}J}{N\mu^2g^2}$	0.0469	0.0432

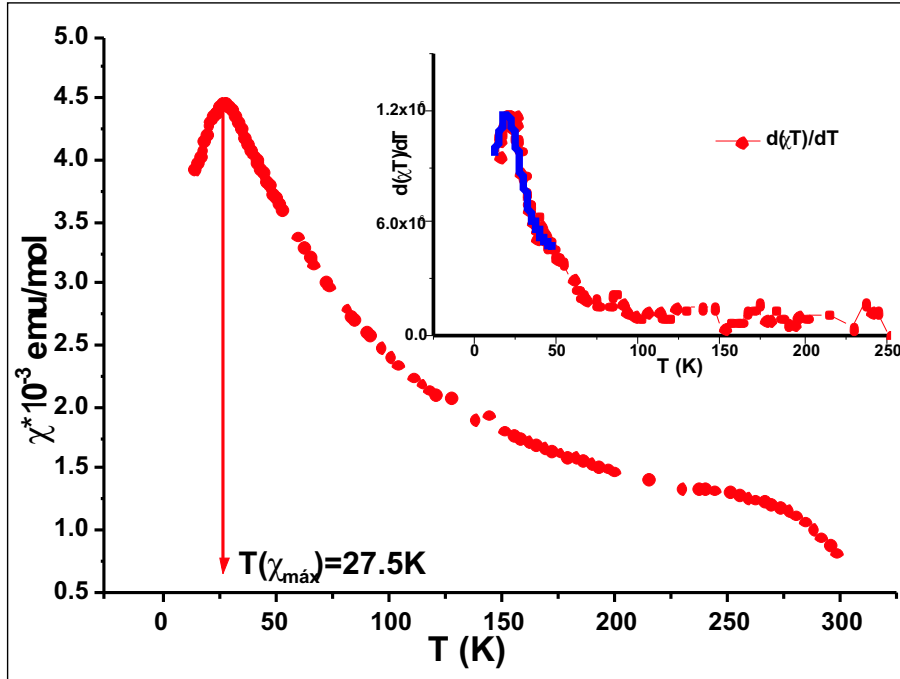


Figura 3.2: Comparación entre $T(\chi_{max})$ y el máximo de $\frac{d(\chi T)}{dT}$

Otra de las consideraciones a hacer, se refiere a la relación entre $T(\chi_{max})$ y el máximo de $\frac{d(\chi T)}{dT}$. En la bibliografía se relaciona dicha diferencia con la energía magnética del sistema y resulta ser ésta un parámetro adecuado tanto para AFM como para FM. La comparación en nuestro sistema muestra entre ambos una diferencia de ~ 7 K ($\sim 27,3$ %) de acuerdo a lo esperado [4] (figura 3.2).

Por otro lado, Lines[6] ha argumentado que en un sistema bidimensional un ordenamiento estable de largo alcance sólo puede lograrse en presencia de algún grado de anisotropía, por lo tanto cualquier cálculo confiable de T_N debería incluir dicha anisotropía como parte importante de dicho cálculo. Esto implica que no puede haber una relación excluyente entre J y T_N , como por ejemplo la dada por el modelo de Curie-Weiss, que no contenga términos de anisotropía magnética. Dada la inexistencia de dicho modelo, el autor propone que $T(\chi_{max})$ debe reemplazar a T_N como la magnitud observable más íntimamente relacionada con J . En el caso de una red cuadrada como la que utilizamos, la relación proviene del cálculo de los coeficientes DSAT del propio Lines, extendida para diferentes valores de spin. A partir de estos resultados, y graficando $Ng^2\mu_B^2/\chi J$ como función de $kT/J(S+1)S$ se obtiene la relación:

$$\frac{kT(\chi_{max})}{J} = 1,12S(S+1) + 0,10 \quad (3.2)$$

que resulta en un valor de 0.94 si se considera $S=1/2$. Incorporando a esta ecuación el valor de J/k obtenido a través del ajuste DSAT $J/k = -29$ K obtenemos para la $T(\chi_{max})^{DSAT}$ un valor de 27 K (figura 3.3) en buen acuerdo con nuestro valor experimental.

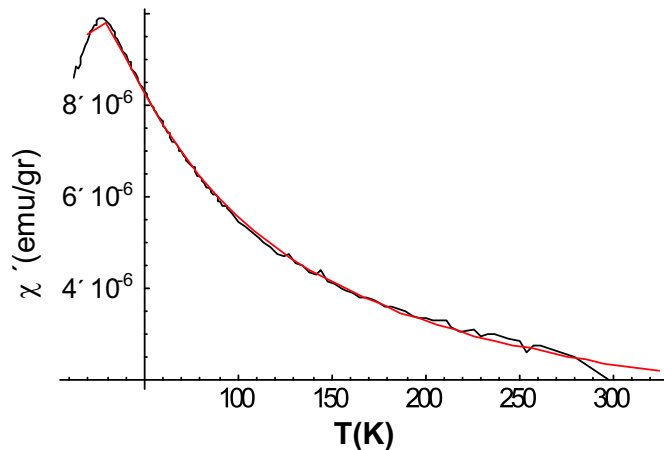


Figura 3.3: Ajuste DSAT para el Y_2BaCuO_5 (trazo rojo)

3.2. $(Y_{1-x}Dy_x)_2BaCuO_5$

3.2.1. Modelo de Curie-Weiss

Las muestras con distintas concentraciones de Dy fueron tratadas con el modelo de Curie-Weiss. En los casos donde existan restos de baja dimensionalidad (muestras con concentraciones del 1 y el 5% de Dy) se utilizó como criterio para definir el rango de temperaturas el mismo que con el Y_2BaCuO_5 . Los valores obtenidos para las distintas muestras se presentan en la siguiente tabla 3.1, los ajustes correspondientes en la figura 3.4 y en la figura 3.5 se muestran las variaciones de C y θ_w en función de la concentración de Dy.

