UNIVERSIDADE FEDERAL DE SANTA CATARINA
CENTRO DE CIÊNCIAS FÍSICAS E MATEMÁTICAS
CURSO DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICO-QUÍMICA

DETERMINAÇÃO DA FRONTEIRA DE FASE PARAMAGNÉTICA DE ANTIFERROMAGNETOS ANISOTRÓPICOS NUM CAMPO COM DIREÇÃO ARBITRÁRIA.

Tese submetida a Universidade Federal de Santa Catarina para a obtenção do título de "Mestre em Ciências".

MARCOS VINÍCIUS PIRES DE SOUZA

FLORIANÓPOLIS
SANTA CATARINA - BRASIL
1987

DETERMINAÇÃO DA FRONTEIRA DE FASE PARAMAGNÉTICA DE ANTIFERROMAGNETOS ANISOTRÓPICOS NUM CAMPO COM DIREÇÃO ARBITRÁRIA.

MARCOS VINÍCIUS PIRES DE SOUZA

ESTA TESE FOI JULGADA E APROVADA EM SUA FORMA FINAL PELO ORIENTADOS E MEMBROS DA BANCA EXAMINADORA.

PROF. Dr. WAGNER FIGUEIREDO
ORIENTADOR

PROF. Dr. HÉDIO JOSÉ MÜLLER
COORDENADOR

BANCA EXAMINADORA:

PROF. Dr. WAGNER FIGUEIREDO

PROF. DR. FREDERICO FIRMO DE SOUZA CRUZ

PROF. Dr. JÜRGEN F. STILCK

PROF. Dr. VITOR HUGO FERREIRA DOS SANTOS

AGRADECIMENTO

Aos meus pais Sebastião e Célia pelo amor e incentivo.

À minha família pelo amparo indispensável.

Ao Professor Wagner Figueiredo pela orientação e amizade.

Aos colegas e amigos da UFSC pelo apoio

Aos orgãos financiadores CAPES e CNPq.

Dedico à Thais e Maíra pelo amor e compreensão e à José Gonçalves e José Camilo pelo exemplo de vida.

RESUMO

A fronteira de fase paramagnética de antiferromagnetos anisotrópicos, num campo paralelo ao eixo fácil, tem sido objeto de várias investigações teóricas e experimentais nos últimos anos. No caso de anisotropias uniaxiais, é bem estabelecido que o campo crítico varia assintóticamente com a temperatura de acordo com a lei $T^{3/2}$. Entretanto, caso o campo seja aplicado perpendicularmente ao eixo fácil, resultados teóricos e experimentais mostram que para o $NiCl_2.4H_2O$, a dependência do campo crítico com a temperatura segue uma lei to tipo T^2. Neste trabalho verificamos qual é o comportamento assintótico do campo crítico com a temperatura, à medida que a direção do campo externo varia em relação ao eixo fácil. Mostramos que para antiferromagnetos uniaxiais a forma assintótica do campo crítico com a temperatura depende crucialmente do ângulo que o campo magnético forma com o eixo fácil e da magnitude da anisotropia. Para resolver este problema, utilizamos a técnica das funções de Green , aplicada aos operadores de criação e destruição de ondas de spin em baixas temperaturas. Nossos resultados são aplicados para algumas fronteiras de fase de antiferromagnetos representativos.

ABSTRACT

The paramagnetic phase boundary of anisotropic antiferromagnets, with the field parallel to the easy axis, has been subject of several theoretical and experimental investigations in the last years. For uniaxial anisotropies, it is well stablished that the critical field depends asymptotically on temperature according a $T^{3/2}$ - law. Meanwhile, if the field is applied perpendicularly to the easy axis, theoretical and experimental results for the uniaxial antiferromagnet $NiCl_2.4H_2O$, show an asymptotic T^2 - dependence of the paramagnetic critical field. In this work we determine the asymptotic behavior of the critical field, as we change the direction of the external field relative to the easy axis. We show that for uniaxial antiferromagnets the asymptotic dependence on temperature of the critical field depends on the angle between the field and the easy axis, as on the value of the anisotropy parameter and on absolute temperature. We use the Green's function formalism applied to the operators of creation and destruction of spin waves at very low temperatures. Our results are applied to some phase boundaries of representative antiferromagnets.

ÍNDICE

I N T R O D U Ç Ã O

O diagrama de fase característico de um antiferromagneto uniaxial, com duas subredes e pequena anisotropia, é apresentado na figura abaixo, onde o campo magnético externo (H) é aplicado ao longo da direção de fácil magnetização do cristal.

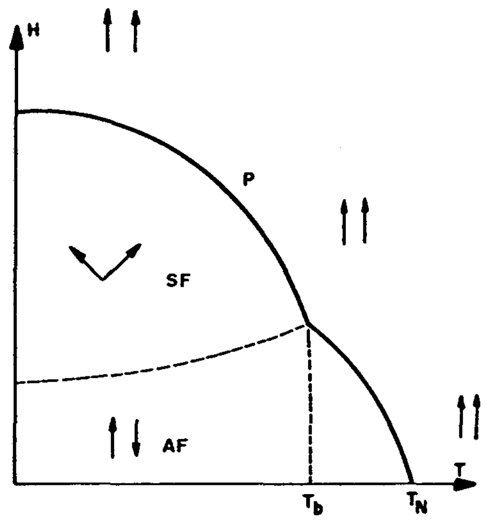

Figura 1 - Diagrama de fase típico de um antiferromagneto de baixa anisotropia com o campo paralelo ao eixo fácil cristalino.

Para temperaturas abaixo da temperatura de transição T_N (Temperatura de Néel) e campos magnéticos suficientemente pequenos, os spins nas duas subredes são alinhadas paralela ou antiparalelamente em relação ao campo, a menos de pequenas flutuações térmicas relativamente a estas posições de equilíbrio: esta é a chamada fase antiferromagnética. Se aumentarmos o campo magnético, para temperatura menores que T_b (Temperatura do ponto bicrítico), o sistema sofre inicialmente uma transição de fase, com os spins das subredes girando em relação ao campo, formando ângulos de aproximadamente 90^{o} relativamente a este. Essa rotação dos spins é chamada de transição spin-flop. Com essa transição o antiferromagneto passa da fase antiferromagnética para a fase spin - flop e, nesta fase, as magnetizações das subredes formam um mesmo ângulo com o campo magnético. Esse ângulo diminui à medida que o campo magnético aumenta, ocorrendo uma nova transição de fase quando as magnetizações das subredes se alinham completamente com o campo magnético, e o sistema passa da fase spin-flop para a fase paramagnética. Para temperaturas maiores que T_b pode ocorrer ainda uma transição de fase entre as fases antiferromagnética e paramagnética. No entanto, quando o campo magnético é aplicado perpendicularmente ao eixo fácil de magnetização, temos apenas duas fases: spin-flop e paramagnética, conforme podemos observar na figura abaixo.

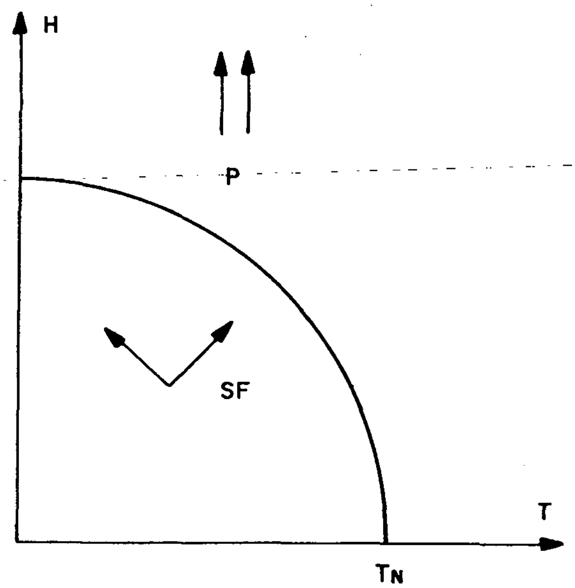

Figura 2 - Diagrama de fase típico de um antiferromagneto de baixa anisotropia com o campo ortogonal ao eixo fácil cristalino.

Neste trabalho pretendemos estudar a transição spin-flop-paramagnética associada à Hamiltoniana dada pela equa ção (I-1) do Capítulo I. Essa fronteira de fase, no caso de campo magnético externo aplicado ao longo do eixo de fácil magnetização, tem sido objeto nos ultimos anos de investigações teoricas e experimentais.[1-4] A dependência do campo crítico paramagnético com a temperatura é da forma $T^{3/2}$ para anisotropias uniaxiais e T^2 para anisotropias ortorrômbicas. Se o campo magnético for aplicado perpendicularmente ao eixo fácil, resultados teoricos e experimentais[5] indicam que, pelo menos para o antiferromagneto $NiCl_2.4H_2O$, a dependência do campo crítico com a temperatura é da forma T^2.

Não vamos apresentar em detalhes as origens dos termos anisotrópicos que surgem na Hamiltoniana modelo, visto que este assunto é na realidade um capítulo à parte no estudo dos sistemas magnéticos. Ressaltamos apenas que J_1 e J_2, são respectivamente, as interações de intercâmbio anisotrópicas entre primeiros e segundos vizinhos; D a anisotropia uniaxial de íon único e E a anisotropia ortorrômbica de íon único. Um estudo detalhado de como Hamiltonianas efetivas de spin como a considerada neste trabalho, podem ser deduzidas a partir de primeiros princípios, pode ser encontrado no livro de White.[6]

Neste trabalho restringiremos nosso estudo apenas à transição spin-flop - paramagnética na região de baixas temperaturas. Para isto, o procedimento utilizado será a aplicação da teoria de ondas de spin aos sistemas antiferromagnetos, expressando os operadores de spin da Hamiltoniana modelo, em termos de operadores de criação (a^+) e destruição (a) de desvios de spin em cada ponto da rede, de acordo com as transformações de Holstein e Primakoff. Tomaremos apenas a expressão até termos da ordem 1/S, que é justificável por estarmos trabalhando em baixas temperaturas. À partir disso, aplicamos o método das funções de Green[7] para obter certas funções de correlação de interesse, e o espectro de energia das excitações de ondas de spin na fase paramagnética. Através do conhecimento do espectro de energia, podemos determinar a fronteira crítica entre as fases spin-flop e paramagnética.

No capítulo I deste trabalho estudamos a transição de fase spin flop - paramagnética de um antiferromagneto com anisotropias ortorrômbicas e com um campo magnético externo aplicado em cada uma das três direções (x,y e z) do cristal. No Capítulo II, considerando a mesma Hamiltoniana modelo do capítulo anterior, determinamos o campo crítico para a transição spin flop-paramagnética em função da temperatura e do ângulo θ que o campo magnético forma com o eixo de fácil magnetização z e, finalmente, no capítulo III discutimos os resultados obtidos nos capítulos anteriores onde analisamos ainda as fronteiras de alguns antiferromagnetos.

CAPÍTULO I

FRONTEIRA DE FASE SPIN FLOP - PARAMAGNÉTICA EM UM ANTIFERROMAGNETO ANISOTRÓPICO

Neste capítulo estudamos a transição de fase spin flop - paramagnética de um antiferromagneto com anisotropias ortorrômbicas. Devido à simetria da Hamiltoniana, determinamos os campos críticos em função da temperatura nas três direções cristalinas fisicamente distintas. Consideramos a seguinte Hamiltoniana modelo:

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J_1^x S_\alpha^x S_\beta^x + J_1^y S_\alpha^y S_\beta^y + J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z \right] + \sum_{(\alpha,\delta)} \left[J_2^x S_\alpha^x S_\delta^x + J_2^y S_\alpha^y S_\delta^y + J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z \right] + \sum_\alpha D (S_\alpha^z)^2 + \sum_\alpha E \left[(S_\alpha^x)^2 - (S_\alpha^y)^2 \right] - \mu \sum_\alpha \vec{H} \cdot \vec{S}_\alpha \qquad (I.1)$$

sendo J_1 e J_2, respectivamente, as interações de intercâmbio anisotrópicas entre primeiros e segundos vizinhos de uma rede cúbica simples; $D < 0$ a anisotropia uniaxial de íon único ; E a anisotropia ortorrômbica de íon único e H o campo magnético externo. Na equação acima, $\mu = g\mu_B$, onde g é o fator de Landé e μ é o chamado magneton de Bohr. Estamos levando em conta também os segundos vizinhos, pois essa interação é significativa em alguns sistemas antiferromagnéticos. Vamos tomar o campo magnético externo aplicado em cada uma das três direções do cristal. Inicialmente, consideramos H paralelo ao eixo z que é tomada como sendo o eixo de fácil magnetização do cristal. Nas duas outras seções desse capítulo determinaremos o campo crítico nas direções não equivalentes x e y.

1 - CAMPO PARALELO AO EIXO FÁCIL z

Definindo-se os seguintes operadores apropriados para o eixo de quantização z,

$$S_\alpha^{\pm} = S_\alpha^x \pm i S_\alpha^y \quad , \tag{I.2}$$

e levando-os na equação (1), esta pode ser escrita na seguinte forma:

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J_1^a (S_\alpha^+ S_\beta^+ + S_\alpha^- S_\beta^-) + J_1^b (S_\alpha^+ S_\beta^- + S_\alpha^- S_\beta^+) + J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z \right] +$$

$$\sum_{(\alpha,\delta)} \left[J_2^a (S_\alpha^+ S_\delta^+ + S_\alpha^- S_\delta^-) + J_2^b (S_\alpha^+ S_\delta^- + S_\alpha^- S_\delta^+) + J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z \right] + D \sum_\alpha (S_\alpha^z)^2 +$$

$$\frac{E}{2} \sum_\alpha \left[(S_\alpha^+)^2 - (S_\alpha^-)^2 \right] - \mu H \sum_\alpha S_\alpha^z \quad , \tag{I.3}$$

onde definimos que:

$$J_{1,2}^{a,b} = \frac{1}{4} \left(J_{1,2}^x \mp J_{1,2}^y \right). \tag{I.4}$$

Introduzimos a seguir a representação de H-P[8] (Holstein e Primakoff), ou seja,

$$\begin{aligned} S_\alpha^+ &= (2S)^{1/2} f_\alpha(S)\, a_\alpha \quad , \\ S_\alpha^- &= (2S)^{1/2} a_\alpha^+ f_\alpha(S) \quad , \\ S_\alpha^z &= S - a_\alpha^+ a_\alpha \quad , \\ f_\alpha(S) &= \left(1 - \frac{a_\alpha^+ a_\alpha}{2S} \right)^{1/2} \quad , \end{aligned} \tag{I.5}$$

sendo a_α^+ e a_α, respectivamente, os operadores de criação e destruição de desvios de spin em cada ponto α da rede. Na região de baixas temperaturas que estamos considerando neste trabalho , $1/2S < a_\alpha^+ \; a_\alpha> << 1$, é possível fazer uma expansão do operador $f_\alpha(S)$ em função de S^{-1}, ou seja,

$$f_\alpha(S) = 1 - \frac{\rho}{4S} n_\alpha \quad ,$$

onde

$$\rho = 1 + \frac{1}{8S} + \frac{1}{32S^2} + \dots \quad ,$$

que pode ser escrito na forma

$$\frac{\rho}{4S} = 1 - \xi \quad ,$$

onde

$$\xi^2 = 1 - \frac{1}{2S} \quad .$$

Portanto, podemos escrever que

$$f_\alpha(S) = 1 - (1-\xi) n_\alpha \quad ,$$

onde

$$n_\alpha = a_\alpha^+ a_\alpha \quad .$$

Efetuando-se uma tranformada de Fourier para os operadores a_α e a_α^+ , ou seja,

