CÁLCULO DA CONSTANTE DE DUREZA EM SISTEMAS FERROMAGNÉTICOS

Ronaldo Mota
Departamento de Física. Centro de Ciências Naturais e Exatas. UFSM. Santa Maria, RS.

RESUMO

Um modelo de duas bandas para o magnetismo é usado para calcular a constante de dureza em sistemas ferromagnéticos. Uma banda é estreita e degenerada, representando os elétrons "quasi-localizados". A segunda é larga contendo poucos elétrons itinerantes. A susceptibilidade dinâmica transversa é calculada na aproximação de fase randônica (RPA). A partir dos pólos da susceptibilidade dois modos de ondas de spin são obtidos: um modo acústico e um modo óptico. O valor da constante de dureza da onda de spin acústica é essencial para satisfazer o critério de estabilidade ferromagnética em T = OK. Mostra-se que levar em conta o aclopamento de intercâmbio inter-atômico entre elétrons das bandas estreitas é necessário para que a constante de dureza assuma o valor experimental.

SUMMARY

MOTA, R. 1986. Stiffness constant in ferromagnetic systems. Ciência e Natura,8:7-13.

A two-band model for the magnetism is used to calculate the stiffness constant in ferromagnetic systems. One band is narrow and degenerated, representing the "quasi-localized" electrons. The second one is a wide band containing very few itinerant electrons. The transverse dynamical susceptibility is calculated within the random-phase approximation (RPA). The value of the stiffness constant of the acoustical spin wave is essential to satisfy the criterion of ferromagnetic stability at T = OK. From the poles of the susceptibility two spin-wave branches are derived: one acoustic and one optic. It is shown that taking into account the interatomic exchange coupling between electrons of the narrow bands is necessary for the spin-wave stiffness constant to assume the experimental value.

I. INTRODUÇÃO

O estado de menor energia de um sistema ferromagnético pode ser excitado de tal maneira que a densidade de spin eletrônico local possa precessar em torno da direção de equilíbrio da magnetização. Os modos normais dessas precessões são denominados ondas de spin.

Assim sendo, ondas de spin, também chamadas magnons, são excitações elementares de metais ferromagnéticos que surgem além das excitações de partículas simples já tratadas por nós anteriormente (Mota e Coutinho-Filho, 1). Tais excitações estão relacionadas aos pares ligados elétron-buraco e são caracterizados pela dispersão dada pela energia w $(\vec{q})$ como uma função de vetor de onda $\vec{q}$. Para pequenos valores de $\vec{q}$, isto é, magnons de grande comprimento de onda, a relação de dispersão para ferromagnetos é da forma

$$w(\vec{q}) = D\, q^2$$

onde D é a constante de dureza ("stiffness constant") da onda de spin.

Neste trabalho incluiremos na descrição do sistema o termo de interação de intercâmbio inter-atômico, de forma similar ao realizado por Yamada e Shimizu (2) no cálculo de ondas de spin para metais de transição. O fato de termos optado pela inclusão deste termo, e não de outro, está associado à procura de uma solução estável para o estado fundamental ferromagnético do ferro em T = 0K. O termo de interação Coulombiano inter-atômico tenderia a desfavorecer o ferromagnetismo, tornando o estado fundamental ferromagnético mais instável ainda.

Para tornar positivo o sinal da constante de dureza das ondas de spin, critério de estabilidade para a solução ferromagnética, existem dois mecanismos principais: a inclusão do termo de intercâmbio inter-atômico e a consideração de hibridização com as bandas sp, como mostrado por Muniz (3). Optamos no presente trabalho pelo primeiro caminho, porém, é provável que o segundo mecanismo também contribua no mesmo sentido no que diz respeito ao sinal de D_{ac}. Como ressaltado anteriormente, o problema do caminho escolhido é que o termo de interação de intercâmbio inter-atômico é muito difícil de ser calculado a priori, e portanto, o tratamento usual finda sendo quando possível, o ajuste deste parâmetro afim de reproduzir o valor conhecido de D_{ac}.

II. HAMILTONIANO MODELO

O Hamiltoniano modelo pode ser escrito na forma

$$H = \sum_{ij\sigma\alpha} T^{\alpha}_{ij} c^{\alpha+}_{i} c^{\alpha}_{j} + 1/2 \sum_{i\sigma\alpha} U_{\alpha} n_{i\alpha} n_{i-\alpha} - 2J_{IL} \sum_{i} \vec{S}^{I}_{i} . \vec{S}^{L}_{i} - 2J \sum_{i<j} \vec{S}^{L}_{i} . \vec{S}^{L}_{j}, \qquad (1)$$

onde $c^{\alpha}_{i\sigma}$ $(c^{\alpha+}_{i\sigma})$ é o operador aniquilação (criação) para um elétron de spin no sítio i e banda α, $n^{\alpha}_{i\sigma}$ e $\vec{S}^{\alpha}_{i}$ são o número ocupação e operadores de spin destes elétrons, respectivamente, T_{ij} são a representação de Wannier das bandas dos elétrons, U_{α} são os acoplamentos coulombianos intra-bandas, J_{IL} é o acoplamento de intercâmbio entre elétrons itinerantes de uma banda larga I (largura Δ) e elétrons "quasi-localizados" de uma banda estreita degenerada L (largura ℓ), e J é o acoplamento de intercâmbio inter-atômico entre elétrons da banda estreita.