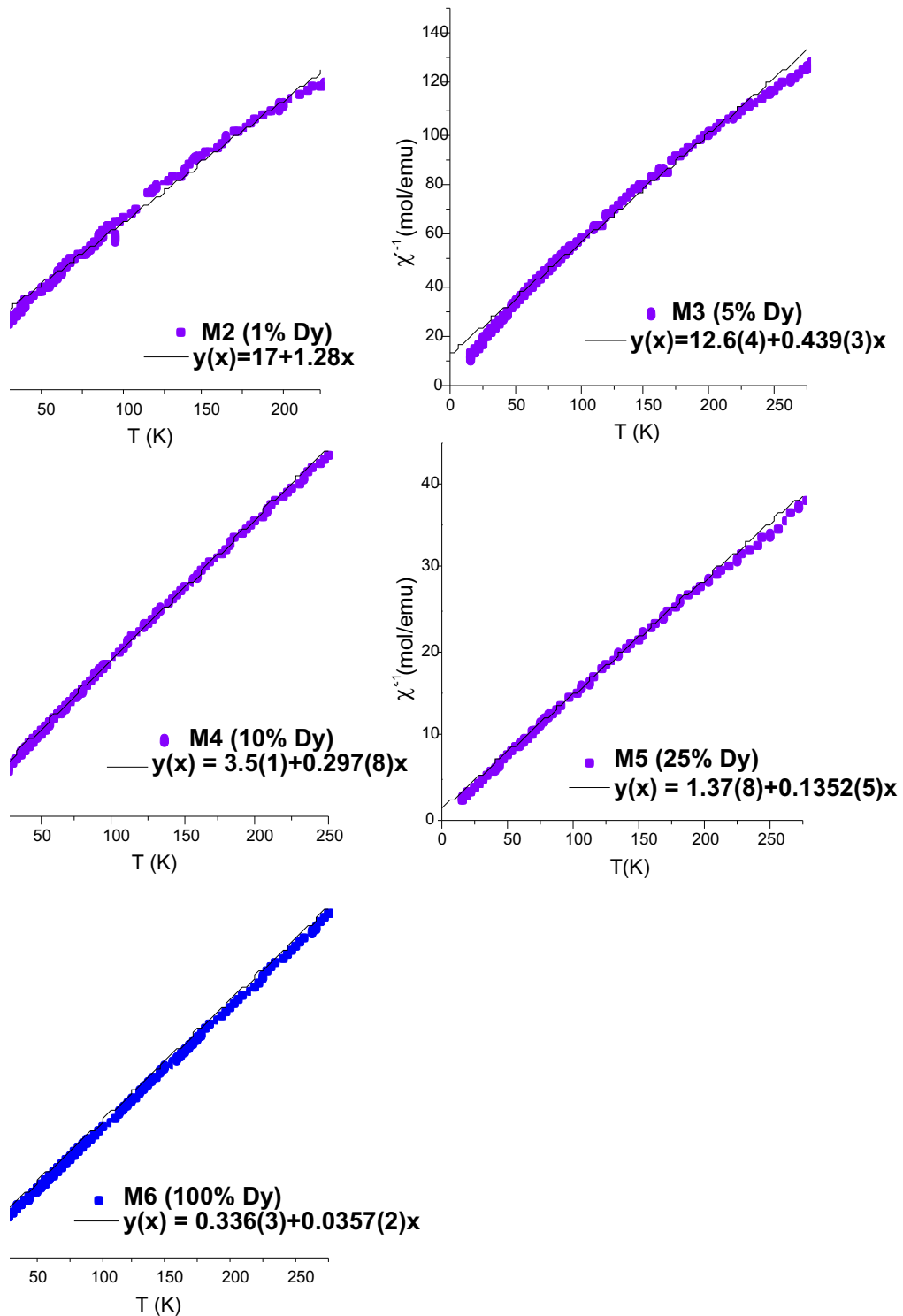


Figura 3.4: Ajustes según el modelo de Curie-Weiss para muestras con distintas concentraciones de Dy

3.2.2. Difracción de neutrones

En el conjunto de difractogramas de neutrones es posible seguir la evolución de los picos magnéticos en función de la temperatura (figura 3.6). Siendo que la estructura magnética del

	1 % Dy	5 % Dy	10 % Dy	25 % Dy	100 % Dy
C (JK)	0.8(6)	2.2(1)	3.3(9)	7.4(3)	28.0(1)
θ_w (K)	37(1)	29(1)	11(1)	10.1(1)	9(1)