$$a_{\alpha} = N^{-1/2} \sum_{\vec{k}} a_{\vec{k}}\, e^{i\vec{k}\cdot\vec{\alpha}} \tag{I.6}$$

e

$$a^{+}_{\alpha} = N^{-1/2} \sum_{\vec{k}} a^{+}_{\vec{k}}\, e^{-i\vec{k}\cdot\vec{\alpha}} \quad , \tag{I.7}$$

obtemos que:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_4 \tag{I.8}$$

sendo

$$\mathcal{H}_0 = \frac{1}{2} N z_1 S^2 J_1^z + \frac{1}{2} N z_2 S^2 J_2^z + N S^2 D - N S \mu H \, , \tag{I.9}$$

$$\mathcal{H}_2 = \sum_{\vec{k}} \Big\{ \Big[2 z_1 S J_1^b \gamma_{\vec{k}} - z_1 S J_1^z + 2 z_2 S J_2^b \gamma'_{\vec{k}} - z_2 S J_2^z + D(1-2S) + \mu H \Big] . \, a^{+}_{\vec{k}} a_{\vec{k}} + \Big[z_1 S J_1^a \gamma_{\vec{k}} + z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec{k}} + S \xi E \Big] . \left(a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}} + a^{+}_{\vec{k}} a^{+}_{-\vec{k}} \right) \Big\} \; , \tag{I.10}$$

$$\mathcal{H}_4 = -\frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2, \vec{k}_3} \Big\{ \Big[2 z_1 S J_1^b (\gamma_3 + \gamma_{3+2-1}) - 2 z_1 S J_1^z \gamma_{1-2} + 2 z_2 S J_2^b (\gamma'_3 + \gamma'_{3+2-1}) - 2 z_2 S J_2^z \gamma'_{1-2} - 4SD \Big] . \, a^{+}_{3+2-1} a^{+}_1 a_2 a_3 + \Big[(2 z_1 S J_1^a \gamma_3 + 2 z_2 S J_2^a \gamma'_3 + 2ES) a^{+}_{1+2+3} a_1 a_2 a_3 \Big] + \Big[(2 z_1 S J_1^a \gamma_{3-2-1} + 2 z_2 S J_2^a \gamma'_{3-2-1} + 2ES) \Big] a^{+}_{3-2-1} a^{+}_1 a^{+}_2 a_3 \Big\} \; . \tag{I.11}$$

Em H_4 estão sendo considerados termos até ordem 1/S; parte da correção em ordem maior que 1/S está contida em $\mathcal{H}_2$ nos termos que dependem de D e E. Na expressão anterior,

$$\gamma_{\vec{K}} = \frac{1}{z_1} \sum_{\vec{\delta}} e^{-i\vec{K}\cdot\vec{\delta}}$$

e (I.12)

$$\gamma'_{\vec{K}} = \frac{1}{z_2} \sum_{\vec{\delta}'} e^{-i\vec{K}\cdot\vec{\delta}'}$$

são, respectivamente, os fatores de estrutura para os primeiros e segundos vizinhos, sendo que os índices numéricos em H_4 representam os vetores de onda correspondentes, ou seja, $1 \to \vec{K}_1$, $2 \to \vec{K}_2$ e $3 \to \vec{K}_3$.

Utilizamos aqui o método das funções de Green no espaço recíproco aplicado aos operadores de criação e destruição de ondas de spin. Uma discussão mais detalhada deste método pode ser encontrada nos trabalhos de Zubarev[9], e Queiroz.[10]

Partindo-se da equação de movimento para a transformada de Fourier da função de Green $\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle$,

$$E\langle\langle a_{\vec{\lambda}};a^{+}_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_E = \frac{1}{2\pi}\langle[a_{\vec{\lambda}},a^{+}_{\vec{\lambda}'}]\rangle + \langle\langle[a_{\vec{\lambda}},H];a^{+}_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_E \quad , \qquad \text{(I.13)}$$

e levando-se em conta que

$$[a_{\vec{\lambda}}, a_{\vec{\lambda}'}] = 0$$

e (I.14)

$$[a_{\vec{\lambda}}, a^{+}_{\vec{\lambda}'}] = \delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'} \quad ,$$

obtemos que

$$\mathcal{E}\langle\langle a_{\vec\lambda}; a^+_{\vec\lambda'}\rangle\rangle_{\mathcal{E}} = \frac{1}{2\pi}\delta_{\vec\lambda\vec\lambda'} + \langle\langle A_{\vec\lambda}\, a_{\vec\lambda} + B_{\vec\lambda}\, a^+_{-\vec\lambda} - \sum_{\vec k_1,\vec k_2}\Big[C_{\vec\lambda}\, a_1 a_2 a_{\lambda-1-2} +$$

$$D_{\vec\lambda}\, a^+_1 a^+_2 a_{\lambda+1+2} + E_{\vec\lambda}\, a^+_{1-2-\lambda} a^+_2 a_1 + F_{\vec\lambda}\, a^+_{2-\lambda-1} a^+_1 a_2 + G_{\vec\lambda}\, a^+_1 a_2 a_{\lambda+1-2} +$$

$$H_{\vec\lambda}\, a^+_{1+2-\lambda} a_2 a_1\Big]; a^+_{\vec\lambda'}\rangle\rangle_{\mathcal{E}} \quad , \qquad \text{(I.15)}$$

onde

$$A_{\vec\lambda} = 2z_1 S J_1^b \gamma_{\vec\lambda} - z_1 S J_1^z + 2z_2 S J_2^b \gamma'_{\vec\lambda} - z_2 S J_2^z + D(1-2S) + \mu H,$$

$$B_{\vec\lambda} = 2z_1 S J_1^a \gamma_{\vec\lambda} + 2z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec\lambda} + E\xi S,$$

$$C_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\left(2z_1 S J_1^a \gamma_{\lambda-1-2} + 2z_2 S J_2^a \gamma'_{\lambda-1-2} + 2ES\right),$$

$$D_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\left(2z_1 S J_1^a \gamma_{\vec\lambda} + 2z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec\lambda} + 2ES\right),$$

$$E_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\left(2z_1 S J_1^a \gamma_{1-2-\lambda} + 2z_2 S J_2^a \gamma'_{1-2-\lambda} + 2ES\right), \qquad \text{(I.16)}$$

$$F_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\left(2z_1 S J_1^a \gamma_{2-1-\lambda} + 2z_2 S J_2^a \gamma'_{2-1-\lambda} + 2ES\right),$$

$$G_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\Big[2z_1 S J_1^b(\gamma_{\vec\lambda} + \gamma_{\lambda+1-2}) - 2z_1 S J_1^z \gamma_{1-2} + 2z_2 S J_2^b(\gamma'_{\vec\lambda} + \gamma'_{\lambda+1-2}) -$$

$$2z_2 S J_2^z \gamma'_{1-2} - 4SD\Big],$$

$$H_{\vec\lambda} = \frac{1}{4SN}\Big[2z_1 S J_1^b(\gamma_1 + \gamma_{1+2-\lambda}) - 2z_1 S J_1^z \gamma_{1-2} + 2z_2 S J_2^b(\gamma'_1 + \gamma'_{1+2-\lambda}) -$$

$$2z_2 S J_2^z \gamma'_{1-2} - 4SD\Big].$$

(é claro que $\vec{\lambda}$ representa um vetor; toda vez em que não houver ambiguidade, vamos omitir a notação vetorial no sentido de simplificar as fórmulas). Na equação (I.15), notamos que $\langle\langle a_{\vec{\lambda}} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_\varepsilon$ depende da função de Green $\langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle$. Escrevendo a equação de movimento para esta última função, ou seja,

$$\varepsilon \langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_\varepsilon = \frac{1}{2\pi} \langle [a^{+}_{-\vec{\lambda}}, a^{+}_{\vec{\lambda}'}] \rangle + \langle\langle [a^{+}_{-\vec{\lambda}}, H] ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_\varepsilon \quad , \tag{I.17}$$

e levando-se em conta que

$$[a^{+}_{-\vec{\lambda}}, H] = - [a_{-\vec{\lambda}}, H]^{+} \quad ,$$

obtemos

$$\varepsilon \langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_\varepsilon = \langle\langle -A_{-\vec{\lambda}} a^{+}_{-\vec{\lambda}} - B_{-\vec{\lambda}} a_{\vec{\lambda}} + \sum_{\vec{k}_1, \vec{k}_2} \Big[C_{-\vec{\lambda}} a^{+}_{-\lambda-1-2} a^{+}_{2} a^{+}_{1} +$$
$$D_{\vec{\lambda}} a^{+}_{-\vec{\lambda}+1+2} a_{2} a_{1} + E_{-\vec{\lambda}} a^{+}_{1} a_{2} a_{1-2+\lambda} + F_{\vec{\lambda}} a^{+}_{2} a_{1} a_{2+\lambda-1} + G_{-\vec{\lambda}} a^{+}_{-\lambda+1-2} a^{+}_{2} a_{1} +$$
$$H_{-\vec{\lambda}} a^{+}_{1} a^{+}_{2} a_{1+2+\lambda} \Big] ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle \quad . \tag{I.18}$$

Para se resolver o sistema de equações acopladas (I.15) e (I.18), é necessário inicialmente desacoplá-las devido ao surgimento de funções de Green de ordem superior nessas equações. O procedimento usual é a aplicação do desacoplamento RPA (Random Phase Approximation) aos termos de mais alta ordem.[1,11] Levando-se em conta o argumento de simetria translacional

$$\sum_{\vec{k}_1} \gamma_{1 \pm \vec{\lambda}} \, f(\vec{k}_1) = \sum_{\vec{k}_1} \gamma_{\vec{\lambda}} \, \gamma_{\vec{k}_1} \, f(\vec{k}_1) \quad , \tag{I.19}$$

onde

$$f(\vec{k}_1) = \langle a_1^{+} a_1 \rangle \quad \text{ou} \quad \langle a_1 a_{-1} \rangle ,$$

obtemos a seguinte solução do sistema de equações (I.15) e (I.18):

$$\langle\langle a_{\vec{\lambda}} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_{\mathcal{E}} = \frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi} \cdot \frac{\mathcal{E} + \omega_{\vec{\lambda}}}{\mathcal{E}^2 - \mathcal{E}^2_{\vec{\lambda}}} ,$$

e (I.20)

$$\langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}'} ; a^{+}_{\vec{\lambda}'} \rangle\rangle_{\mathcal{E}} = - \frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi} \cdot \frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{\mathcal{E}^2 - \mathcal{E}^2_{\vec{\lambda}}}$$

sendo que

$$\mathcal{E}^2_{\vec{\lambda}} = \omega^2_{\vec{\lambda}} - \Gamma^2_{\vec{\lambda}} , \tag{I.21}$$

onde

$$\omega_{\vec{\lambda}} = 2z_1 S J_1^b \gamma_{\vec{\lambda}} - z_1 S J_1^z + 2 z_2 S J_2^b \gamma'_{\vec{\lambda}} - z_2 S J_2^z + D(1-2S) + \mu H -$$
$$\frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1} \Big\{ \big[4z_1 S J_1^a (\gamma_{\vec{\lambda}} + 2\gamma_1) + 4 z_2 S J_2^a (\gamma'_{\vec{\lambda}} + 2\gamma'_1) + 12 E S \big] \langle a_1 a_{-1} \rangle +$$
$$\big[8 z_1 S J_1^b (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) - 4 z_1 S J_1^z (1 + \gamma_{1-\lambda}) + 8 z_2 S J_2^b (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) - 4 z_2 S J_2^z (1 + \gamma'_{1-\lambda}) -$$
$$16 S D \big] \langle a_1^{+} a_1 \rangle \Big\} , \tag{I.22}$$

e

$$\Gamma_{\vec{\lambda}} = 2 z_1 S J_1^a \gamma_{\vec{\lambda}} + 2 z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec{\lambda}} + 2ES\xi - \frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1} \Big\{ \big[4 z_1 S J_1^a (\gamma_1 + 2\gamma_{\vec{\lambda}}) +$$
$$4 z_2 S J_2^a (\gamma'_1 + 2\gamma'_{\vec{\lambda}}) + 12 E S \big] \langle a_1^{+} a_1 \rangle + \big[4 z_1 S J_1^b (\gamma_1 + \gamma_{\vec{\lambda}}) - 4 z_1 S J_1^z \gamma_{1+\lambda} +$$
$$4 z_2 S J_2^b (\gamma'_1 + \gamma'_{\vec{\lambda}}) - 4 z_2 S J_2^z \gamma'_{1+\lambda} - 8 S D \big] \langle a_1 a_{-1} \rangle \Big\} . \tag{I.23}$$

Os valores médios $\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\ a_{\vec{\lambda}}\rangle$ e $\langle a_{\vec{\lambda}}\ a_{-\vec{\lambda}}\rangle$ são calculados, respectivamente, a partir dos saltos das funções de Green $\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\ ;\ a^{+}_{-\vec{\lambda}}\rangle\rangle$ e $\langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}}\ ;\ a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle$ ao cruzarem o eixo real.

A fim de calcular esses valores médios, decompomos inicialmente as funções de Green em frações parciais, ou seja,

$$\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle_{\varepsilon} = \frac{1}{2\pi}\left(\frac{\alpha_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon-\varepsilon_{\vec{\lambda}}} + \frac{\beta_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon+\varepsilon_{\vec{\lambda}}}\right) ,$$

onde

$$\alpha_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{2} + \frac{1}{2}\cdot\frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}} \quad , \qquad \beta_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{2} - \frac{1}{2}\,\frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}}$$

e

$$\langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle = -\frac{1}{2\pi}\cdot\frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{2\varepsilon_{\vec{\lambda}}}\cdot\left(\frac{1}{\varepsilon-\varepsilon_{\vec{\lambda}}} - \frac{1}{\varepsilon+\varepsilon_{\vec{\lambda}}}\right) .$$

Lembrando que

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\,a_{\vec{\lambda}}\rangle = \lim_{\delta\to 0}\, i\int_{-\infty}^{+\infty}\frac{\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle_{\varepsilon+i\delta} - \langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle_{\varepsilon-i\delta}}{e^{\beta\varepsilon}-1}\,d\varepsilon$$

e como

$$\lim_{\delta\to 0}\, i\left[\frac{1}{(\varepsilon\pm\varepsilon_{\vec{\lambda}})+i\delta} - \frac{1}{(\varepsilon\pm\varepsilon_{\vec{\lambda}})-i\delta}\right] = 2\pi\,\delta(\varepsilon\pm\varepsilon_{\vec{\lambda}}) ,$$

obtemos que:

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\,a_{\vec{\lambda}}\rangle = \frac{1}{2}\left(\frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}}-1\right) + \frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}}\,n_{\vec{\lambda}} \qquad \text{(I.24)}$$

onde

$$n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta \mathcal{E}_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1} \quad . \tag{I.25}$$

Analogamente, obtemos:

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a^{+}_{-\vec{\lambda}} \rangle = \langle a_{\vec{\lambda}}\, a_{-\vec{\lambda}} \rangle = -\frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{2\mathcal{E}_{\vec{\lambda}}} \cdot \left(1 + 2 n_{\vec{\lambda}}\right) \quad . \tag{I.26}$$

Obviamente, as equações (I-24) e (I.26) constituem um sistema de equações acopladas muito difícil de se resolver. Entretanto, como dissemos anteriormente, esses valores médios são tomados em primeira aproximação em relação ã $\mathcal{H}_2$, que representa um conjunto de excitações elementares independentes. Neste caso, ficamos com:

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a_{\vec{\lambda}} \rangle = \frac{1}{2}\left(\frac{\mathring{\omega}_{\vec{\lambda}}}{\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{\lambda}}} - 1\right) + \frac{\mathring{\omega}_{\vec{\lambda}}}{\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{\lambda}}}\, n_{\vec{\lambda}} \quad , \tag{I.27}$$

$$\langle a_{\vec{\lambda}}\, a_{-\vec{\lambda}} \rangle = -\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{\lambda}}}{2\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{\lambda}}} \left(1 + 2 n_{\vec{\lambda}}\right) \quad , \tag{I.28}$$

onde agora

$$\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{\lambda}} = \left(\mathring{\omega}^{2}_{\vec{\lambda}} - \mathring{\Gamma}^{2}_{\vec{\lambda}}\right)^{1/2} \quad , \tag{I.29}$$

sendo que

$$\mathring{\omega}_{\vec{\lambda}} = 2 z_1 S J_1^{b} \gamma_{\vec{\lambda}} - z_1 S J_1^{3} + 2 z_2 S J_2^{b} \gamma'_{\vec{\lambda}} - z_2 S J_2^{3} + D(1-2S) + \mu H \, , \tag{I.30}$$

$$\mathring{\Gamma}_{\vec{\lambda}} = 2 z_1 S J_1^{a} \gamma_{\vec{\lambda}} + 2 z_2 S J_2^{a} \gamma'_{\vec{\lambda}} + 2 E S \xi \, , \tag{I.31}$$

e

$$n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta \overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1} \quad . \tag{I.32}$$

Os cálculos até aqui desenvolvidos aplicam-se na realidade a qualquer estrutura cristalina com simetria translacional. Vamos particularizar nossos cálculos para uma rede cúbica simples. Neste caso, os fatores de estrutura tomam a seguinte forma:

$$\gamma_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{3}\left(\cos a\lambda_x + \cos a\lambda_y + \cos a\lambda_z\right) \tag{I.33}$$

e

$$\gamma'_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{3}\left(\cos a\lambda_x . \cos a\lambda_y + \cos a\lambda_x . \cos a\lambda_z + \cos a\lambda_y . \cos a\lambda_z\right) . \tag{I.34}$$

É fácil verificar que os mínimos de energia $\overset{\circ}{\mathcal{E}}_{\vec{\lambda}}$ ocorrem nos pontos $\vec{\lambda}_v$ que são vértices da primeira Zona de Brillouin (ZB) de uma rede cúbica simples. Os oito vértices são da forma $\vec{\lambda}_v = \frac{\pi}{a}(\pm\vec{\imath} \pm \vec{\jmath} \pm \vec{k})$ e nesses pontos

$$\gamma_{\vec{\lambda}_v} = -1 \qquad e \qquad \gamma'_{\vec{\lambda}_v} = 1 \quad . \tag{I.35}$$

O campo crítico H_c para a transição paramagnética - spin flop é determinado pela condição $\mathcal{E}_{\vec{\lambda}_v} = 0$. Quando o campo magnético diminui na fase paramagnética, a energia dos magnons anula-se inicialmente nos vétices da ZB . Ocorre então uma instabilidade na fase paramagnética, de tal forma que se pode dizer que o número de magnons gerados para $\vec{\lambda} \approx \vec{\lambda}_v$ é muito grande. É claro que se $H < H_c$ a frequência dos magnons torna-se complexa e, em consequência, as amplitudes das ondas de spin crescem exponencialmente, o que corresponde, como já dissemos, a uma ins tabilidade na fase paramagnética. Portanto, a condição $\mathcal{E}_{\vec{\lambda}_V} = 0$ nos fornece o seguinte campo crítico:

$$\mu H_c^{\pm}(T) = \mu H_{co}^{\pm} - \mu\Delta H_{co}^{\pm} - \mu\Delta H_c^{\pm}(T) \quad , \tag{I.36}$$

onde:

$$\mu H_{co}^{\pm} = z_1 S(2J_1^b + J_1^3) - z_2 S(2J_2^b - J_2^3) - D(1-2S) \pm \left[-2z_1 S J_1^a + 2z_2 S J_2^a + 2ES\xi\right] , \tag{I.37}$$

$$\mu\Delta H_{co}^{\pm} = \frac{1}{8SN}\sum_{\vec{K}_1}\left[M_{\vec{K}_1}^{\pm}\left(\frac{\overset{o}{\omega}_{\vec{K}_1}}{\mathcal{E}_{\vec{K}_1}} - 1\right) - N_{\vec{K}_1}^{\pm}\,\frac{\overset{o}{\Gamma}_{\vec{K}_1}}{\mathcal{E}_{\vec{K}_1}}\right]\Big/\mu H_{co}^{\pm} \quad , \tag{I.38}$$

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{1}{4SN}\sum_{\vec{K}_1}\left[M_{\vec{K}_1}^{\pm}\,\overset{o}{\omega}_{\vec{K}_1} - N_{\vec{K}_1}^{\pm}\,\overset{o}{\Gamma}_{\vec{K}_1}\right] . \frac{n_{\vec{K}_1}}{\mathcal{E}_{\vec{K}_1}}\Big/\mu H_{co}^{\pm} \quad , \tag{I.39}$$

sendo que:

$$M_{\vec{K}_1}^{\pm} = 16SD + 4z_1 S(2J_1^b + J_1^3).(1-\gamma_{\vec{K}_1}) - 4z_2 S(2J_2^b - J_2^3).(1+\gamma'_{\vec{K}_1}) \mp$$
$$\left[4z_1 S J_1^a(2-\gamma_{\vec{K}_1}) - 4z_2 S J_2^a(2+\gamma'_{\vec{K}_1}) - 12ES\right] \tag{I.40}$$

$$N_{\vec{K}_1}^{\pm} = 4z_1 S J_1^a(1-2\gamma_{\vec{K}_1}) - 4z_2 S J_2^a(1+2\gamma'_{\vec{K}_1}) - 12ES \mp \left[4z_1 S J_1^b(1-\gamma_{\vec{K}_1}) - \right.$$
$$\left. 4z_1 S J_1^3\gamma_{\vec{K}_1} + 4z_2 S J_2^3\gamma'_{\vec{K}_1} - 4z_2 S J_2^b(1+\gamma'_{\vec{K}_1}) + 8SD\right] , \tag{I.41}$$

$$\overset{o}{\omega}{}_{\vec{K}_1}^{\pm} = 2z_1 S J_1^b\gamma_{\vec{K}_1} - z_1 S J_1^3 + 2z_2 S J_2^b\gamma'_{\vec{K}_1} - z_2 S J_2^3 + D(1-2S) + \mu H_{co}^{\pm} \quad , \tag{I.42}$$

$$\overset{o}{\Gamma}{}_{\vec{K}_1}^{\pm} = 2z_1 S J_1^a\gamma_{\vec{K}_1} + 2z_2 S J_2^a\gamma'_{\vec{K}_1} + 2ES\xi \quad . \tag{I.42}$$

Na equação (I.36), duas soluções são possíveis , dependendo da relação existente entre as anisotropias ortorrômbi cas. Se

$$\mathcal{J}_1 S(J_1^x - J_1^y) + \mathcal{J}_2 S(J_2^y - J_2^x) < 4ES\xi \ , \tag{I.44}$$

a solução é μH^+_{co} ; invertendo-se o sinal da desigualdade, temos μH^-_{co} .

O termo $\mu\Delta H^{\pm}_{co}$ é a chamada correção de ponto zero. Apesar de pequena, essa correção é importante, pois uma das maneiras de se avaliar os parâmetros presentes na Hamiltoniana de um material é através da extrapolação das fronteiras de fase para T = 0 K, não se levando em conta separadamente essa correção.

Agora, vamos determinar explìcitamente a dependência na temperatura do termo $\mu\Delta H^{\pm}_{c}(T)$. Como estamos interessados no termo dominante na temperatura, na expressão de $\mu\Delta H^{\pm}_{c}(T)$, equação (I.39), verificamos que as maiores contribuições à soma vem dos pontos muito próximos dos vétices da ZB. Por isso , no termo entre colchetes ali presente, tomamos apenas o termo dominante, ou seja, $\vec{K}_1$ = vértice da ZB. Realizando-se a seguinte mudança de variáveis:

$$\vec{q} = a\,(\vec{K}_1 - \vec{K}_o) \ , \tag{I.45}$$

onde $\vec{K}_o$ é qualquer um dos vértices da ZB, e expandindo-se os fatores de estrutura $\gamma_{\vec{K}}$ e $\gamma'_{\vec{K}}$ nas vizinhanças de $\vec{K}_o$, obtemos:

$$\gamma_{\vec{q}} \approx 1 - \frac{1}{6} q^2 + \frac{1}{72}(q_x^4 + q_y^4 + q_z^4) - \ldots \ , \tag{I.46}$$

e

$$\gamma'_{\vec{q}} \approx 1 - \frac{1}{3} q^2 + \frac{1}{36}(q_x^4 + q_y^4 + q_z^4) + \frac{1}{12}(q_x^2 q_y^2 + q_x^2 q_z^2 + q_y^2 q_z^2) - \ldots \ . \tag{I.47}$$

Então temos:

$$\left(M^{\pm}_{\vec{K}_1}\overset{o}{\omega}_{\vec{K}_1}-N^{\pm}_{\vec{K}_1}\overset{o}{\Gamma}_{\vec{K}_1}\right)_{\mu H^{\pm}_{co}} \approx \pm\left[\frac{z_1S}{2}\left(J^y_1-J^x_1\right)+\frac{z_2S}{2}\left(J^x_2-J^y_2\right)+2ES\xi\right].\left[24SL\pm\right.$$

$$\left. 24ES+12z_1S(J^{y,x}_1+J^z_1)-12z_2S(J^{y,x}_2-J^z_2)\right]+\mathcal{O}(q^2) \quad . \tag{I.48}$$

Para o espectro de energia dos magnons obtemos:

$$\overset{o}{\mathcal{E}}{}^{\pm}_{\vec{q}}=\left[\pm\left(-4z_1SJ^a_1+4z_2SJ^a_2+4ES\xi\right)\right]^{1/2}.\left[\frac{z_1S}{6}J^{y,x}_1-\frac{z_2S}{3}J^{y,x}_2\right]^{1/2}.\ q \quad . \tag{I.49}$$

O primeiro colchete é sempre positivo, pois como já vimos, a solução μH^{+}_{co} ocorre se $z_1S(J^x_1-J^y_1)+z_2S(J^y_2-J^x_2)<4ES\xi$ e a μH^{-}_{co} é obtida invertendo-se o sinal da desigualdade. Também é necessário que:

$$z_1\,J^{y,x}_1>2z_2\,J^{y,x}_2 \quad , \tag{I.50}$$

que para uma rede cúbica simples se escreve na forma

$$J^{y,x}_1>4\,J^{y,x}_2 \quad . \tag{I.51}$$

Na região de baixas temperaturas em que estamos interessados, o número médio de ocupação dos bosons $n_{\vec{q}}$ é muito pequeno, de tal forma que

$$n_{\vec{q}}=\left(e^{\beta\overset{o}{\mathcal{E}}_{\vec{q}}}-1\right)^{-1}\approx\sum_{n=1}^{\infty}e^{-\beta n\overset{o}{\mathcal{E}}_{\vec{q}}} \quad . \tag{I.52}$$

Numa rede cúbica simples há um átomo por célula unitária. Portanto,

$$\sum_{\vec{K}_1}\longrightarrow\frac{Na^3}{8\pi^3}\int d^3\vec{K}_1=\frac{N}{8\pi^3}\int d^3\vec{q} \quad . \tag{I.53}$$

Desta forma, temos que:

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T)=\frac{1}{4SN}\cdot\frac{N}{8\pi^3}\sum_{r=1}^{\infty}\left(M_{\vec{K}_0}^{\pm}\,\mathring{\omega}_{\vec{K}_0}-N_{\vec{K}_0}^{\pm}\,\mathring{\Gamma}_{\vec{K}_0}\right)\Big/\mu H_{c_0}^{\pm}\cdot\int\frac{e^{-\beta r\alpha q}}{\alpha q}\,d^3q\ , \tag{I.54}$$

onde

$$\alpha=\left[\pm\left(-4z_1SJ_1^{a}+4z_2SJ_2^{a}+4ESE\right)\right]^{1/2}\cdot\left[\frac{z_1S}{6}J_1^{y,x}-\frac{z_2S}{3}J_2^{y,x}\right]^{1/2}. \tag{I.55}$$

Integrando-se em coordenadas esféricas, onde

$$d^3\vec{q}=4\pi q^2\,dq\ , \tag{I.56}$$

obtemos a seguinte dependência do campo crítico com a temperatura:

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T)=\frac{3\sqrt{2}\,\xi(2)}{(2\pi)^2}\cdot\frac{\left[D\pm E+3(J_1^{y,x}+J_1^{z})-6(J_2^{y,x}-J_2^{z})\right]}{\left[3(J_1^{y,x}-J_1^{x,y})+6(J_2^{x,y}-J_2^{y,x})\pm 2E\left(1-\frac{1}{4S}\right)\right]^{1/2}}\cdot\frac{\left(\frac{K_BT}{S}\right)^2}{(J_1^{y,x}-4J_2^{y,x})^{3/2}}+\mathcal{O}(T^4) \tag{I.57}$$

onde colocamos

$$z_1=6\ ,\qquad z_2=12\qquad \text{e}\qquad \xi(2)=\sum_{r=1}^{\infty}r^{-2}\ ,$$

Resumindo, obtemos o seguinte resultado para o campo crítico da transição spin flop - paramagnética no caso de campos aplicados paralelamente ao eixo de fácil magnetização:

$$\mu H_c^{\pm}(T)=\mu H_{c_0}^{\pm}-\mu\Delta H_{c_0}^{\pm}-\mu\Delta H_c^{\pm}(T) \tag{I.58}$$

onde:

$$\mu H_{c_0}^{\pm} = z_1 S(J_1^{y,x} + J_1^{z}) + z_2 S(J_2^{z} - J_2^{y,x}) - D(1-2S) \pm 2ES\xi \quad , \tag{I.59}$$

$$\mu \Delta H_{c_0}^{\pm} = \frac{1}{8SN} \sum_{\vec{k}} \left[M_{\vec{k}}^{\pm} \left(\frac{\overset{\circ}{\omega}_{\vec{k}}}{\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{k}}} - 1 \right) - N_{\vec{k}}^{\pm} \frac{\overset{\circ}{\Gamma}_{\vec{k}}}{\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{k}}} \right] / \mu H_{c_0}^{\pm} \quad , \tag{I.60}$$

com

$$M_{\vec{k}}^{\pm} = 16SD + 12S(J_1^x + J_1^y + 2J_1^z)(1 - \gamma_{\vec{k}}) - 24S(J_2^x + J_2^y - 2J_2^z)(1 + \gamma_{\vec{k}}') +$$
$$6S(J_1^{y,x} - J_1^{x,y})(2 - \gamma_{\vec{k}}) + 12(J_2^{x,y} - J_2^{y,x})(2 + \gamma_{\vec{k}}') \pm 12ES \; , \tag{I.61}$$

$$N_{\vec{k}}^{\pm} = 6S(J_1^x - J_1^y)(1 - 2\gamma_{\vec{k}}) - 12S(J_2^x - J_2^y)(1 + 2\gamma_{\vec{k}}') - 12ES \mp$$
$$[6S(J_1^x + J_1^y)(1 - \gamma_{\vec{k}}) - 24SJ_1^z\gamma_{\vec{k}} - 12S(J_2^x + J_2^y)(1 + \gamma_{\vec{k}}') +$$
$$48SJ_2^z\gamma_{\vec{k}}' + 8SD] \; , \tag{I.62}$$

$$\overset{\circ}{\omega}_{\vec{k}} / \mu H_{c_0}^{\pm} = 3S(J_1^x + J_1^y)(1 + \gamma_{\vec{k}}) + 6S(J_2^x + J_2^y)(\gamma_{\vec{k}}' - 1) + 3S(J_1^{y,x} - J_1^{x,y}) +$$
$$6S(J_2^{x,y} - J_2^{y,x}) \pm 2ES \quad , \tag{I.63}$$

$$\overset{\circ}{\Gamma}_{\vec{k}} = 3S(J_1^x - J_1^y)\gamma_{\vec{k}} + 6S(J_2^x - J_2^y)\gamma_{\vec{k}}' + 2ES \; , \tag{I.64}$$

$$\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{k}} / \mu H_{c_0}^{\pm} = \left(\overset{\circ}{\omega}{}_{\vec{k}}^{2} / \mu H_{c_0}^{\pm} - \overset{\circ}{\Gamma}{}_{\vec{k}}^{2} \right)^{1/2} \quad , \tag{I.65}$$

$$\gamma_{\vec{k}} = \frac{1}{3}(\cos a k_x + \cos a k_y + \cos a k_z) \; , \tag{I.66}$$

$$\gamma_{\vec{k}}' = \frac{1}{3}(\cos ak_x . \cos ak_y + \cos ak_x . \cos ak_z + \cos ak_y . \cos ak_z) \; , \tag{I.67}$$

e

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2} \cdot \frac{\left[D \pm E + 3(J_1^{y,x} + J_1^{z}) - 6(J_2^{y,x} - J_2^{z})\right]}{\left[3(J_1^{y,x} - J_1^{x,y}) + 6(J_2^{x,y} - J_2^{y,x}) \pm 2E\right]^{1/2}} \cdot \frac{\left(\frac{K_B T}{S}\right)^2}{(J_1^{y,x} - 4J_2^{y,x})^{3/2}} \quad (I.68)$$

Nas expressões de $\mu\Delta H_{co}^{\pm}$ e $\mu\Delta H_c^{\pm}(T)$ acima, apenas termos até ordem $1/S$ estão sendo considerados; por isso, colocamos nessas expressões explícitamente que $\xi = 1$.