A característica mais importante de nosso modelo é que ambos os elétrons, itinerantes e quasi-localizados, são governados pelo mesmo nível de Fermi, uma característica a ser preservada em sistemas de elétrons d itinerantes.

Hamiltoniano similar a (1) foi utilizado por Mota e Coutinho-Filho (1) para descrever o modelo de duas bandas para o magnetismo do Fe e tendo sido obtido excelentes resultados em comparação com vários dados experimentais, tanto para baixas como altas temperaturas.

Para o caso em que a largura da banda degenerada estreita se aproxima de zero, os elétrons quasi-localizados tornam-se estritamente localizados e o spin S = 1 localizado surge e o modelo torna-se idêntico ao de Edwards (4).

III. ESPECTRO DE ONDAS DE SPIN

Ondas de spin, entendidas como excitações coletivas do sistema, estão associadas aos zeros do denominador da susceptibilidade dinâmica transversa, a qual precisa portanto ser obtida inicialmente.

Para simplificar os cálculos assumiremos bandas do tipo parabólicas e a aproximação de massa efetiva. Além disso, assumiremos estados de um elétron na banda I e dois na banda degenerada L. Os valores de

$\langle n^{\alpha}\rangle = 1/N \, \Sigma_{\sigma} \, n^{\alpha}_{k\sigma}\rangle$, i.e., $\langle n^{I}\rangle = 0.5$ e $\langle n^{L}\rangle = 2.0$,

são tomados de dados de aniquilação de pósitron em Fe (Johnson, 5). Os remanescentes quatro elétrons pertencem às bandas T_{2g} e não são relevantes em nossa análise. Da solução paramagnética em T = 0 encontramos a relação $m_I^*\Delta = m_L^*\Delta = (9\pi^2\sqrt{2})^{2/3}(n/a)^2$, onde a é a constante de rede do Fe bcc e a posição relativa das bandas é fixada. No estado ferromagnético em T = 0 temos $\Sigma\sigma(\langle n^I_\sigma\rangle + \langle n^L_\sigma\rangle) = 2.2$ e $\langle n^L_\downarrow\rangle = 0$, resultando $\langle n^L_\uparrow\rangle = 2.0$, $\langle n^I_\uparrow\rangle = 0.35$ e $\langle n^I_\downarrow\rangle = 0.15$.

Os parâmetros são tais a colocar o nível de Fermi acima da banda L no estado ferromagnético T = 0.

A susceptibilidade dinâmica do sistema pode então ser expresso por

$$\chi_{-+}(q,w) = \frac{\left[\chi^{I}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} + \left[\chi^{L}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} + 2J_{IL}}{\left[\chi^{L}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1}\left[\chi^{I}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} - J^{2}_{IL}} \qquad (2)$$

onde

$$\left[\chi^{I}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} = \left[\chi^{0I}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} - U_I,$$

$$\left[\chi^{L}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} = \left[\chi^{0L}_{-+}(\vec{q},w)\right]^{-1} - \left[U_L + J(\vec{q})\right]$$

e

$$\chi^{0\alpha}_{-+}(\vec{q},w) = (1/N)\sum_{\vec{k}} \left[(<n^{\alpha}_{\vec{k}+q,\downarrow}> - <n^{\alpha}_{\vec{k},\uparrow}>)/(w + \varepsilon^{\alpha}_{\vec{k}} - \varepsilon^{\alpha}_{\vec{k}+\vec{q}} - \Delta_{\alpha})\right],$$

com

$$\Delta_{\alpha} = w^{\alpha}_{0\downarrow} - w^{\alpha}_{0\uparrow}$$

sendo o "splitting" de intercâmbio entre as bandas.

Como mostrado por Herring (6), o zero no denominador da eq (2) fornece o espectro de energias de excitações coletivas do sistema. Dessa maneira, os polos $\chi_{-+}(\vec{q},w)$ geram dois modos de ondas de spin, resultando um modo acústico e um modo óptico. A dependência em q das ondas de spin dos dois modos podem ser obtidas em ordem q^2.

A expressão resultante para o modo acústico (w_{ac}) é similar à obtida por Yamada e Shimizu (2) utilizando o método de modos normais na aproximação RPA. É também concordante com a expressão obtida por Adamowicz (7) para o caso em que a banda estreita é assumida no limite atômico ($\ell=0$), representando os elétrons d estritamente localizados.