Cuadro 3.1: Valores de C y θ_w hallados según el modelo de Curie-Weiss

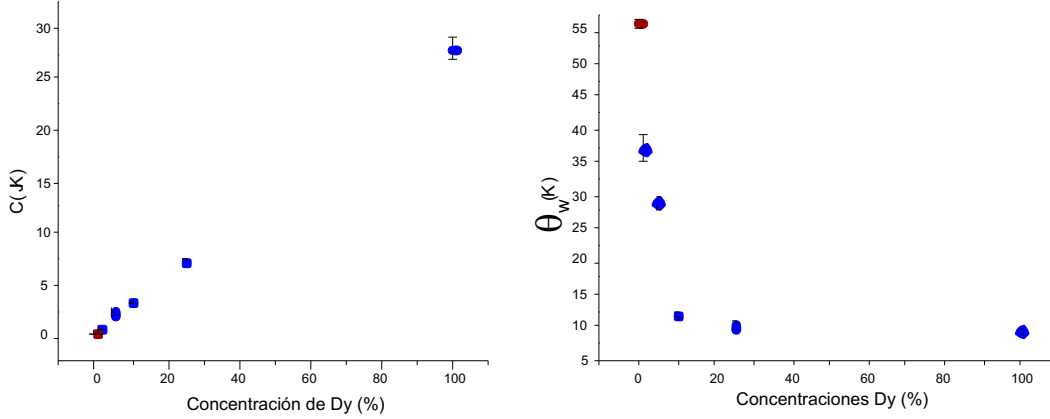


Figura 3.5: Datos de C y θ_w para distintas concentraciones de Dy

material es característica de su estado ordenado, puede reconocerse la temperatura de transición como aquella a partir de la cual aparecen los picos asociados a dicha estructura (figuras 3.7 y 3.8).

Tanto para la muestra del 1 % como para la del 5 % encontramos que la estructura magnética aparece para temperaturas de alrededor de 16 K . Los ajustes correspondientes indican que las T_N asociadas con dicho orden en ambas muestras se encuentran en el intervalo $15,9 \pm 0,2$ K.

Estos valores difieren significativamente de los encontrados para θ_w siguiendo el modelo de campo medio (ver figura 3.5) siendo lo más notable, no el que los valores sean distintos (la relación $\frac{T_N}{\theta_w} = -1$ sólo es válida para AFM ideales) sino que el modelo de Curie-Weiss indique una dependencia con la concentración que no parece evidenciar la temperatura de orden del sistema.

3.2.3. Desarrollo en Serie de Altas Temperaturas

Extendiendo el ajuste DSAT a la muestra con un contenido del 1 % de Dy, se obtiene un valor para J/k de $-16(1)$ K, que incorporándolo a la ecuación 3.2 arroja un valor para $T(\chi_{max})$ de $15(1)$ K (figura 3.9). El ajuste realizado merece algunas consideraciones. No resulta evidente del análisis de susceptibilidad AC que pueda atribuirse un orden de baja dimensionalidad a la muestra con un 1 % de Dy, ya que los distintos tests utilizados para el Y_2BaCuO_5 puro no son aplicables en este caso por la imposibilidad de hallar un máximo para χ' . Sin embargo, siguiendo el razonamiento de Néel, hemos aplicado el desarrollo relacionando a $T(\chi_{max})$ con T_N . Los parámetros de control del ajuste fueron N y g, a los cuales se les permitió variaciones relativas respecto a los valores ajustados para el Y_2BaCuO_5 puro. Además, se permitió el ajuste del coeficiente del término $1/T$ de la serie propuesta, siendo que resulta el más apropiado para dar cuenta de contribuciones tridimensionales (en virtud del modelo de Curie-Weiss). Todas las libertades dadas al ajuste estuvieron acotadas por los intervalos de convergencia calculados por Lines. En la muestra con 5 % de Dy, no fue posible realizar un ajuste DSAT que permitiera