2 - CAMPO PERPENDICULAR AO EIXO FÁCIL: DIREÇÃO X

Quando o campo magnético externo é aplicado perpendicularmente ao eixo fácil, o antiferromagneto apresenta apenas as fases spin flop e paramagnética. Vamos considerar a mesma Hamiltoniana dada pela equação (I.1), sendo que agora o campo magnético é aplicado na direção x, perpendicular ao eixo fácil z. Temos então que

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J_1^x S_\alpha^x S_\beta^x + J_1^y S_\alpha^y S_\beta^y + J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z\right] + \sum_{(\alpha,\delta)} \left[J_2^x S_\alpha^x S_\delta^x + J_2^y S_\alpha^y S_\delta^y + J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z\right] +$$
$$D\sum_\alpha (S_\alpha^z)^2 + E\sum_\alpha \left[(S_\alpha^x)^2 - (S_\alpha^y)^2\right] - \mu H \sum_\alpha S_\alpha^x \quad . \quad (I.69)$$

Na fase paramagnética, a direção x é o eixo de quantização apropriado para as excitações das ondas de spin. Por isso vamos introduzir os operadores:

$$S_\alpha^+ = S_\alpha^z - j\, S_\alpha^y$$

e (I.70)

$$S_\alpha^- = S_\alpha^z + i\, S_\alpha^y \quad ,$$

que levados na equação anterior nos fornece:

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J_1^x S_\alpha^x S_\beta^x + J_1^a (S_\alpha^+ S_\beta^+ + S_\alpha^- S_\beta^-) + J_1^b (S_\alpha^+ S_\beta^- + S_\alpha^- S_\beta^+) \right] +$$

$$\sum_{(\alpha,\delta)} \left[J_2^x S_\alpha^x S_\delta^x + J_2^a (S_\alpha^+ S_\delta^+ + S_\alpha^- S_\delta^-) + J_2^b (S_\alpha^+ S_\delta^- + S_\alpha^- S_\delta^+) \right] + \frac{1}{4}(D+E) \sum_\alpha (S_\alpha^+ S_\alpha^+ +$$

$$S_\alpha^- S_\alpha^-) + \frac{1}{4}(D-E) \sum_\alpha (S_\alpha^+ S_\alpha^- + S_\alpha^- S_\alpha^+) + E \sum_\alpha (S_\alpha^x)^2 - \mu H \sum_\alpha S_\alpha^x \quad . \qquad \text{(I.71)}$$

onde agora,

$$J_{1,2}^{a,b} = \frac{1}{4}\left(J_{1,2}^z \mp J_{1,2}^y \right) \quad . \qquad \text{(I.72)}$$

Introduzimos as transformações de H-P na forma:

$$S_\alpha^x = S - a_\alpha^+ a_\alpha \quad ,$$

$$S_\alpha^+ = (2S)^{1/2} f_\alpha(S)\, a_\alpha \qquad \text{(I.73)}$$

$$S_\alpha^- = (2S)\, a_\alpha^+ f_\alpha(S) \quad ,$$

onde

$$f_\alpha(S) = \left(1 - \frac{a_\alpha^+ a_\alpha}{2S} \right)^{1/2} \quad .$$

Através do mesmo procedimento desenvolvido na seção anterior, obtemos a seguinte Hamiltoniana de ondas de spin:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_4 \qquad \text{(I.74)}$$

onde

$$\mathcal{H}_0=\tfrac{1}{2}Nz_1S^2J_1^x+\tfrac{1}{2}Nz_2S^2J_2^x+\tfrac{1}{2}NS(D-E)+NS^2E-NS\mu H, \tag{I.75}$$

$$\mathcal{H}_2=\sum_{\vec{k}}\Big\{\big[2z_1SJ_1^b\gamma_{\vec{k}}-z_1SJ_1^x+2z_2SJ_2^b\gamma'_{\vec{k}}-z_2SJ_2^x+(S-1/2)D-3(S-1/2)E+\mu H\big]a^+_{\vec{k}}a_{\vec{k}}+\big[z_1SJ_1^a\gamma_{\vec{k}}+z_2SJ_2^a\gamma'_{\vec{k}}+\tfrac{1}{2}(S-1/4).(D+E)\big].(a_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}+a^+_{\vec{k}}a^+_{-\vec{k}})\Big\}, \tag{I.76}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_4=-\frac{1}{4SN}\sum_{\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{k}_3}\Big\{&\big[2z_1SJ_1^b(\gamma_3+\gamma_{3+2-1})-2z_1SJ_1^x\gamma_{1-2}+\\&2z_2SJ_2^b(\gamma'_3+\gamma'_{3+2-1})-2z_2SJ_2^x\gamma'_{1-2}+2SD-6SE\big]a^+_{3+2-1}a^+_1a_2a_3+\\&\big[2z_1SJ_1^a\gamma_3+2z_2SJ_2^a\gamma'_3+S(D+E)\big]a^+_{1+2+3}a_1a_2a_3+\\&\big[2z_1SJ_1^a\gamma_{3-2-1}+2z_2SJ_2^a\gamma'_{3-2-1}+S(D+E)\big]a^+_{3-2-1}a^+_1a^+_2a_3\Big\}.\end{aligned} \tag{I.77}$$

Escrevendo-se as equações de movimento para as funções de Green $\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle$ e $\langle\langle a^+_{\vec{\lambda}}\,;\,a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle$, e utilizando-se o desacoplamento RPA, obtemos finalmente as seguintes expressões:

$$\begin{aligned}\langle\langle a_{\vec{\lambda}};a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon&=\frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi}\cdot\frac{\varepsilon+\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon^2-\varepsilon^2_{\vec{\lambda}}},\\ \langle\langle a^+_{\vec{\lambda}};a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon&=-\frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi}\cdot\frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon^2-\varepsilon^2_{\vec{\lambda}}},\end{aligned} \tag{I.78}$$

onde

$$\omega_{\vec{\lambda}}=A_{\vec{\lambda}}-\frac{1}{NS}\sum_{\vec{k}_1}\left(C_{\vec{\lambda}}\langle a^+_1a_1\rangle+D_{\vec{\lambda}}\langle a_1a_{-1}\rangle\right), \tag{I.79}$$

$$\Gamma_{\vec{\lambda}} = B_{\vec{\lambda}} - \frac{1}{NS}\sum_{\vec{K_1}}\left(E_{\vec{\lambda}}\langle a_1 a_{-1}\rangle + F_{\vec{\lambda}}\langle a_1^{+} a_1\rangle\right), \qquad (I.80)$$

$$\mathcal{E}_{\vec{\lambda}}^2 = \omega_{\vec{\lambda}}^2 - \Gamma_{\vec{\lambda}}^2 \quad , \qquad (I.81)$$

sendo que

$$A_{\vec{\lambda}} = 2\mathfrak{z}_1 S J_1^b \gamma_{\vec{\lambda}} - \mathfrak{z}_1 S J_1^x + 2\mathfrak{z}_2 S J_2^b \gamma'_{\vec{\lambda}} - \mathfrak{z}_2 S J_2^x + (S-1/2)\,D -$$

$$3(S-1/2)\,E + \mu H \quad , \qquad (I.82)$$

$$B_{\vec{\lambda}} = 2\mathfrak{z}_1 S J_1^a \gamma_{\vec{\lambda}} + 2\mathfrak{z}_2 S J_2^a \gamma'_{\vec{\lambda}} + (S-1/4)(D+E)\,, \qquad (I.83)$$

$$C_{\vec{\lambda}} = 2\mathfrak{z}_1 S J_1^b(\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_{\vec{K_1}}) - \mathfrak{z}_1 S J_1^x(1+\gamma_{\vec{K_1}-\vec{\lambda}}) + 2\mathfrak{z}_2 S J_2^b(\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_{\vec{K_1}}) -$$

$$\mathfrak{z}_2 S J_2^x(1+\gamma'_{\vec{K_1}-\vec{\lambda}}) + 2SD - 6SE \,, \qquad (I.84)$$

$$D_{\vec{\lambda}} = \mathfrak{z}_1 S J_1^a(\gamma_{\vec{\lambda}} + 2\gamma_{\vec{K_1}}) + \mathfrak{z}_2 S J_2^a(\gamma'_{\vec{\lambda}} + 2\gamma'_{\vec{K_1}}) + \tfrac{3}{2}S(D+E), \qquad (I.85)$$

$$E_{\vec{\lambda}} = \mathfrak{z}_1 S J_1^b(\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_{\vec{K_1}}) - \mathfrak{z}_1 S J_1^x \gamma_{\vec{K_1}+\vec{\lambda}} + \mathfrak{z}_2 S J_2^b(\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_{\vec{K_1}}) - \mathfrak{z}_2 S J_2^x \gamma'_{\vec{K_1}+\vec{\lambda}} +$$

$$SD - 3SE \,, \qquad (I.86)$$

$$F_{\vec{\lambda}} = \mathfrak{z}_1 S J_1^a(2\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_{\vec{K_1}}) + \mathfrak{z}_2 S J_2^a(2\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_{\vec{K_1}}) + \tfrac{3}{2}S(D+E)\,. \qquad (I.87)$$

Novamente os valores médios $\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a_{\vec{\lambda}}\rangle$ e $\langle a_{\vec{\lambda}}\, a_{-\vec{\lambda}}\rangle$ são determinados respectivamente à partir dos saltos das funções de Green $\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\ ;\ a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle$ e $\langle\langle a^{+}_{-\vec{\lambda}}\ ;\ a^{+}_{\vec{\lambda}}\rangle\rangle$ ao cruzarem o eixo real. Obtemos desta maneira que

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}} a_{\vec{\lambda}}\rangle = \frac{1}{2}\cdot\left(\frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\mathcal{E}_{\vec{\lambda}}} - 1\right) + \frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\mathcal{E}_{\vec{\lambda}}}\, n_{\vec{\lambda}} \ , \qquad (I.88)$$

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a^{+}_{-\vec{\lambda}} \rangle = \langle a_{\vec{\lambda}}\, a_{-\vec{\lambda}} \rangle = -\frac{B_{\vec{\lambda}}}{2\varepsilon_{\vec{\lambda}}} \cdot (1+2n_{\vec{\lambda}}) \, ,$$

sendo que

$$n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta\varepsilon_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1}$$

é o número médio de ocupação dos bosons.

Calculando-se os valores médio acima com relação à Hamiltoniana H_2, teremos:

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a_{\vec{\lambda}} \rangle = \frac{1}{2}\left(\frac{A_{\vec{\lambda}}}{\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} - 1\right) + \frac{A_{\vec{\lambda}}}{\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}}\, n_{\vec{\lambda}} \, , \tag{I.89}$$

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}}\, a^{+}_{-\vec{\lambda}} \rangle = \langle a_{\vec{\lambda}}\, a_{-\vec{\lambda}} \rangle = -\frac{B_{\vec{\lambda}}}{2\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} \cdot (1+2n_{\vec{\lambda}}) \, ,$$

onde

$$\overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{\lambda}} = \left(A^2_{\vec{\lambda}} - B^2_{\vec{\lambda}}\right)^{1/2} \quad e \quad n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta\varepsilon_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1} .$$

Para cada valor do campo magnético, a energia atinge seu mínimo valor nos vértices da ZB. Para uma rede cúbica simples, os oito vértices são da forma $\vec{\lambda}_v = \frac{\pi}{a}(\pm\hat{i} \pm \hat{j} \pm \hat{k})$, e nesses pontos, temos que $\gamma_{\vec{\lambda}_v} = -1$ e $\gamma'_{\vec{\lambda}_v} = +1$. O campo crítico para a transição paramagnética spin flop é determinada pela equação $\varepsilon_{\vec{\lambda}_v} = 0$. Temos portanto:

$$\mu H^{\pm}_{c}(T) = \mu H^{\pm}_{co} - \mu \Delta H^{\pm}_{co} - \mu \Delta H^{\pm}_{c}(T) \, , \tag{I.90}$$

onde

$$\mu H_{co}^{\pm}=z_1S(J_1^{yz}+J_1^{x})-z_2S(J_2^{yz}-J_2^{x})-(S-1/2)(D-E)+2(S-1/2)E\pm$$

$$(S-1/4)(D+E)\ , \tag{I.91}$$

$$\mu\Delta H_{co}^{\pm}=\frac{1}{8SN}\sum_{\vec{K}_1}\left[M_{K_1}^{\pm}\left(\frac{\mathring{\omega}_{\vec{K}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{K}_1}}-1\right)-N_{\vec{K}_1}^{\pm}\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{K}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{K}_1}}\right], \tag{I.92}$$