O modo acústico resulta

$$w_{ac} = D_{ac}\, q^2 \tag{3}$$

onde D_{ac}, a constante de dureza das ondas de spin é expressa por

$$D_{ac} = \frac{J_0\, a^2\, \Delta n_L^2}{n_I + \Delta n_L} + \frac{1}{3(\Delta n_I + \Delta n_L)}\left[\frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} \frac{n^I_{\vec{k}\uparrow} + n^I_{\vec{k}\downarrow}}{2}\nabla^2 \varepsilon^I_{\vec{k}} + \right.$$

$$\left. - \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} \frac{n^I_{\vec{k}\uparrow} - n^I_{\vec{k}\downarrow}}{\Delta_I}(\nabla\varepsilon^I_{\vec{k}})^2\right] + \frac{1}{3(\Delta n_I + \Delta n_L)}\,\cdot$$

$$\cdot\left[(\frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} \frac{n^L_{\vec{k}\uparrow} + n^L_{\vec{k}\downarrow}}{2}\nabla^2 \varepsilon^L_{\vec{k}} - \frac{1}{N}\sum_{\vec{k}} \frac{n^L_{\vec{k}\uparrow} - n^L_{\vec{k}\downarrow}}{\Delta_L}\nabla\varepsilon^L_{\vec{k}})^2\right] \tag{4}$$

onde J_0 é a constante de acoplamento entre vizinhos mais próximos e a é a constante de rede.

O modo óptico pode ser escrito na forma

$$w_{op} = w^0_{op} - D_{op}\, q^2 . \tag{5}$$

Embora este modo ainda não tenha sido estudado em suficiente detalhes, existem evidências experimentais de que o mesmo existe e interage com o acústico para vetores de onda suficientemente grandes (Cooke et ali, 8).

IV. CÁLCULO DA CONSTANTE DE DUREZA

Utilizando a parametrização proposta neste trabalho, obtêm-se, a partir da eq. (4),

$$D_{ac} = 23.962\ J_o\ 10^{-39} + \frac{1}{6.6}\left(0.009\ \Delta + 2.070\ \ell + \right.$$

$$\left. - \frac{10.950\ \ell^2}{2.0\ U_L + 16\ J_o + 0.022\ \Delta - 0.02\ U_I}\right) 10^{-39} \qquad (6)$$

sendo D_{ac} expresso em Jm^2 e ℓ, Δ, U_I, U_L e J_o em eV.

O nosso interesse é encontrar um conjunto de parâmetros que satisfaça ao mesmo tempo o valor conhecido de D_{ac} em T = 0 para o ferro, $D_{ac} = 0.5024.10^{-39} Jm^2$ (Stringfellow, 9), a partir da eq. (6) e outros resultados experimentais, tais como a temperatura crítica de Curie (T_c = 1044 K) e o momento magnético em T = OK (2.2 μ_B/átomo).

A tabela I mostra o valor resultante de D_{ac}, em T=OK, calculado a partir da eq. (4), assumindo sem interação inter-atômica. (J_o = 0), para cada conjunto de parâmetros satisfazendo os valores experimentais citados acima.

TABELA 1 - TABELA MOSTRANDO OS RESULTADOS NUMÉRICOS OBTIDOS PARA D_{ac} EM T = OK PARA CADA CONJUNTO DE PARÂMETROS CONCORDANTES COM OS RESULTADOS EXPERIMENTAIS. D_{ac} EM $J\ m^2$ E OS DEMAIS EM eV. J_o = 0

ℓ	Δ	U_I	J_{IL}	U_L	$D_{ac}(10^{-39})$
0.70	10.00	0.200	1.080	0.429	-0.524
1.00	10.00	0.200	1.080	0.626	-0.803
2.00	7.50	0.200	0.805	1.312	-1.745

Pode-se observar da Tab. I que para nenhum conjunto de parâmetros abtêm-se valores positivos de D_{ac}, muito menos concordantes com o valor experimental conhecido. O fato de termos encontrado valores negativos para D_{ac} implica ser o estado fundamental ferromagnético instável em T = OK para quando não se toma em conta a interação inter-atômica para o ferro.

Considerando o termo de acoplamento de intercâmbio inter-atômico vários conjuntos de parâmetros são obtidos, para os quais, sem este termo, não se obteve valores satisfatórios para D_{ac}. A introdução da interação de intercâmbio inter-atômico alimina a instabilidade do estado fundamental ferromagnético em T = OK para o nosso modelo. A Tab. II mostra os resultados obtidos, a partir da eq. (4).