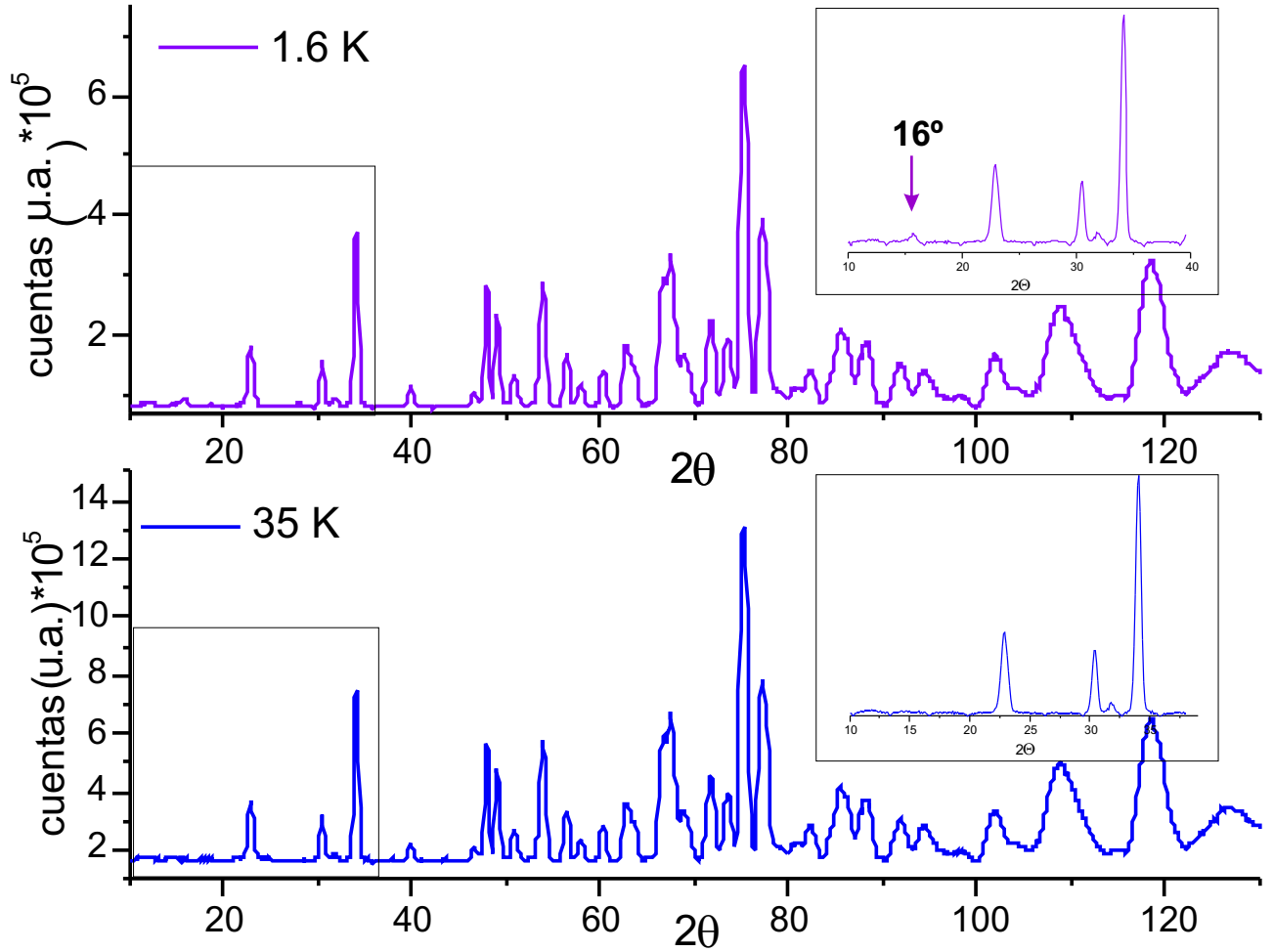


Figura 3.6: Difractogramas correspondientes a la muestra con 1% Dy a 1.6 y 35 K. Se observa el pico magnético a $2\theta \sim 16^\circ$

mantenernos dentro de los intervalos de convergencia, sin que ello implique valores en los ajustes del factor de Landé y en el número de spines físicamente inaceptables.

Nuestros resultados indican que si bien la incorporación del 1% de Dy es suficiente para modificar la temperatura de orden del sistema, no hay variaciones en ésta cuando la concentración aumenta del 1 al 5%. Sin embargo, perdemos la posibilidad de modelar la susceptibilidad en base a un Hamiltoniano de baja dimensionalidad.

Distintos autores han informado para el sistema Y_2BaCuO_5 [13][14][15] dopado con pequeñas concentraciones de iones magnéticos (Er, Fe, Gd, por ejemplo) temperaturas asociadas con el máximo de la susceptibilidad de alrededor de 16 K. Esta concordancia de la T_N obtenida para las muestras con bajas concentraciones de Dy y los datos bibliográficos, sería un indicio de que lo relevante en las modificaciones al sistema magnético podrían ser las posibles alteraciones de las interacciones magnéticas entre átomos de Cu producto de los dopantes, más que las contribuciones magnéticas de los mismos.

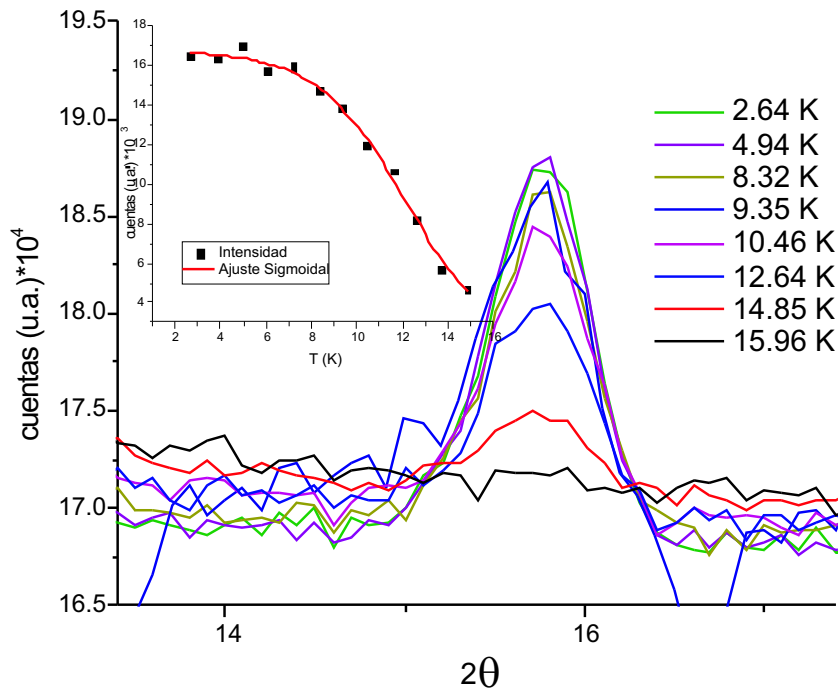


Figura 3.7: Evolución del pico magnético de $\sim 16^\circ$ en función de T para la muestra con 1% de Dy