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T)=\frac{1}{4SN}\sum_{\vec{K}_1}\left[M_{K_1}^{\pm}\frac{\mathring{\omega}_{\vec{K}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{K}_1}}-N_{\vec{K}_1}^{\pm}\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{K}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{K}_1}}\right]n_{\vec{K}_1}\ , \tag{I.93}$$

sendo que

$$M_{\vec{K}_1}^{\pm}=2z_1S(2J_1^{x}+J_1^{z}+J_1^{y})(1-\gamma_{\vec{K}_1})-2z_2S(-2J_2^{x}+J_2^{z}+J_2^{y})(1+\gamma'_{\vec{K}_1})-$$

$$8S(D-3E)\mp\left[z_1S(J_1^{z}-J_1^{y})(2-\gamma_{\vec{K}_1})-z_2S(J_2^{z}-J_2^{y})(2+\gamma'_{\vec{K}_1})-\right.$$

$$\left.6S(D+E)\right]\ , \tag{I.94}$$

$$N_{\vec{K}_1}^{\pm}=z_1S(J_1^{z}-J_1^{y})(1-2\gamma_{\vec{K}_1})-z_2S(J_2^{z}-J_2^{y})(1+2\gamma'_{\vec{K}_1})-6S(D+E)\mp$$

$$\left[z_1S(J_1^{z}+J_1^{y})(1-\gamma_{\vec{K}_1})-4z_1SJ_1^{x}\gamma_{\vec{K}_1}-z_2S(J_2^{z}+J_2^{y})(1+\gamma'_{\vec{K}_1})+\right.$$

$$\left.4z_2SJ_2^{x}\gamma'_{\vec{K}_1}-4S(D-3E)\right]. \tag{I.95}$$

Devemos notar que a solução μH_{co}^{+} é escolhida se

$$z_1S(J_1^{z}-J_1^{y})-z_2S(J_2^{z}-J_2^{y})-2(S-1/4)(D+E)<0 \tag{I.96}$$

Invertendo-se o sinal dessa desigualdade, a solução fisicamente aceitável é μH_{co}^{-} . A correção do ponto zero, ($\Delta H_{c(o)}^{\pm}$), é determinada efetuando-se a soma sobre todos os vetores permitidos na primeira Zona de Brillouin. No termo dependente da temperatura ,

($\Delta H_c^{\pm}$ (T)), as maiores contribuições à soma vem dos vetores de onda nas vizinhanças dos vértices da ZB. Efetuando-se a mudança de variáveis, $\vec{q} = a\,(\vec{K}_1 - \vec{K}_0)$, onde $\vec{K}_0$ é vértice da ZB, obtemos a seguinte expressão para a energia dos magnons nas vizinhanças dos vértices da ZB:

$$\mathring{\mathcal{E}}_q^{\pm} \approx \left[z_1 S \left(J_1^{y,z} - J_1^{z,y} \right) - z_2 S \left(J_2^{y,z} - J_2^{z,y} \right) \pm 2\left(S - 1/4\right)(D+E) \right]^{1/2} \cdot \left[\frac{1}{6} z_1 S J_1^{y,z} - \frac{1}{3} z_2 S J_2^{y,z} \right]^{1/2} \cdot q \tag{I.97}$$

Levando-se em conta a expressão acima para o espectro de energia dos magnons, e considerando apenas o termo dominante na temperatura, podemos transformar a soma na expressão de $\Delta H_{c(T)}$ numa integral em torno dos vértices da ZB, e integrar em coordenadas esféricas. Obtemos desta forma a seguinte dependência do campo crítico na temperatura:

$$\mu \Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2} \cdot \frac{\left[3\left(J_1^{x} + J_1^{y,z}\right) + 6\left(J_2^{x} - J_2^{y,z}\right) + \frac{1}{2}\left(3E - D \pm E \pm D\right) \right]}{\left\{ \mp \left[3\left(J_1^{z} - J_1^{y}\right) - 6\left(J_2^{z} - J_2^{y}\right) - (D+E) \right] \right\}^{1/2}} \cdot \frac{\left(\frac{k_B T}{S} \right)^2}{\left[J_1^{y,z} - 4 J_2^{y,z} \right]^{3/2}} \tag{I.98}$$

Novamente obtemos neste caso de campos transversais ao eixo fácil, uma dependência quadrática na temperatura para o campo crítico da transição spin flop - paramagnética na região de baixas temperaturas.

3 - CAMPO PERPENDICULAR AO EIXO FÁCIL: DIREÇÃO Y

Quando $J^x_{1,2} \neq J^y_{1,2}$ ou $E \neq 0$, os eixos magnéticos x e y não são equivalentes. Vamos nesta secção determinar o campo magnético crítico quando o campo é aplicado na direção cristalina y. Note que se $E > 0$, o eixo y é considerado o eixo magnético intermediário, enquanto que x é o eixo duro. Tomando-se a Hamiltoniana dada pela equação (I.1), no caso em que H é paralelo ao eixo y, temos:

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J_1^x S_\alpha^x S_\beta^x + J_1^y S_\alpha^y S_\beta^y + J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z \right] + \sum_{(\alpha,\delta)} \left[J_2^x S_\alpha^x S_\delta^x + J_2^y S_\alpha^y S_\delta^y + J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z \right] + D\sum_\alpha (S_\alpha^z)^2 + E\sum_\alpha \left[(S_\alpha^x)^2 - (S_\alpha^y)^2 \right] - \mu H \sum_\alpha S_\alpha^y . \qquad (I.99)$$

Levando-se em conta que na fase paramagnética o eixo y é o eixo de quantização apropriado, definimos os seguintes operadores de spin:

$$S_\alpha^+ = S_\alpha^z - i\, S_\alpha^x$$

e (I.100)

$$S_\alpha^- = S_\alpha^z + i\, S_\alpha^x \quad .$$

Efetuando-se as devidas manipulações algébricas como nas secções anteriores, podemos escrever que:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_4 \quad , \qquad (I.101)$$

onde

$$\mathcal{H}_0=\frac{1}{2}Nz_1S^2J_1^y+\frac{1}{2}Nz_2S^2J_2^y+\frac{1}{2}NS(D+E)-NS^2E-NS\mu H, \tag{I.102}$$

$$\mathcal{H}_2=\sum_{\vec{k}}\Big\{\Big[2z_1SJ_1^b\gamma_{\vec{k}}-z_1SJ_1^y+2z_2SJ_2^b\gamma'_{\vec{k}}-z_2SJ_2^y+(S-1/2)D+3(S-1/2)E+\mu H\Big]\cdot$$

$$a^+_{\vec{k}}a_{\vec{k}}+\Big[z_1SJ_1^a\gamma_{\vec{k}}+z_2SJ_2^a\gamma'_{\vec{k}}+\frac{1}{2}(S-1/4)(D-E)\Big](a_{\vec{k}}a_{-\vec{k}}+a^+_{\vec{k}}a^+_{-\vec{k}})\Big\}, \tag{I.103}$$

$$\mathcal{H}_4=-\frac{1}{4SN}\sum_{\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{k}_3}\Big\{\Big[2z_1SJ_1^b(\gamma_3+\gamma_{3+2-1})-2z_1SJ_1^y\gamma_{1-2}+2z_2SJ_2^b(\gamma'_3+\gamma'_{3+2-1})-$$

$$2z_2SJ_2^y\gamma'_{1-2}+2SD+6SE\Big]a^+_{3+2-1}a^+_1a_2a_3+\Big[2z_1SJ_1^a\gamma_3\quad+$$

$$2z_2SJ_2^a\gamma'_3+S(D-E)\Big]a^+_{1+2+3}a_1a_2a_3+\Big[2z_1SJ_1^a\gamma_{3-2-1}\;+$$

$$2z_2SJ_2^a\gamma'_{3-2-1}+S(D-E)\Big]a^+_{3-2-1}a^+_1a^+_2a_3\Big\}, \tag{I.104}$$

sendo que

$$J_{1/2}^{a,b}=\frac{1}{4}\left(J_{1/2}^{z}\mp J_{1/2}^{x}\right). \tag{I.105}$$

Procedendo-se de forma análoga às secções anteriores é fácil mostrar que o campo crítico para a transição spin flop - paramagnética é dado pela seguinte expressão:

$$\mu H_c^{\pm}(T)=\mu H_{c0}^{\pm}-\mu\Delta H_{c0}^{\pm}-\mu\Delta H_c^{\pm}(T), \tag{I.106}$$

onde

$$\mu H_{c0}^{\pm}=z_1S(J_1^{x,z}+J_1^y)-z_2S(J_2^{x,z}-J_2^y)-(S-1/2)(D+3E)\pm(S-1/4)(D-E), \tag{I.107}$$

$$\mu\Delta H_{c0}^{\pm}=\frac{1}{8SN}\sum_{\vec{k}}\Big[M^{\pm}_{\vec{k}}\Big(\frac{\mathring{\omega}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}}-1\Big)-N^{\pm}_{\vec{k}}\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}}\Big]; \tag{I.108}$$

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T)=\frac{1}{4SN}\sum_{\vec{k}}\Big[M^{\pm}_{\vec{k}}\frac{\mathring{\omega}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}}-N^{\pm}_{\vec{k}}\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}}\Big]n_{\vec{k}}, \tag{I.109}$$

sendo que

$$M^{\pm}_{\vec{K}_1} = 2z_1S(2J_1^y + J_1^z + J_1^x)(1-\gamma_{\vec{K}_1}) - 2z_2S(-2J_2^y + J_2^z + J_2^x)(1+\gamma'_{\vec{K}_1}) -$$
$$8S(D+3E) \mp [z_1S(J_1^z - J_1^x)(2-\gamma_{\vec{K}_1}) - z_2S(J_2^z - J_2^x)(2+\gamma'_{\vec{K}_1}) -$$
$$6S(D-E)] , \tag{I.110}$$

$$N^{\pm}_{\vec{K}_1} = z_1S(J_1^z - J_1^x)(1-2\gamma_{\vec{K}_1}) - z_2S(J_2^z - J_2^x)(1+2\gamma'_{\vec{K}_1}) - 6S(D-E) \mp$$
$$[z_1S(J_1^z + J_1^x)(1-\gamma_{\vec{K}_1}) - 4z_1SJ_1^y\gamma_{\vec{K}_1} - z_2S(J_2^z + J_2^x)(1+\gamma'_{\vec{K}_1}) +$$
$$4z_2SJ_2^y\gamma'_{\vec{K}_1} - 4S(D+3E)] . \tag{I.111}$$

A solução μH^{+}_{co} é escolhida se

$$z_1S(J_1^z - J_1^x) - z_2S(J_2^z - J_2^x) - 2(S-1/4)(D-E) < 0 \tag{I.112}$$

enquanto que μH^{-}_{co} é a solução fisicamente aceitável se o sinal da desigualdade acima é invertido.

Nas vizinhanças dos vértices da primeira ZB, o espectro de energia dos magnons é dado por:

$$\overset{o}{\mathcal{E}}{}^{\pm}_{\vec{q}} \approx [z_1S(J_1^{x,z} - J_1^{z,x}) - z_2S(J_2^{x,z} - J_2^{z,x}) \pm 2(S-1/4)(D-E)]^{1/2} .$$
$$[\tfrac{1}{6}z_1SJ_1^{x,z} - \tfrac{1}{3}z_2SJ_2^{x,z}]^{1/2} . q , \tag{I.113}$$

onde $\vec{q} = a(\vec{K}_1 - \vec{K}_o)$, sendo $\vec{K}_o$ vértice da primeira ZB de uma rede cúbica simples. O termo dependente da temperatura é facilmente determinado como anteriormente e obtemos:

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T)=\frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2}\cdot\frac{[3(J_1^y+J_1^{x,z})+6(J_2^y-J_2^{x,z})-\frac{1}{2}(3E+D\pm E\mp D)]}{\{\mp[3(J_1^z-J_1^x)-6(J_2^z-J_2^x)-(D-E)]\}^{1/2}}\cdot\frac{\left(\frac{K_BT}{S}\right)^2}{[J_1^{x,y}\pm 4J_2^{x,z}]^{3/2}}\;. \tag{I.114}$$

Como era de se esperar, devido à forma linear do espectro de energia, tornamos a obter uma dependência quadrática na temperatura para o campo crítico da transição spin flop - paramagnética na região de baixas temperaturas.

No caso particular em que não temos anisotropias transversais, ou seja,

$$J_{1/2}^x = J_{1/2}^y = J_{1/2} \quad e \quad E=0 \;,$$

os resultados obtidos para os campos críticos nas duas direções ortogonais ao eixo fácil z devem ser iguais. É fácil verificar que as expressões obtidas nas duas últimas secções se reduzem a:

$$\mu H_c^{\pm}(T)=\mu H_{c_0}^{\pm}-\mu\Delta H_{c_0}^{\pm}-\mu\Delta H_c^{\pm}(T) \;, \tag{I.115}$$

onde

$$\mu H_{c_0}^{+}=2z_1SJ_1+\frac{D}{4} \;, \tag{I.116}$$

$$\mu H_{c_0}^{-}=z_1S(J_1+J_1^z)+z_2S(J_2-J_2^z)-\left(2S-\frac{3}{4}\right)D \;, \tag{I.117}$$

$$\mu\Delta H_c^{+}(T)=\frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2}\cdot\frac{6J_1}{[3(J_1-J_1^z)+6(J_2^z-J_2)+D]^{1/2}}\cdot\frac{\left(\frac{K_BT}{S}\right)^2}{(J_1-4J_2)^{3/2}} \;, \tag{I.118}$$

$$\mu\Delta H_c^{-}(T)=\frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2}\cdot\frac{[3(J_1+J_1^z)+6(J_2-J_2^z)-D]}{[3(J_1^z-J_1)-6(J_2^z-J_2)-D]^{1/2}}\cdot\frac{\left(\frac{K_BT}{S}\right)^2}{(J_1^z-4J_2^z)^{3/2}}\;. \tag{I.119}$$

Mesmo que o sistema apresente exclusivamente anisotropias uniaxiais, a dependência do campo crítico com a temperatura na transição spin flop - paramagnética é quadrática para campos magnéticos ortogonais ao eixo fácil. Vale lembrar que para antiferromagnetos uniaxiais[2] com o campo aplicado paralelamente ao eixo fácil, a dependência desse campo crítico com a temperatura segue a lei de Bloch, ou seja, é do tipo $T^{3/2}$.

No capítulo seguinte investigamos mais detalhadamente o comportamento da fronteira de fase spin flop - paramagnética em função da temperatura para antiferromagnetos anisotrópicos. Em particular, deseja-se compreender como que para modelos antiferromagnéticos com simetria axial, a dependência da fronteira de fase spin flop - paramagnética com a temperatura passa de uma forma $T^{3/2}$ (campo paralelo ao eixo fácil) para uma dependência T^2 (campo perpendicular ao eixo fácil). No último capítulo deste trabalho, faremos algumas aplicações dos resultados desse capítulo para determinados sistemas antiferromagnéticos.