TABELA II - TABELA MOSTRANDO OS RESULTADOS NUMÉRICOS OBTIDOS PARA D_{ac} EM T = OK PARA CADA CONJUNTO DE PARÂMETROS CONCORDANTES COM OS RESULTADOS EXPERIMENTAIS. D_{ac} EM J m^2 e OS DEMAIS EM eV.

ℓ	Δ	U_I	J_{IL}	U_L	J_0	$D_{ac}(10^{-39})$
0.70	10.00	0.200	1.080	0.086	0.043	0.5024
1.00	10.00	0.200	1.080	0.190	0.054	0.5024
2.00	7.50	0.000	0.825	0.560	0.094	0.5024
0.20	5.00	0.000	0.550	0.010	0.024	0.5024

V. CONCLUSÕES

A contradição acerca da estabilidade do sistema em T = OK surge por estarmos trabalhando com dois critérios diferentes. O primeiro deles, muito usual, que nos gerou a temperatura crítica,o qual é essencialmente o critério de Stoner modificado, e o segundo o cálculo da constante de dureza das ondas de spin, pelo qual o sistema ferromagnético somente seria estável para $D_{ac}>0$. Katsuki e Wohlfarth (9) trataram esta questão conferindo especial atenção à relação das propriedades magnéticas dos metais com os valores de D_{ac}. Mostraram também que é possível que através do critério de Stoner o sistema apresentar estabilidade ferromagnética, enquanto esse estado fundamental é realmente instável. Eles concluíram ser o critério da constante de dureza mais forte do que o de Stoner, e portanto a estabilidade do sistema deve ser determinada pelo sinal de D_{ac}, sendo estável se $D_{ac} > 0$ e instável se $D_{ac} < 0$.

Outros trabalhos, como o de Wakoh et al (10) aplicaram a teoria de Yamada e Shimizu (2), sem levar em conta o termo inter-atômico, encontrando resultados negativos ou muito pequenos para D_{ac}. Outros trabalhos nesta linha (Thompson e Myers, 11; Thompson e Mook, 12; George e Thompson, 13) também não encontraram para o ferro resultados satisfatórios.

No presente trabalho, utilizando técnicas de funções de Green, as excitações de uma partícula do sistema foram calculadas na aproximação Hartree-Fock e a susceptibilidade dinâmica transversa do sistema foi calculada na aproximação RPA. O espectro de ondas de spin foi calculado obtendo-se dois modos em ordem q^2 para longo comprimento de onda, um modo acústico e um modo óptico.

Os cálculos da constante de dureza das ondas de spin foram realizados, utilizando o modelo proposto, a partir dos conjuntos de parâmetros concordantes com o valor do momento magnético em T = OK e com o valor da temperatura crítica.

Mostrou-se, por fim, que sem levarmos em conta os termos de interação inter-atômica nenhum conjunto de parâmetros razoável foi encontrado. A inclusão deste termo implicou em obtermos vários conjuntos de parâmetros satisfatórios, evidenciando portanto o papel fundamental desempenhado pela interação inter-atômica para eliminar a suposta instabilidade do estado fundamental ferromagnético em T = OK encontrada por alguns autores.

AGRADECIMENTOS

Este trabalho foi parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico (CNPq).

BIBLIOGRAFIA CITADA

1. MOTA, Ronaldo & Coutinho-FILHO, M.D. Phys. Rev. B 33: 7724-7728. 1986; MOTA, Ronaldo & COUTINHO-FILHO, M.D. Journal of Magnetism and Magnetic Materials 54: 987-988, 1986.
2. YAMADA, H. & SHIMIZU, M. Journal of the Physical Society of Japan 22: 1404-1411, 1967.
3. MUNIZ, R.B. Tese de Doutorado, Departament of Mathematics, Imperial College of Science and Technology (não publicada).
4. EDWARDS, D.M. J.Phys. F12: 1789-1796, 1982.
5. JOHNSON, O. Phys, Stat. Sol.(b) 99: 745-756, 1980.
6. HERRING, C. Magnetism. New York, Academic Press, 1966. 470p.
7. ADAMOWICZ, L. J.Phys. F. Metal Physics: 2401-2412, 1977.
8. COOK, J.F., LYNN, J.N., DAVIS, H.L. Phys Rev. B 21: 4118-4130, 1980.
9. KATSUKI, A. & WOHLFARTH, E.P. Proc. Roy. Soc. 295: 182-193, 1966.
10. WAKOH, S., EDWARDS, D.M., WOHLFARTH, B.P. Physique 32 Cl: 1073-1084, 1971.
11. THOMPSON, E.D. & MYERS, J.J. Phys. Rev. 153: 574-582, 1967.
12. THOMPSON, E.D. MOOK, H.A. J. Appl. Phys. 41: 1227-1236, 1970.
13. GEORGE, P.K. & THOMPSON, E.D. Intern. J. Mag. 1: 35-43, 1970.

Recebido em outubro, 1986; aceito em outubro, 1986.