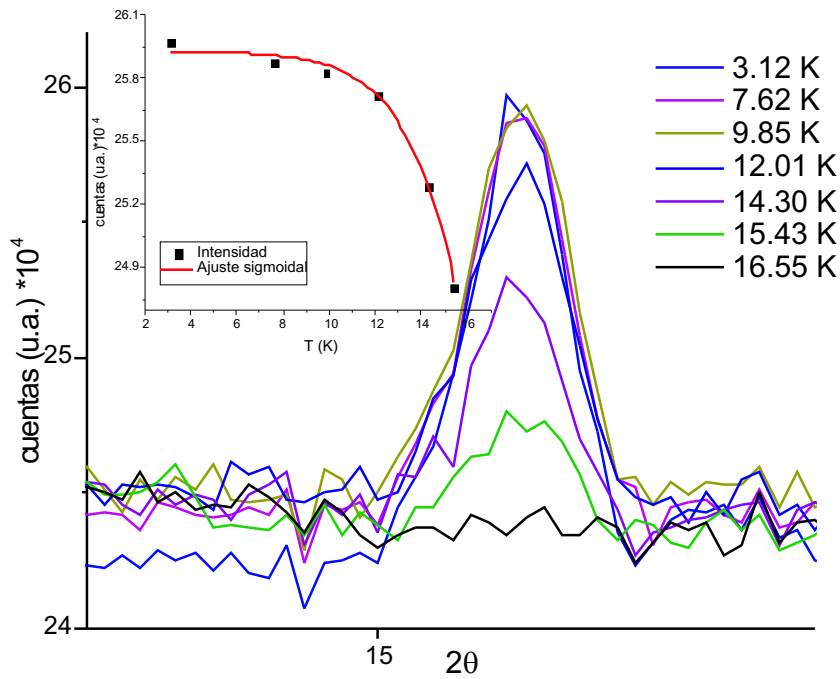


Figura 3.8: Evolución del pico magnético de $\sim 16^\circ$ en función de T para la muestra con 5% de Dy

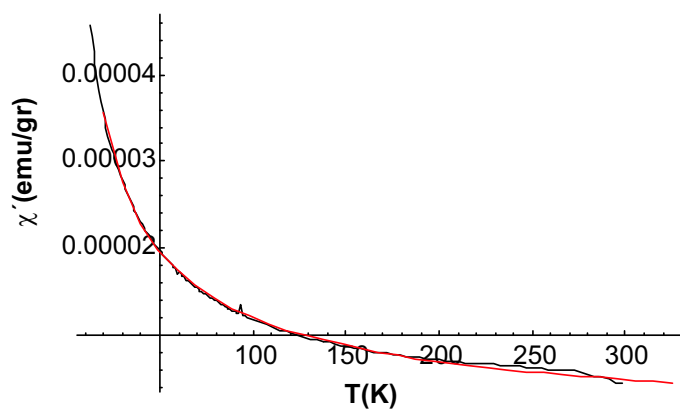


Figura 3.9: Ajuste DSAT para 1% de Dy (trazo rojo)

Capítulo 4

Conclusiones

- Hemos verificado que el Y_2BaCuO_5 responde a un Hamiltoniano de Heisenberg planar y que los coeficientes DSAT con $z=4$ constituyen buenos parámetros de ajuste.
- Este mismo desarrollo permite ajustar la muestra con 1 % de Dy, dejando libre -dentro de los valores permitidos para asegurar la convergencia de la serie- el coeficiente de $1/T$ que es el más directamente relacionado con una contribución tridimensional. Los resultados muestran una equivalencia entre la temperatura a la cual se predice un máximo de la susceptibilidad y la T_N hallada a partir de los difractogramas de neutrones.
- No es posible realizar un tratamiento similar con la muestra con 5 % de Dy ya que los ajustes conducen a valores sin significado físico para parámetros tales como el número de espines en la muestras o el factor de Landé del sistema.
- La aplicación del modelo de Curie-Weiss al conjunto de medidas, indica una variación de los parámetros θ_w con la concentración de Dy que no se condice con las T_N halladas a partir del análisis de los difractogramas de neutrones a diferentes temperaturas. Esta discrepancia no se limita a los magnitudes halladas sino que la relación entre θ_w y T_N refleja la no aplicabilidad del modelo de Curie-Weiss a nuestro sistema, al menos, para pequeñas concentraciones de Dy.
- La imposibilidad de resolver la estructura magnética de los compuestos exclusivamente a partir de un análisis tradicional de difracción de neutrones, requiere avanzar paralelamente en la caracterización magnética del sistema mediante otras técnicas.
- Este estudio revela una fuerte dependencia de las propiedades del sistema con las impurezas magnéticas. Este hecho, sumado a las dificultades que se encuentran tanto para preparar las muestras como para cuantificar sus posibles impurezas, permitiría comprender la variedad de temperaturas que distintos autores asocian al máximo de la susceptibilidad.

El trabajo realizado sobre este conjunto de muestras, ha abierto distintas líneas de acción en pos de realizar un aporte significativo en cuanto al estudio de las interacciones en el sistema.

Se prevé profundizar el análisis de neutrones a través de la deconvolución de los difractogramas de alta estadística, teniendo como referencia las distintas evidencias magnéticas y considerando las diferencias entre las medidas a diferentes temperaturas, lo que permitiría reconocer variaciones en los picos cristalográficos por superposición de, hasta aquí desconocidos, picos magnéticos.

Por otro lado, resulta necesario avanzar en la caracterización magnética del sistema (lo que nos permitirá mejorar la elección de los parámetros de ajuste de nuestro modelo) y dadas las dificultades en obtener buena respuesta en las medidas de susceptibilidad, se prevé la realización de medidas de calor específico, sensibles a los ordenamientos magnéticos. Esto nos permitiría indagar sobre las temperaturas de orden tanto del Cu como del Dy y establecer la dependencia de estas con las concentraciones.