CAPÍTULO II

TRANSIÇÃO SPIN-FLOP - PARAMAGNÉTICA NUM CAMPO DE DIREÇÃO ARBITRÁRIA

Neste capítulo determinamos o campo crítico para a transição spin flop - paramagnética em função da temperatura e em função do ângulo θ que o campo magnético forma com o eixo fácil de magnetização z. Consideramos aqui a mesma Hamiltoniana modelo do capítulo anterior, ou seja,

$$\mathcal{H}=\sum_{(\alpha,\beta)}\left[J_1^x S_\alpha^x S_\beta^x+J_1^y S_\alpha^y S_\beta^y+J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z\right]+\sum_{(\alpha,\delta)}\left[J_2^x S_\alpha^x S_\delta^x+J_2^y S_\alpha^y S_\delta^y+\right.$$
$$\left.J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z\right]+\sum_\alpha D(S_\alpha^z)^2+\sum_\alpha E\left[(S_\alpha^x)^2-(S_\alpha^y)^2\right]-\mu\sum_\alpha \vec{H}\cdot\vec{S}_\alpha \qquad \text{(II.1)}$$

onde agora H forma um ângulo θ com o eixo fácil cristalino z. Levando-se em conta que na fase paramagnética a direção do campo magnético representa a direção a partir da qual são excitadas as ondas de spin, efetuamos uma rotação no sistema de eixos de um ângulo θ em torno do eixo y. O campo magnético está no plano x z e o novo eixo de quantização será z' (paralelo ao campo H). Temos então a seguinte transformação para os operadores de spin nos dois sistemas de coordenadas:

$$S^x = S^{x'}\cos\theta + S^{z'}\operatorname{sen}\theta$$

$$S^y = S^{y'} \qquad \text{(II.2)}$$

$$S^z = -S^{x'}\operatorname{sen}\theta + S^{z'}\cos\theta$$

Levando essa transformação na equação (II.1), teremos:

$$
\begin{aligned}
\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} & \Big[J_1^{x}\big(S_\alpha^{x'}S_\beta^{x'}\cos^2\theta + S_\alpha^{x'}S_\beta^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + S_\alpha^{z'}S_\beta^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + \\
& S_\alpha^{z'}S_\beta^{z'}\,\mathrm{sen}^2\theta\big) + J_1^{y}S_\alpha^{y'}S_\beta^{y'} + J_1^{z}\big(S_\alpha^{x'}S_\beta^{x'}\,\mathrm{sen}^2\theta - \\
& S_\alpha^{x'}S_\beta^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta - S_\alpha^{z'}S_\beta^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + S_\alpha^{z'}S_\beta^{z'}\cos^2\theta\big)\Big] + \\
\sum_{(\alpha,\delta)} & \Big[J_2^{x}\big(S_\alpha^{x'}S_\delta^{x'}\cos^2\theta + S_\alpha^{x'}S_\delta^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + S_\alpha^{z'}S_\delta^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + \\
& S_\alpha^{z'}S_\delta^{z'}\,\mathrm{sen}^2\theta\big) + J_2^{y}S_\alpha^{y'}S_\delta^{y'} + J_2^{z}\big(S_\alpha^{x'}S_\delta^{x'}\,\mathrm{sen}^2\theta - S_\alpha^{x'}S_\delta^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta - \\
& S_\alpha^{z'}S_\delta^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + S_\alpha^{z'}S_\delta^{z'}\cos^2\theta\big)\Big] + D\sum_\alpha\Big[\big(S_\alpha^{x'}\big)^2\mathrm{sen}^2\theta \; - \\
& S_\alpha^{x'}S_\alpha^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta - S_\alpha^{z'}S_\alpha^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + \big(S_\alpha^{z'}\big)^2\cos^2\theta\Big] \; + \\
E & \sum_\alpha\Big[\big(S_\alpha^{x'}\big)^2\cos^2\theta + S_\alpha^{x'}S_\alpha^{z'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + S_\alpha^{z'}S_\alpha^{x'}\cos\theta\,\mathrm{sen}\,\theta + \\
& \big(S_\alpha^{z'}\big)^2\mathrm{sen}^2\theta - \big(S_\alpha^{y'}\big)^2\Big] - \mu H\sum_\alpha S_\alpha^{z'} \quad .
\end{aligned}
\tag{II.3}
$$

Definindo-se os seguintes operadores de spin:

$$S_\alpha^{+'} = S_\alpha^{x'} + i\,S_\alpha^{y'} \quad ,$$

e (II.4)

$$S_\alpha^{-'} = S_\alpha^{x'} - i\,S_\alpha^{y'} \quad .$$

e após eliminarmos a notação linha nos operadores, teremos que:

$$
\begin{aligned}
\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \Big[& \tfrac{1}{4} J_1^x (S_\alpha^+ S_\beta^+ + S_\alpha^+ S_\beta^- + S_\alpha^- S_\beta^+ + S_\alpha^- S_\beta^-) \cos^2\theta + \tfrac{1}{2} J_1^x (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) \cdot \\
& S_\beta^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + \tfrac{1}{2} J_1^x S_\alpha^z (S_\beta^+ + S_\beta^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + J_1^x S_\alpha^z S_\beta^z \,\mathrm{sen}^2\theta - \\
& \tfrac{1}{4} J_1^y (S_\alpha^+ S_\beta^+ - S_\alpha^+ S_\beta^- - S_\alpha^- S_\beta^+ + S_\alpha^- S_\beta^-) + \tfrac{1}{4} J_1^z (S_\alpha^+ S_\beta^+ + S_\alpha^+ S_\beta^- + \\
& S_\alpha^- S_\beta^+ + S_\alpha^- S_\beta^-) \,\mathrm{sen}^2\theta - \tfrac{1}{2} J_1^z (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) S_\beta^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta \; - \\
& \tfrac{1}{2} J_1^z S_\alpha^z (S_\beta^+ + S_\beta^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + J_1^z S_\alpha^z S_\beta^z \cos^2\theta \; \Big] \quad + \\
\sum_{(\alpha,\delta)} \Big[& \tfrac{1}{4} J_2^x (S_\alpha^+ S_\delta^+ + S_\alpha^+ S_\delta^- + S_\alpha^- S_\delta^+ + S_\alpha^- S_\delta^-) \cos^2\theta + \tfrac{1}{2} J_2^x (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) \cdot \\
& S_\delta^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + \tfrac{1}{2} J_2^x S_\alpha^z (S_\delta^+ + S_\delta^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + J_2^x S_\alpha^z S_\delta^z \,\mathrm{sen}^2\theta - \\
& \tfrac{1}{4} J_2^y (S_\alpha^+ S_\delta^+ - S_\alpha^+ S_\delta^- - S_\alpha^- S_\delta^+ + S_\alpha^- S_\delta^-) + \tfrac{1}{4} J_2^z (S_\alpha^+ S_\delta^+ + S_\alpha^+ S_\delta^- + \\
& S_\alpha^- S_\delta^+ + S_\alpha^- S_\delta^-) \,\mathrm{sen}^2\theta - \tfrac{1}{2} J_2^z (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) S_\delta^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta - \\
& \tfrac{1}{2} J_2^z S_\alpha^z (S_\delta^+ + S_\delta^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + J_2^z S_\alpha^z S_\delta^z \cos^2\theta \Big] + D \sum_\alpha \Big[\tfrac{1}{4} (S_\alpha^+ S_\alpha^+ + \\
& S_\alpha^+ S_\alpha^- + S_\alpha^- S_\alpha^+ + S_\alpha^- S_\alpha^-) \,\mathrm{sen}^2\theta - \tfrac{1}{2} (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) S_\alpha^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta \; - \\
& \tfrac{1}{2} S_\alpha^z (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + (S_\alpha^z)^2 \cos^2\theta \Big] + E \sum_\alpha \Big[\tfrac{1}{4} (S_\alpha^+ S_\alpha^+ + \\
& S_\alpha^+ S_\alpha^- + S_\alpha^- S_\alpha^+ + S_\alpha^- S_\alpha^-) \cos^2\theta + \tfrac{1}{2} (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) S_\alpha^z \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta \; + \\
& \tfrac{1}{2} S_\alpha^z (S_\alpha^+ + S_\alpha^-) \cos\theta \,\mathrm{sen}\,\theta + (S_\alpha^z)^2 \,\mathrm{sen}^2\theta + \tfrac{1}{4} (S_\alpha^+ S_\alpha^+ \; - \\
& S_\alpha^+ S_\alpha^- - S_\alpha^- S_\alpha^+ + S_\alpha^- S_\alpha^-) \Big] - \mu H \sum_\alpha S_\alpha^z \, .
\end{aligned}
\qquad \text{(II.5)}
$$

Após introduzirmos a representação de Holstein - Primakoff para os operadores de spin (ver equações (I.5)) e efetuarmos uma transformada de Fourier nos operadores de desvio de spin obtemos:

$$\mathcal{H} = \mathcal{H}_0 + \mathcal{H}_2 + \mathcal{H}_4 \tag{II.6}$$

onde

$$\mathcal{H}_0 = \tfrac{1}{2} N z_1 S^2 K_1 + \tfrac{1}{2} N z_2 S^2 K_2 + \tfrac{NS}{2} L_1 - \tfrac{NS}{2} E + N S^2 L_2 - NS\mu H \, , \tag{II.7}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_2 = \sum_{\vec{k}} \Big\{ & \Big[\tfrac{1}{2} z_1 S M_1^+ \gamma_{\vec{k}} - z_1 S K_1 + \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^+ \gamma'_{\vec{k}} - z_2 S K_2 + (S-\tfrac{1}{2}) L_1 - \\ & (S-\tfrac{1}{2}) E - 2 (S-\tfrac{1}{2}) L_2 + \mu H \Big] a_{\vec{k}}^+ a_{\vec{k}} + \Big[\tfrac{1}{4} z_1 S M_1^- \gamma_{\vec{k}} + \\ & \tfrac{1}{4} z_2 S M_2^- \gamma'_{\vec{k}} + \tfrac{1}{2}(S-\tfrac{1}{4}) L_1 + \tfrac{1}{2}(S-\tfrac{1}{4}) E\Big]\left(a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}} + a_{\vec{k}}^+ a_{-\vec{k}}^+\right) \Big\} \, , \end{aligned} \tag{II.8}$$

$$\begin{aligned}\mathcal{H}_4 = -\frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1,\vec{k}_2,\vec{k}_3} \Big\{ & \Big[\tfrac{1}{2} z_1 S M_1^+ (\gamma_3 + \gamma_{3+2-1}) - 2 z_1 S K_1 \gamma_{1-2} + \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^+ (\gamma'_3 + \gamma'_{3+2-1}) - \\ & 2 z_2 S K_2 \gamma'_{1-2} + 2 S L_1 - 2 S E - 4 S L_2 \Big] a_{3+2-1}^+ a_1^+ a_2 a_3 + \Big[\tfrac{1}{2} z_1 S M_1^- \gamma_3 + \\ & \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^- \gamma'_3 + S L_1 + S E \Big] a_{1+2+3}^+ a_1 a_2 a_3 + \Big[\tfrac{1}{2} z_1 S M_1^- \gamma_{3-2-1} + \\ & \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^- \gamma'_{3-2-1} + S L_1 + S E \Big] a_{3-2-1}^+ a_1^+ a_2^+ a_3 \Big\} \, , \end{aligned} \tag{II.9}$$

com

$$\begin{aligned} K_1 &= J_1^x \operatorname{sen}^2\theta + J_1^y \cos^2\theta \, , \\ K_2 &= J_2^x \operatorname{sen}^2\theta + J_2^y \cos^2\theta \, , \\ L_1 &= D \operatorname{sen}^2\theta + E \cos^2\theta \, , \end{aligned} \tag{II.10}$$

$$L_2 = D\cos^2\theta + E\,\mathrm{sen}^2\theta\,,$$

$$M_1^{\pm} = J_1^x\cos^2\theta + J_1^z\,\mathrm{sen}^2\theta \pm J_1^y\,,$$

$$M_2^{\pm} = J_2^x\cos^2\theta + J_2^z\,\mathrm{sen}^2\theta \pm J_2^y\,.$$

Devido à rotação do sistema de coordenadas, surgem naturalmente termos na Hamiltoniana que contém um e três operadores de desvios de spin. Entretanto, pode-se mostrar que a condição de minimização, $\frac{\partial H_0}{\partial\theta} = 0$, que deve ser satisfeita na posição de equilíbrio dos spins, elimina os termos lineares e cúbicos nos operadores de desvio de spin.

A partir da equação de movimento para a função de Grenn $\langle\langle a_{\vec{\lambda}}\,;\,a^{+}_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle$, obtemos que:

$$\begin{aligned}
\mathcal{E}\langle\langle a_{\vec{\lambda}};a^{+}_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_{\mathcal{E}} = \frac{1}{2\pi}\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'} + \langle\langle\Big[A_{\vec{\lambda}}a_{\vec{\lambda}} + 2B_{\vec{\lambda}}a^{+}_{-\vec{\lambda}} - \sum_{\vec{K}_1,\vec{K}_2}\big(C_{\vec{\lambda}}a_1a_2a_{\vec{\lambda}-1-2} + {} \\
D_{\vec{\lambda}}a^{+}_1a^{+}_2a_{\vec{\lambda}+1+2} + E_{\vec{\lambda}}a^{+}_{1-2-\vec{\lambda}}a^{+}_2a_1 + F_{\vec{\lambda}}a^{+}_{2-\vec{\lambda}-1}a^{+}_1a_2 + {} \\
G_{\vec{\lambda}}a^{+}_1a_2a_{\vec{\lambda}+1-2} + H_{\vec{\lambda}}a^{+}_{1+2-\vec{\lambda}}a_2a_1\big)\Big];a_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_{\mathcal{E}}\,,
\end{aligned} \qquad \text{(II.11)}$$

sendo que

$$\begin{aligned}
A_{\vec{\lambda}} = \tfrac{1}{2}z_1SM_1^{+}\gamma_{\vec{\lambda}} - z_1SK_1 + \tfrac{1}{2}z_2SM_2^{+}\gamma'_{\vec{\lambda}} - z_2SK_2 + (S-1/2)L_1 - {} \\
(S-1/2)E - 2(S-1/2)L_2 + \mu H\,,
\end{aligned} \qquad \text{(II.12)}$$

$$B_{\vec{\lambda}} = \tfrac{1}{4}z_1SM_1^{-}\gamma_{\vec{\lambda}} + \tfrac{1}{4}z_2SM_2^{-}\gamma'_{\vec{\lambda}} + \tfrac{1}{2}(S-1/4)L_1 + \tfrac{1}{2}(S-1/4)E\,, \qquad \text{(II.13)}$$

$$C_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\Big[\tfrac{1}{2}z_1SM_1^{-}\gamma_{\vec{\lambda}-1-2} + \tfrac{1}{2}z_2SM_2^{-}\gamma'_{\vec{\lambda}-1-2} + S(L_1+E)\Big]\,, \qquad \text{(II.14)}$$

$$D_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\left[\frac{1}{2}\mathcal{J}_1 S M_1^- \gamma_{\vec{\lambda}} + \frac{1}{2}\mathcal{J}_2 S M_2^- \gamma'_{\vec{\lambda}} + S(L_1+E)\right], \tag{II.15}$$

$$E_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\left[\frac{1}{2}\mathcal{J}_1 S M_1^- \gamma_{1-2-\vec{\lambda}} + \frac{1}{2}\mathcal{J}_2 S M_2^- \gamma'_{1-2-\vec{\lambda}} + S(L_1+E)\right], \tag{II.16}$$

$$F_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\left[\frac{1}{2}\mathcal{J}_1 S M_1^- \gamma_{2-1-\vec{\lambda}} + \frac{1}{2}\mathcal{J}_2 S M_2^- \gamma'_{2-1-\vec{\lambda}} + S(L_1+E)\right], \tag{II.17}$$

$$G_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\left[\frac{1}{2}\mathcal{J}_1 S M_1^+ (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_{\vec{\lambda}+1-2}) - 2\mathcal{J}_1 S K_1 \gamma_{1-2} + \frac{1}{2}\mathcal{J}_2 S M_2^+ (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_{\vec{\lambda}+1-2}) - 2\mathcal{J}_2 S K_2 \gamma'_{1-2} + 2S(L_1 - E - 2L_2)\right], \tag{II.18}$$

$$H_{\vec{\lambda}} = \frac{1}{4SN}\left[\frac{1}{2}\mathcal{J}_1 S M_1^+ (\gamma_1 + \gamma_{1+2-\vec{\lambda}}) - 2\mathcal{J}_1 S K_1 \gamma_{\vec{\lambda}-2} + \frac{1}{2}\mathcal{J}_2 S M_2^+ (\gamma'_1 + \gamma'_{1+2-\vec{\lambda}}) - 2\mathcal{J}_2 S K_2 \gamma'_{\vec{\lambda}-2} + 2S(L_1 - E - 2L_2)\right]. \tag{II.19}$$