Bibliografía

- [1] L. Néel; Ann. Phys. **5**, 232, Paris (1936).
- [2] P. Weiss; J. Phys. Radium **4**, 661 (1907).
- [3] J. Samuel Smart; "Effective field theories of magnetism", (1966).
- [4] L. J. De Jongh en "Magnetic Properties of Layered Transition Metal Compounds", Kluwer Academic Publishers, (1990).
- [5] G. S. Rushbrooke, G. A. Baker and P. J. Wood. "Heisenberg Model", Phase Transitions and Critical Phenomena **3**, (1974).
- [6] M. E. Lines; J. Phys. Chem. Solids, **31**, 101 (1970).
- [7] C. Michel et B. Raveau; Journal of Solid State Chemistry, **43**, 73 (1982).
- [8] E. W. Ong; B. L. Ramakrishna and Z. Iqbal; Solid State Communications, **66**(2), 171 (1988).
- [9] T. Chattopadhyay, P. J. Brown, U. Köbler and M. Wilhelm; Europysics Letters, **8** (7), 685 (1989).
- [10] Kimihito Tagaya and Takayuki Yokoo; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **210**, 203 (2000).
- [11] O. D. Kolotii and V. A. Blinkin; Sov. Phys. Solid State, **34** (5), 774 (1992).
- [12] I. V. Golosovskii, V. P. Plakhtii, V. P. Kharchenkov, J. Zoubkova, B. V. Mill', M. Bonnet and E. Roudaut; Sov. Phys. Solid State, **34** (5), 782 (1992).
- [13] M. N. Popova, E. Antic-Fidancev and P. Porcher; J. Solid State Chem. **162**, 42 (2001).
- [14] G. F. Goya, S. J. Stewart, A. E. Goeta, A. G. Grunfeld, G. Punte and R. C. Mercader; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **138**, (1994).
- [15] G. F. Goya; Journal of Magnetism and Magnetic Materials, **205**, 215 (1994).

Índice de figuras

1.1.	Estructura Pnma	7
1.2.	Poliedro de coordinación del Cu	7
1.3.	Coordinación del Ba	7
1.4.	Esquema de las estructuras propuestas para los iones Cu^{2+} . 1[9]; 2[11]; 3[12]	8
2.1.	Evidencia de impurezas superconductoras en curvas de susceptibilidad	10
2.2.	Medidas realizadas con H_{AC} de $10e$ y frecuencia $825Hz$, con temperaturas entre 14 y 300 K	11
3.1.	Ajuste CW para Y_2BaCuO_5	12
3.2.	Comparación entre $T(\chi_{max})$ y el máximo de $\frac{d(\chi T)}{dT}$	13
3.3.	Ajuste DSAT para el Y_2BaCuO_5	14
3.4.	Ajustes según el modelo de Curie-Weiss para muestras con distintas concentraciones de Dy	15
3.5.	Datos de C y θ_w para distintas concentraciones de Dy	16
3.6.	Difractogramas correspondientes a la muestra con 1% Dy a 1.6 y 35 K. Se observa el pico magnético a $2\theta \sim 16^\circ$	17
3.7.	Evolución del pico magnético de $\sim 16^\circ$ en función de T para la muestra con 1% de Dy	18
3.8.	Evolución del pico magnético de $\sim 16^\circ$ en función de T para la muestra con 5% de Dy	18
3.9.	Ajuste DSAT para 1% de Dy (trazo rojo)	19
5.1.	Esquema de un suceptómetro AC	27

Capítulo 5

Anexos

5.1. La integral de intercambio

Consideremos dos átomos A y B, con vectores posición \mathbf{r}_1 y \mathbf{r}_2 respectivamente. Suponemos que se encuentran en estados $\varphi(\mathbf{r}_A)$ y $\varphi(\mathbf{r}_B)$, donde φ_A y φ_B son autofunciones de onda espacial normalizadas de los Hamiltonianos de una partícula $H_A\varphi_A = \varepsilon_A\varphi_A$ y $H_B\varphi_B = \varepsilon_B\varphi_B$.

El sistema total de dos átomos presenta un estado degenerado de energía $E_0 = \varepsilon_a + \varepsilon_B$ con: $\phi(1, 2) = \varphi(\mathbf{r}_1)\varphi(\mathbf{r}_2)$ y $P\phi(1, 2) = \varphi(\mathbf{r}_2)\varphi(\mathbf{r}_1)$ ambas autofunciones del Hamiltoniano $H_A + H_B$ y donde P es el operador Permutador de dos electrones. Si suponemos que no existe superposición entre las funciones de onda de átomos independientes, esto es, que $(\varphi(\mathbf{r}_A), \varphi(\mathbf{r}_B)) = 0$, entonces: $\phi(1, 2) = \varphi(\mathbf{r}_1)\varphi(\mathbf{r}_2)$ y $P\phi(1, 2) = \varphi(\mathbf{r}_2)\varphi(\mathbf{r}_1)$ son ortogonales y podemos cambiar de base de manera que obtener autofunciones de P con autovalores ± 1 : $\psi_+^0 = (1/2^{1/2})(1 + P)\phi$ y $\psi_-^0 = (1/2^{1/2})(1 - P)\phi$ donde el subíndice $+(-)$ indica la simetría (antisimetría) de la función respecto a las coordenadas y se encuentran adecuadamente ortonormalizadas.

Si los dos átomos se acercan uno a otro, habrá entre ellos interacción Coulombiana entre los electrones, entre los carozos iónicos y entre cada electrón con respecto al otro y al carozo iónico del otro átomo, tal que:

$$W(\mathbf{r}_A, \mathbf{r}_B, \mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2,) = e_0^2 \left(\frac{1}{|\mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2|} + \frac{1}{|\mathbf{r}_A - \mathbf{r}_B|} - \frac{1}{|\mathbf{r}_A - \mathbf{r}_2|} - \frac{1}{|\mathbf{r}_B - \mathbf{r}_1|} \right) \quad (5.1)$$

suponiendo una carga positiva en la coraza iónica. De esta forma el Hamiltoniano total resulta $H_A + H_B + W$ el cual es simétrico respecto a las coordenadas electrónicas.

Considerando que W es una perturbación de primer orden sobre nuestras viejas funciones de onda, adecuadamente normalizadas, éstas serán una base aceptable del nuevo Hamiltoniano,

$$\psi_{\pm} = \frac{1}{N_{\pm}^{1/2}}(1 \pm P)\phi(1, 2); \text{ donde } N_{\pm} \text{ es el factor de normalización} \quad (5.2)$$

Vemos que el factor de normalización se aleja del hallado en el caso en que no existía superposición entre las funciones de onda, en la nueva situación:

$$N_{\pm} = (\phi, (1 \pm P)^2 \phi) = 2(1 \pm T); \text{ donde } T = (\phi, P\phi) = (\varphi_A, \varphi_B)(\varphi_B, \varphi_A) = |(\varphi_A, \varphi_B)|^2 \quad (5.3)$$

El valor de expectación de la energía en los estados ψ_{\pm} se obtiene de las expresiones anteriores:

$$E_{\pm} = (\psi_{\pm}, (H_A + H_B + W)\psi_{\pm}) = E_0 + (\psi_{\pm}, W\psi_{\pm}) \quad (5.4)$$

$$E_{\pm} = E_0 + \left[\frac{1}{(1 \pm T)} \right] (\phi, W(1 + P)\phi) \quad (5.5)$$

Con lo cual, la diferencia de energía entre los estados simétricos y antisimétricos será:

$$E_+ - E_- = 2J_{AB}, \text{ donde:} \quad (5.6)$$

$$J_{AB} = \left[\frac{1}{1 - T^2} \right] [(\phi, WP\phi) - T(\phi, W\phi)] \quad (5.7)$$

es la llamada *integral de intercambio*.

Ahora bien, recordando que, de acuerdo al Principio de Exclusión de Pauli, la función de onda total del sistema es el producto de la componentes de coordenadas y de espín y es antisimétrica; es necesario multiplicar las funciones de coordenadas simétricas (antisimétrica) por la de espín antisimétrica (simétrica) para mantener correctamente la paridad. Si α y β son las autofunciones ortonormalizadas de la componente z del espín electrónico, y s_z, s_y, s_x, s^+ y s^- los operadores de espín, resulta:

$$s_z \alpha = \frac{1}{2} \alpha; s_y \beta = \frac{1}{2} \beta; s^+ \beta \equiv (s_x + i s_y) \beta = \alpha \quad (5.8)$$

$$s^- \alpha \equiv (s_x - i s_y) \alpha = \beta; s^+ = s^- = 0; \quad (5.9)$$

De manera que sólo es posible una función de espín antisimétrica:

$$\chi_0 = \frac{1}{2^{1/2}} (\alpha(1)\beta(2) - \alpha(2)\beta(1)) \text{ donde: } \mathbf{S}^2 \chi_0 = (s_1 + s_2)^2 \chi_0 = 0; \quad (5.10)$$

mientras que habrá tres funciones χ_1, χ_2 y χ_3 de espín total 1,

$$\chi_1 = \alpha(1)\alpha(2), \chi_3 = \beta(1)\beta(2); \text{ y:} \quad (5.11)$$

$$\chi_2 = \frac{1}{2^{1/2}} (\alpha(1)\beta(2) + \beta(1)\alpha(2)); \quad (5.12)$$

Las cuatro funciones son mutuamente ortogonales y están normalizadas a uno. De esta forma, los la diferencia de energía producto del desdoblamiento de niveles (ecuación 1.4/1.5) puede ser interpretada en términos de la diferencia entre el estado singlete y el triplete.

Podemos referirnos entonces, a un Hamiltoniano de espín efectivo como:

$$H_{eff} = E_0 + K - 2J_{AB}(\mathbf{s}_A \cdot \mathbf{s}_B); \quad (5.13)$$

donde $2(s_A \cdot s_B) = \mathbf{S}^2 - \mathbf{s}_A^2 - \mathbf{s}_B^2$ tiene autovalor $-\frac{3}{2}(\frac{1}{2})$ para $S = 0 (S = 1)$. Comparando con 1.5 resulta:

$$K = \left[\frac{1}{1 - T^2} \right] [(\phi, WP(1 - TP)\phi) - \frac{1}{2}(\phi, W(P - T)\phi)] \quad (5.14)$$

Luego, en el Hamiltoniano efectivo podemos omitir los términos E_0 y K , independientes del espín, ya que aumentan en la misma magnitud la energía del sistema.

5.2. Hamiltonianos Asociados a los distintos modelos magnéticos

A partir del Hamiltoniano general:

$$H = -2 \sum_{i < j} (J_x S_{ix} S_{jx} + J_y S_{iy} S_{jy} + J_z S_{iz} S_{jz}) \quad (5.15)$$

donde nos estamos restringiendo a interacciones entre espines primeros vecinos \mathbf{S}_i y \mathbf{S}_j , podemos diferenciar distintos modelos que dependerán del número de componentes (x, y, z) del espín y es lo que se conoce como *dimensionalidad de espín* y denotaremos por n . Para n dado ($n \geq 1$) podemos diferenciar entre distinto número de componentes en las *interacciones* entre los espines; distintas combinaciones y las denominaciones habituales de los modelos se muestran en la tabla siguiente:

Dimensionalidad de espín	Interacción	Modelo
n=3 $S_x^2 + S_y^2 + S_z^2 = S(S+1)$	$J_x = J_y = J_z$ $J_x = J_y; J_z = 0$ $J_x = J_y = 0; J_z$	Heisenberg XY Z
n=2 $S_x^2 + S_y^2 = S(S+1)$	$J_x = J_y$ $J_x = 0; J_y = 0$	Planar Planar Ising
n=1 $S_z^2 = S(S+1)$	J_z	Ising