Sendo $\mathcal{H}$ hermitiano, é fácil de se obter a equação de movimento para $\langle\langle a^+_{-\vec{\lambda}} ; a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon$. Temos, portanto:

$$\varepsilon\langle\langle a^+_{-\vec{\lambda}} ; a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon = \langle\langle\Big[-A_{\vec{\lambda}} a^+_{-\vec{\lambda}} - 2B_{\vec{\lambda}} a_{\vec{\lambda}} + \sum_{K_1,K_2}\big(C_{\vec{\lambda}} a^+_{-\lambda-1-2} a^+_2 a^+_1 + D_{\vec{\lambda}} a^+_{-\vec{\lambda}+1+2} a_2 a_1 + E_{\vec{\lambda}} a^+_1 a_2 a_{1-2+\vec{\lambda}} + F_{\vec{\lambda}} a^+_2 a_1 a_{2+\vec{\lambda}-1} + G_{\vec{\lambda}} a^+_{-\vec{\lambda}+1-2} a_2 a_1 + H_{\vec{\lambda}} a^+_1 a^+_2 a_{1+2+\vec{\lambda}}\big)\Big] ; a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon . \tag{II.20}$$

Após algumas manipulações algébricas obtemos a seguinte solução para o sistema de equações (II.11) e (II.20):

$$\begin{aligned} \langle\langle a_{\vec{\lambda}} ; a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon &= \frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi}\cdot\frac{\varepsilon + \omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon^2 - \varepsilon^2_{\vec{\lambda}}} , \\ \langle\langle a^+_{-\vec{\lambda}} ; a^+_{\vec{\lambda}'}\rangle\rangle_\varepsilon &= -\frac{\delta_{\vec{\lambda}\vec{\lambda}'}}{2\pi}\cdot\frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon^2 - \varepsilon^2_{\vec{\lambda}}} , \end{aligned} \tag{II.21}$$

com

$$\varepsilon_{\vec{\lambda}}^{2} = \omega_{\vec{\lambda}}^{2} - \Gamma_{\vec{\lambda}}^{2} \quad , \tag{II.22}$$

sendo que

$$\begin{aligned}
\omega_{\vec{\lambda}} = {} & \tfrac{1}{2} \mathcal{J}_1 S M_1^{+} \gamma_{\vec{\lambda}} - \mathcal{J}_1 S K_1 + \tfrac{1}{2} \mathcal{J}_2 S M_2^{+} \gamma'_{\vec{\lambda}} - \mathcal{J}_2 S K_2 + (S-1/2)(L_1 - E) - \\
& 2(S-1/2) L_2 + \mu H - \frac{1}{4SN} \sum_{\vec{K}_1} \Big\{ \big[\mathcal{J}_1 S M_1^{-} (\gamma_{\vec{\lambda}} + 2\gamma_1) + \mathcal{J}_2 S M_2^{-} (\gamma'_{\vec{\lambda}} + 2\gamma'_1) + \\
& 6S(L_1 + E) \big] \langle a_1 a_{-1} \rangle + \big[2\mathcal{J}_1 S M_1^{+} (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) - 4\mathcal{J}_1 S K_1 (1 + \gamma_{1-\vec{\lambda}}) + \\
& 2\mathcal{J}_2 S M_2^{+} (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) - 4\mathcal{J}_2 S K_2 (1 + \gamma'_{1-\vec{\lambda}}) + 8S(L_1 - E - 2L_2) \big] \langle a_1^{+} a_1 \rangle \Big\} \quad ,
\end{aligned} \tag{II.23}$$

e

$$\begin{aligned}
\Gamma_{\vec{\lambda}} = {} & \tfrac{1}{2} \mathcal{J}_1 S M_1^{-} \gamma_{\vec{\lambda}} + \tfrac{1}{2} \mathcal{J}_2 S M_2^{-} \gamma'_{\vec{\lambda}} + (S-1/4)(L_1 + E) - \frac{1}{4SN} \sum_{\vec{K}_1} \Big\{ \big[\mathcal{J}_1 S M_1^{-} (2\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) + \\
& \mathcal{J}_2 S M_2^{-} (2\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) + 6S(L_1 + E) \big] \langle a_1^{+} a_1 \rangle + \big[\mathcal{J}_1 S M_1^{+} (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) - 4\mathcal{J}_1 S K_1 \gamma_{1+\vec{\lambda}} + \\
& \mathcal{J}_2 S M_2^{+} (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) - 4\mathcal{J}_2 S K_2 \gamma'_{1+\vec{\lambda}} + 4S(L_1 - E - 2L_2) \big] \langle a_1 a_{-1} \rangle \Big\} \quad .
\end{aligned} \tag{II.24}$$

Determinamos os valores médios $\langle a_{\vec{\lambda}}^{+} a_{\vec{\lambda}} \rangle$ e $\langle a_{\vec{\lambda}} \; a_{-\vec{\lambda}} \rangle$ à partir dos saltos das funções de Green $\langle\langle a_{\vec{\lambda}} \; ; \; a_{\vec{\lambda}}^{+} \rangle\rangle$ e $\langle\langle a_{-\vec{\lambda}}^{+} \; ; \; a_{\vec{\lambda}}^{+} \rangle\rangle$ ao cruzarem o eixo real. Teremos portanto que:

$$\begin{aligned}
\langle a_{\vec{\lambda}}^{+} a_{\vec{\lambda}} \rangle &= \frac{1}{2} \cdot \left(\frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}} - 1 \right) + \frac{\omega_{\vec{\lambda}}}{\varepsilon_{\vec{\lambda}}} n_{\vec{\lambda}} \quad , \\
\langle a_{\vec{\lambda}}^{+} a_{-\vec{\lambda}}^{+} \rangle = \langle a_{\vec{\lambda}} a_{-\vec{\lambda}} \rangle &= - \frac{\Gamma_{\vec{\lambda}}}{2\varepsilon_{\vec{\lambda}}} \cdot (1 + 2 n_{\vec{\lambda}}) \, ,
\end{aligned} \tag{II.25}$$

onde

$$n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta \varepsilon_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1} .$$

Os valores médios acima são tomados em primeria a proximação em relação à Hamiltoniana H_2, ou seja,

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}} a_{\vec{\lambda}} \rangle = \frac{1}{2}\left(\frac{A_{\vec{\lambda}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} - 1\right) + \frac{A_{\vec{\lambda}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} n_{\vec{\lambda}} ,$$

$$\langle a^{+}_{\vec{\lambda}} a^{+}_{-\vec{\lambda}} \rangle = \langle a_{\vec{\lambda}} a_{-\vec{\lambda}} \rangle = -\frac{B_{\vec{\lambda}}}{2\mathring{\varepsilon}_{\vec{\lambda}}} \left(1 + 2n_{\vec{\lambda}}\right) , \qquad \text{(II.26)}$$

sendo que agora

$$\mathring{\varepsilon}_{\vec{\lambda}} = \left(A^2_{\vec{\lambda}} - B^2_{\vec{\lambda}}\right)^{1/2} \qquad \text{e} \qquad n_{\vec{\lambda}} = \left(e^{\beta \varepsilon_{\vec{\lambda}}} - 1\right)^{-1} .$$

O procedimento para a determinação do campo crítico que separa as fases spin flop e paramagnética é análogo ao descrito no capítulo anterior. O campo crítico é determinado pela condição $\varepsilon_{\vec{\lambda}_V} = 0$, onde $\vec{\lambda}_V$ é qualquer um dos vértices da primeira ZB . Para uma rede cúbica simples obtemos então que:

$$\mu H^{\pm}_{c}(T) = \mu H^{\pm}_{co} - \mu \Delta H^{\pm}_{co} - \mu \Delta H^{\pm}_{c}(T) , \qquad \text{(II.27)}$$

onde

$$\mu H^{\pm}_{co} = z_1 S\left(\tfrac{1}{2}M^{+}_{1} + K_1\right) - z_2 S\left(\tfrac{1}{2}M^{+}_{2} - K_2\right) - (S - 1/2)(L_1 - E) + 2(S - 1/2) L_2 \pm$$

$$\left[-\tfrac{1}{2} z_1 S M^{-}_{1} + \tfrac{1}{2} z_2 S M^{-}_{2} + (S - 1/4)(L_1 + E)\right] , \qquad \text{(II.28)}$$

$$\mu \Delta H^{\pm}_{co} = \frac{1}{8SN} \sum_{\vec{k}_1} \left[M^{\pm}_{\vec{k}_1}\left(\frac{\mathring{\omega}_{\vec{k}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}_1}} - 1\right) - N^{\pm}_{\vec{k}_1} \frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{k}_1}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}_1}}\right]_{/\mu H^{\pm}_{co}} , \qquad \text{(II.29)}$$

$$\mu\Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{1}{4SN}\sum_{\vec{K_1}}\left[M^{\pm}_{\vec{K_1}}\frac{\mathring{\omega}^{\pm}_{\vec{K_1}}}{\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{K_1}}} - N^{\pm}_{\vec{K_1}}\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{K_1}}}{\mathring{\mathcal{E}}_{\vec{K_1}}}\right] n_{\vec{K_1}} \Big/ \mu H^{\pm}_{co} \ , \tag{II.30}$$

sendo que

$$M^{\pm}_{\vec{K_1}} = \left[4 z_1 S\left(\tfrac{1}{2}M_1^+ + K_1\right)(1-\gamma_1) - 4 z_2 S\left(\tfrac{1}{2}M_2^+ - K_2\right)(1+\gamma_1') - 8S(L_1 - E - 2L_2)\right] \mp$$
$$\left[z_1 S M_1^-(2-\gamma_1) - z_2 S M_2^-(2+\gamma_1') - 6S(L_1+E)\right] , \tag{II.31}$$

$$N^{\pm}_{\vec{K_1}} = \left[z_1 S M_1^-(1-2\gamma_1) - z_2 S M_2^-(1+2\gamma_1') - 6S(L_1+E) \mp \left[z_1 S M_1^+(1-\gamma_1) - \right.\right.$$
$$\left.\left. 4 z_1 S K_1\gamma_1 - z_2 S M_2^+(1+\gamma_1') + 4 z_2 S K_2 \gamma_1' - 4S(L_1 - E - 2L_2)\right]\right] , \tag{II.32}$$

$$\mathring{\omega}^{\pm}_{\vec{K_1}} = \tfrac{1}{2} z_1 S M_1^+\gamma_1 - z_1 S K_1 + \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^+ \gamma_1' - z_2 S K_2 + (S-1/2)(L_1 - E) -$$
$$2(S-1/2)L_2 + \mu H^{\pm}_{co} \tag{II.33}$$

e

$$\mathring{\Gamma}_{\vec{K_1}} = \tfrac{1}{2} z_1 S M_1^-\gamma_1 + \tfrac{1}{2} z_2 S M_2^- \gamma_1' + (S-1/4)(L_1+E) \ . \tag{II.34}$$

Lembramos que se a desigualdade abaixo for satisfeita,

$$z_1 S\left(J_1^x\cos^2\theta + J_1^z \operatorname{sen}^2\theta - J_1^y\right) + z_2 S\left(J_2^y - J_2^x\cos^2\theta - J_2^z \operatorname{sen}^2\theta\right) >$$
$$2(S-1/4).\left(D \operatorname{sen}^2\theta + E\cos^2\theta + E\right) , \tag{II.35}$$

a solução é μH^-_{co} enquanto que invertendo-se o sinal da desigualdade a solução fisicamente aceitável é μH^+_{co}.

As maiores contribuições à soma no termo dependente da temperatura vem dos vetores de onda nas vizinhanças dos vér tices da ZB . Escrevendo que

$$\vec{q} = a\left(\vec{K}_1 - \vec{K}_v\right) \quad , \tag{II.36}$$

onde $\vec{K}_v$ é um vértice da ZB , o espectro de energia dos magnons é dado por

$$\overset{\circ}{\varepsilon}{}^{\pm}_{q} = \Big\{ \mp \Big[z_1 S\left(J_1^x \cos^2\theta + J_1^z \operatorname{sen}^2\theta - J_1^y\right) - z_2 S\left(J_2^x \cos^2\theta + J_2^z \operatorname{sen}^2\theta - J_2^y\right) - 2(S - 1/4)\left(D \operatorname{sen}^2\theta + E\cos^2\theta + E\right)\Big]\Big\}^{1/2} \cdot \Big[\tfrac{1}{6} z_1 S\left(J_1^{y,x}\cos^2\theta + J_1^{y,z}\operatorname{sen}^2\theta\right) - \tfrac{1}{3} z_2 S\left(J_2^{y,x}\cos^2\theta + J_2^{y,z}\operatorname{sen}^2\theta\right)\Big]^{1/2} \cdot q \tag{II.37}$$

A chave em (II.37) é sempre positiva, pois como vimos na expressão (II.35), a solução μH^+_{co} ocorre se

$$z_1 S\left(J_1^x \cos^2\theta + J_1^z \operatorname{sen}^2\theta - J_1^y\right) - z_2 S\left(J_2^x \cos^2\theta + J_2^z \operatorname{sen}^2\theta - J_2^y\right) < 2(S - 1/4)\left(D \operatorname{sen}^2\theta + E\cos^2\theta + E\right) , \tag{II.38}$$

e a solução μH^-_{co} é obtida invertendo-se a desigualdade em (II.38).

Lembrando que o número médio de ocupação dos bosons $n_{\vec{q}}$ é muito pequeno na região de baixas temperaturas que estamos considerando, podemos escrever que:

$$n_{\vec{q}} = \left(e^{\beta \overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{q}}} - 1\right)^{-1} \approx \sum_{n=1}^{\infty} e^{-\beta n \overset{\circ}{\varepsilon}_{\vec{q}}} \quad . \tag{II.39}$$

Considerando que temos apenas um átomo por célula unitária em uma rede cúbica simples, é fácil transformar a soma na equação (II.30) em uma integral e realizar a integração em coordenadas esféricas. Finalmente, obtemos a seguinte expressão para a dependência do campo crítico com a temperatura:

$$\mu \Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{3\zeta(2)}{\sqrt{2}\,(2\pi)^2} \cdot \frac{3A-6B-C}{\mp F^{1/2} \cdot G^{3/2}} \cdot \left(\frac{K_B T}{S}\right)^2 , \qquad \text{(II.40)}$$

onde

$$A = J_1^x\left(\cos^2\theta(1\mp 1)\mp 2\,\mathrm{sen}^2\theta\right) + J_1^z\left(\mathrm{sen}^2\theta(1\mp 1)\mp 2\cos^2\theta\right) - J_1^y(1\pm 1),$$

$$B = J_2^x\left(\cos^2\theta(1\mp 1)\pm 2\,\mathrm{sen}^2\theta\right) + J_2^z\left(\mathrm{sen}^2\theta(1\pm 1)\pm 2\cos^2\theta\right) - J_2^y(1\pm 1),$$

$$C = D\left(\mathrm{sen}^2\theta(1\mp 1)\pm 2\cos^2\theta\right) + E\left(\cos^2\theta(1\mp 1)+(1\pm 1)\pm 2\,\mathrm{sen}^2\theta\right), \qquad \text{(II.41)}$$

$$F = \mp\Big[3\left(J_1^x\cos^2\theta + J_1^z\,\mathrm{sen}^2\theta - J_1^y\right) - 6\left(J_2^x\cos^2\theta + J_2^z\,\mathrm{sen}^2\theta - J_2^y\right) -$$

$$\left(D\,\mathrm{sen}^2\theta + E\cos^2\theta + E\right),$$

$$G = \left(J_1^{y,x}\cos^2\theta + J_1^{y,z}\,\mathrm{sen}^2\theta\right) - 4\left(J_2^{y,x}\cos^2\theta + J_2^{y,z}\,\mathrm{sen}^2\theta\right),$$

onde colocamos que $z_1 = 6$, $z_2 = 12$ para uma rede cúbica simples, e $\zeta(2) = \sum_{n=1}^{\infty} n^{-2}$.