5.3. Susceptibilidad AC

El uso de susceptómetros AC para determinar las temperaturas de transición y corrientes críticas en superconductores se remonta a los años 1960, transformándose a finales de los 80 en una herramienta indispensable para el estudio de superconductores de alta temperatura crítica. El interés despertado por el estudio sobre la dinámica de los vidrios de espín durante las décadas del 70 y 80, y el auge de la investigación sobre sistemas de pequeñas partículas magnéticas contribuyó a popularizar el uso de este tipo de equipamiento en los laboratorios de magnetismo. Aunque, en comparación con otras técnicas utilizadas para medir propiedades magnéticas, su uso es desventajoso a la hora de buscar precisión en las medidas, es sumamente conveniente para el estudio de la dinámica de sistemas magnéticos, gracias a que la frecuencia de H_{AC} puede variarse en un rango considerablemente amplio. En una medida de susceptibilidad AC, χ' , se registran los cambios en el momento magnético de la muestra, Δm , que se producen en respuesta a la aplicación de un campo magnético alterno pequeño, H_{AC} . Así:

$$M = \frac{\Delta m}{V} \quad (5.16)$$

es una medida del cambio de magnetización y como:

$$\chi_{AC} = \frac{M}{H_{AC}} \rightarrow \frac{\partial M}{\partial H} \quad (5.17)$$

en el límite H_{AC} pequeño.

En comparación con las técnicas DC, la susceptibilidad AC es la única que permite una medida directa de la susceptibilidad, en lugar de medir el gradiente de la curva de magnetización inicial. Supongamos al campo magnético aplicado alterno AC expresado de la forma (en realidad, el campo será la parte real o imaginaria de la expresión siguiente):

$$H_{AC} = h_0 \exp(i\omega t) \quad (5.18)$$

El momento magnético de la muestra cambiará en respuesta al campo, y la magnetización resultante puede expresarse como:

$$M_{AC} = \chi h_0 \exp(i\omega t) \quad \text{donde:} \quad \chi = \chi_0 \exp(-i\varphi) \quad (5.19)$$

La parte real de χ representa la componente de la susceptibilidad en fase con el campo aplicado, mientras que la parte imaginaria representa la componente fuera de fase y está directamente relacionada con la fracción de la energía entregada por el campo aplicado que es absorbida por la muestra.

Si el material estudiado presenta algún proceso de relajación, el momento magnético inducido no es capaz de seguir al campo de manera instantánea. Esto origina un corrimiento de fase, tal que existe una componente imaginaria diferente de cero. Por tanto, el análisis de ésta permite estudiar fenómenos de relajación en sistemas magnéticos (relajación espin-red en compuestos paramagnéticos, movimiento de paredes en sistemas metamagnéticos, relajaciones en vidrios de espin o en sistemas de pequeñas partículas).

5.3.1. Dispositivo experimental

Un susceptómetro AC se construye colocando una bobina de detección (S1) rodeando la muestra, con la cual se miden los cambios en el flujo magnético a través del voltaje inducido en la misma. Generalmente se coloca una segunda bobina idéntica (S2) pero arrollada de modo que el voltaje inducido esté en contrafase con la anterior. De esta forma el arreglo completo cancela los cambios de flujo originados por la variación temporal de H_{AC} . En ausencia de muestra, y

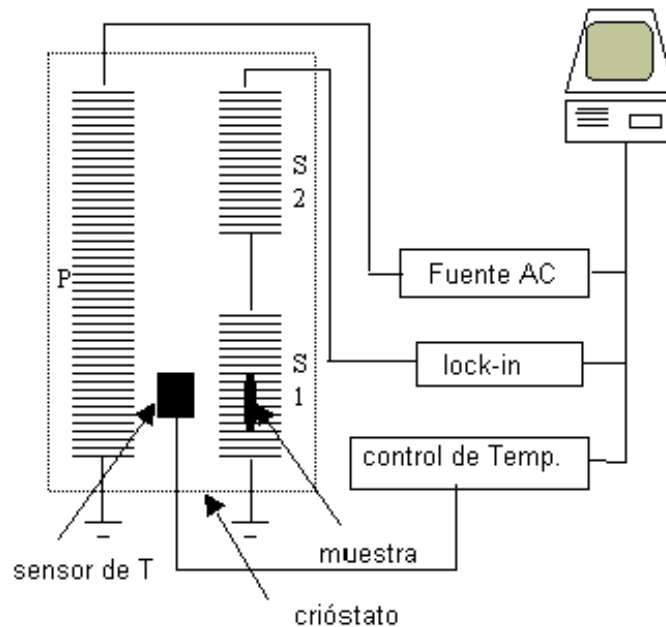


Figura 5.1: Esquema de un susceptómetro AC

suponiendo una compensación completa entre las bobinas, el voltaje detectado será nulo. De esta manera, al colocar la muestra en el centro de una de las bobinas, el voltaje inducido es

directamente proporcional a la susceptibilidad magnética de la misma y se obtiene a partir de:

$$\chi_\nu = \frac{\gamma v}{V f H} \quad (5.20)$$

donde χ_ν es la susceptibilidad volumétrica, γ un coeficiente de calibración, V el volumen de la muestra, H el campo magnético (RMS), f la frecuencia del campo H_{AC} y v el voltaje medido. Las componentes en fase y contrafase del voltaje medido, son proporcionales a las componentes real e imaginaria de la χ .