Nas expressões acima, apenas termos até ordem $1/S$ estão sendo considerados; por isso, colocamos explicitamente $\xi = 1$ na parte dependente da temperatura. Portanto, a dependência do campo crítico paramagnético com a temperatura é quadrática, para qualquer valor do ângulo entre o campo e o eixo fácil cristalino.

Colocando $\theta = 0$ nas expressões (II.28) e (II.40), obtém-se:

$$\mu H_{c_0}^{\pm} = z_1 S(J_1^{y,x} + J_1^{z}) - z_2 S(J_2^{y,x} - J_2^{z}) + 2(S-1/2)D \pm 2(S-1/4)E \tag{II.42}$$

e

$$\mu \Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2} \cdot \frac{\left[D \pm E + 3(J_1^{y,x} + J_1^{z}) - 6(J_2^{y,x} - J_2^{z})\right]}{\left[3(J_1^{y,x} - J_1^{x,y}) + 6(J_2^{x,y} - J_2^{y,x}) \pm 2E\right]^{1/2}} \cdot \frac{\left(\frac{K_B T}{S}\right)^2}{(J_1^{y,x} - 4J_2^{y,x})^{3/2}} \,. \tag{II.43}$$

Essas expressões são idênticas às equações (I.59) e (I.68) obtidas no capítulo anterior para o campo magnético externo aplicado na direção do eixo fácil z. Também, colocando-se $\theta = \pi/2$, obtemos as seguintes expressões:

$$\mu H_{c_0}^{\pm} = z_1 S(J_1^{y,z} + J_1^{x}) - z_2 S(J_2^{y,z} - J_2^{x}) - (S-1/2)(D-E) + 2(S-1/2)E \pm (S-1/4)(D+E) \,, \tag{II.44}$$

e

$$\mu \Delta H_c^{\pm}(T) = \frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)}{4\pi^2} \cdot \frac{\left[3(J_1^{x} + J_1^{y,z}) + 6(J_2^{x} - J_2^{y,z}) + \frac{1}{2}(3E - D \pm E \pm D)\right]}{\left[3(J_1^{y,z} - J_1^{z,y}) - 6(J_2^{y,z} - J_2^{z,y}) \pm (D+E)\right]^{1/2}} \cdot \frac{\left(\frac{K_B T}{S}\right)^2}{\left[J_1^{y,z} - 4J_2^{y,z}\right]^{3/2}} \,, \tag{II.45}$$

que são idênticas às expressões (I.91) e (I.98) do capítulo anterior para um campo perpendicular ao eixo fácil (H paralelo ao eixo x).

Vamos analisar mais detalhadamente os resultados deste capítulo para os sistemas antiferromagnéticos que apresentam apenas anisotropias uniaxiais. Para fixar as idéias, vamos simplificar as equações anteriores considerando que:

$$J_2 = 0 \quad , \quad J_1^{x,y,z} = J \quad e \quad E = 0 \quad .$$

Pode-se mostrar que nessas condições o espectro de energia dos magnons pode ser escrito na seguinte forma:

$$\overset{\circ}{\mathcal{E}}{}_q^2 = \left[\frac{1}{6} z S J q^2 - 2SD\,\mathrm{sen}^2\theta\right] . \left(\frac{1}{6} z S J q^2\right) \quad . \tag{II.46}$$

Note que nessa expressão não estamos desprezando o primeiro termo no colchete, como fizemos anteriormente. Aqui, o vetor de onda $\vec{q}$, ainda é medido à partir dos vértices da primeira ZB . É fácil verificar que podemos considerar que o espectro de energia é quadrático se

$$\frac{1}{6} z S J q^2 \gg 2S|D|\,\mathrm{sen}^2\theta \, , \tag{II.47}$$

ou seja,

$$\mathrm{sen}^2\theta \ll \frac{zSJ}{12S|D|} q^2 \quad . \tag{II.48}$$

Nessa situação, teremos que:

$$\overset{\circ}{\mathcal{E}}_q \approx \left(\frac{1}{6} z S J q^2\right) , \tag{II.49}$$

o que permite escrever a seguinte relação

$$\mathrm{sen}\,\theta \ll \left(\frac{\overset{\circ}{\mathcal{E}}_q}{2S|D|}\right)^{1/2} \quad . \tag{II.50}$$

É bom lembrar que um espectro quadrático no vetor de onda leva a uma dependência do tipo $T^{3/2}$ para o campo crítico, enquanto que um espectro linear no vetor de onda leva a um campo crítico que varia com o quadrado da temperatura.[12]

Podemos concluir que um espectro quadrático é aceitável até ângulos que obedeçam à desigualdade anterior. Podemos relacionar a energia de excitação das ondas de spin com a temperatura. Levando-se em conta que para excitar um magnon com energia $\overset{o}{\varepsilon}_q$, precisamos de uma quantidade de energia da ordem de K_BT, ou seja, $\overset{o}{\varepsilon}_q \simeq K_BT$, podemos escrever que:

$$\operatorname{sen}\theta \ll \left(\frac{K_BT}{2S|D|}\right)^{1/2} \quad . \tag{II.51}$$

Se $D \to \theta$, podemos observar que qualquer ângulo θ entre 0^o e 90^o satisfaz à desigualdade e, portanto, é fácil mostrar que a dependência do campo crítico com a temperatura é do tipo $T^{3/2}$. Esse resultado já era esperado pois para um antiferromagneto isotrópico não pode existir nenhuma direção privilegiada e o resultado disso é que o campo magnético crítico decresce com $T^{3/2}$, (ver o cálculo de Callen[13]). Vamos considerar explicitamente a desigualdade anterior para o antiferromagneto $NiCl_2.6H_2O$, que é considerado um antiferromagneto tipicamente uniaxial. Para esse sistema, podemos tomar os seguintes parâmetros:[4]

$$S = 1 \quad \text{e} \quad D = -1.61K_B \ ,$$

que levados na desigualdade dada pela equação (II.51) nos fornece que:

$$\operatorname{sen}\theta \ll \left(\frac{T}{3,22}\right)^{1/2} \quad . \tag{II.52}$$

Essa desigualdade permite obter, para uma determinada temperatura, um ângulo de referência em relação ao qual θ deverá ser muito menor para que o campo magnético crítico varie assintoticamente com uma lei do tipo $T^{3/2}$. A seguinte tabela nos dá uma idéia do ângulo de referência, $\theta_r = \text{arc sen} \left(\frac{T}{3,22}\right)^{1/2}$, em função da temperatura absoluta:

T(K)	θ_r(em graus)
0,10	10,15
0,15	12,46
0,20	14,43
0,25	16,18
θ,30	17,17

FIGURA 1 - Ângulo de referência em função da temperatura absoluta.

Para o $NiCl_2.6H_2O$ [4], a dependência observada do campo crítico paramagnético com a temperatura é da forma $T^{3/2}$. Na região de temperaturas considerada para as medidas no $NiCl_2.6H_2O$ ($T > 0,30$ K), a dependência esperada para o campo crítico em função da temperatura é $T^{3/2}$, pois o espectro é quadrático mesmo que o alinhamento do eixo fácil com o campo não seja perfeito. É necessário apenas que $\theta << 20^o$ para a obtenção do comportamento $T^{3/2}$. Entretanto devemos ressaltar que no limite de temperaturas extremamente baixas ($T < 0,10$ K), a obtenção do comportamento $T^{3/2}$ só é possível se o alinhamento do eixo fácil com o campo for rigoroso. Em caso contrário, a dependência do campo crítico com a temperatura será da forma T^2.

É bom lembrar que se $\theta \neq 0$, a dependência do campo crítico paramagnético em função da temperatura é da forma T^2 para antiferromagnetos uniaxiais. Entretanto, se θ é muito pequeno, essa dependência quadrática com a temperatura só poderá ser observada em temperaturas extremamente baixas, muitas vezes fora do alcance experimental. Se o valor da anisotropia uniaxial é grande, podemos observar facilmente uma dependência T^2 nas temperaturas usuais dos laboratórios de baixas temperaturas. A desigualdade (II.51) é de fundamental importância na determinação do comportamento do campo crítico com a temperatura, pois ela relaciona ao mesmo tempo a anisotropia cristalina, a temperatura absoluta e o ângulo θ de alinhamento do eixo fácil cristalino com o campo externo.

CAPÍTULO III

DISCUSSÃO DOS RESULTADOS OBTIDOS

Neste capítulo vamos discutir os resultados obtidos nos capítulos anteriores e em particular vamos considerar as fronteiras de fase spin flop - paramagnética de alguns antiferromagetos. A partir da análise das expressões para os campos críticos obtidos nas direções paralela e perpendicular ao eixo fácil, podemos concluir que:

a) - Se apenas anisotropias uniaxiais estão presentes, o campo crítico na direção perpendicular ao eixo fácil é sempre maior que aquele paralelo ao eixo fácil para qualquer temperatura considerada. Portanto, para antiferromagnetos estritamente uniaxiais as fronteiras de fase paramagnética, paralela e perpendicular ao eixo fácil, nunca se cruzam na região de baixas temperaturas.

b) - Levando-se em conta anisotropias do tipo ortorrômbicas, ($J^x \neq J^y$ e/ou $E \neq 0$), embora o campo crítico perpendicular a $T = 0$ seja maior que o correspondente campo crítico paralelo ao eixo fácil, é possível haver cruzamento entre as fronteiras de fase na região de baixas temperaturas através de uma escolha adequada dos parâmetros de anisotropia. Muito embora não tenhamos à nossa disposição os parâmetros de intercâmbio e anisotropia do $CoBr_2.6H_2O$ [14], acreditamos que o cruzamento que parece ocorrer para as suas fronteiras de fase perpendiculares é devido à presença de anisotropias ortorrômbicas em sua Hamiltoniana modelo.

Aplicamos também os resultados obtidos para os cam pos críticos do antiferromagneto anisotrópico $NiCl_2.4H_2O$. Muito embora a sua estrutura cristalina seja complicada, tomamos como modelo uma célula unitária cúbica com dois íons magnéticos.[15] Levando-se em conta os resultados experimentais obtidos para as três fronteiras de fase perpendiculares desse sistema[16], adotamos a seguinte Hamiltoniana modelo para o $NiCl_2.4H_2O$:

$$\mathcal{H} = \sum_{(\alpha,\beta)} \left[J \left(S_\alpha^x S_\beta^x + S_\alpha^y S_\beta^y \right) + J^z S_\alpha^z S_\beta^z \right] +$$

$$D \sum_\alpha (S_\alpha^z)^2 + E \sum_\alpha \left[(S_\alpha^x)^2 - (S_\alpha^y)^2 \right] - g\mu_B \vec{H} . \sum_\alpha \vec{S}_\alpha \quad . \qquad \text{(III.1)}$$

Os campos críticos para a transição spin flop - paramagnética nas direções z (paralela ao eixo fácil), x e y (perpendiculares ao eixo fácil) são imediatamente obtidas do Capítulo I, ou seja,

$$g\mu_B H_c^z(T) = zS(J+J^z) + 2S(D+E) - \frac{3\zeta(2)}{8\pi^2} . \frac{3(J+J^z) + (D+E)}{E^{1/2} . J^{3/2}} . \left(\frac{K_B T}{S} \right)^2 , \qquad \text{(III.2)}$$

$$g\mu_B H_c^x(T) = zS(J+J^z) - 2S(D-E) - \frac{3\zeta(2)}{4\pi^2\sqrt{2}} . \frac{3(J+J^z) - (D-E)}{[3(J^z-J) - (D+E)]^{1/2}} . \frac{\left(\frac{K_B T}{S}\right)^2}{(J^z)^{3/2}} , \qquad \text{(III.3)}$$

e

$$g\mu_B H_c^y(T) = zS(J+J^z) - 2S(D+E) - \frac{3\zeta(2)}{4\pi^2\sqrt{2}} . \frac{3(J+J^z) - (D+E)}{[3(J^z-J) - (D-E)]^{1/2}} . \frac{\left(\frac{K_B T}{S}\right)^2}{(J^z)^{3/2}} . \qquad \text{(III.4)}$$

Os valores experimentais para os campos críticos nas direções x,y,z e para o campo da transição spin flop - anti - ferromagnética extrapolado para T = 0, são dados respectivamente por:

$$
\begin{aligned}
H_c^x(T) &= 86.399 - 5.115\,T^2 \,, \\
H_c^y(T) &= 77.537 - 3.079\,T^2 \,, \\
H_c^z(T) &= 68.607 - 4.902\,T^2 \,, \\
H_{c(0)}^{SF\text{-}AF} &= 23.0
\end{aligned}
\qquad \text{(III.5)}
$$

onde H é dado em KOe e T em K.

O campo da transição spin-flop - antiferromagnética pode ser determinado através da igualdade das energias livres nas duas fases, antiferromagnética e spin-flop. Obtemos o seguinte resultado a T = 0:

$$
g\mu_B H_{c(0)}^{SF\text{-}AF} = S\left[z(J^z - J) - 2(D+E)\right]^{1/2} \cdot \left[z(J + J^z) + 2(D+E)\right]^{1/2} \,. \qquad \text{(III.6)}
$$

Utilizando-se o conjunto de equações (III.2) a (III.6), extrapoladas para T = 0, e levando-se em conta o valor de g dado na literatura[17], g = 2.28, obtemos o seguinte resultado para os parâmetros de intercâmbio e anisotropia da Hamiltoniana escolhida para o $NiCl_2.4H_2O$:

$$
\begin{aligned}
J^z &= 0.9709 \quad K_B \,, \\
J &= 0.8906 \quad K_B \,, \\
D &= -0.6909 \quad K_B \,, \\
E &= 0.3391 \quad K_B \,.
\end{aligned}
\qquad \text{(III.7)}
$$

Com esses valores, podemos calcular os coeficientes da dependência do campo com o quadrado da temperatura nas três direções perpendiculares. Obtemos para esses coeficientes:

$$\alpha_x = 5.185 \quad KOe/K^2 \;,$$

$$\alpha_y = 3.179 \quad KOe/K^2 \;, \qquad \text{(III.8)}$$

$$\alpha_z = 4.365 \quad KOe/K^2 \;.$$

Comparando-se esses valores com os resultados experimentais, (ver equações (III-5)), notamos que o modelo utilizado para descrever as transições de fase em baixas temperaturas do $NiCl_2.4H_2O$ é de fato excelente.

Finalmente vamos considerar as transições de fase paramagnética para o $CoCl_2.6H_2O$ nas duas direções perpendiculares medidas por Rives e Bathia.[3]

Embora a estrutura cristalográfica do $CoCl_2.6H_2O$ seja monoclínica, vamos adotar uma aproximação ortorrômbica ($\beta = 90^o$), pois isso facilita nossos cálculos. Nessa aproximação, os fatores de estrutura para os primeiros vizinhos de um dado íon (interação intraplanar) e segundos vizinhos (interação interplanar) são dados respectivamente por:[2]

$$\gamma_\lambda = \cos\left(\frac{a}{2}\lambda_x\right).\cos\left(\frac{b}{2}\lambda_y\right)$$

e (III.9)

$$\gamma'_\lambda = \cos\left(c\,\lambda_z\right) \;.$$

Consideramos como Hamiltoniana modelo para este antiferromagneto, a Hamiltoniana dada pela equação (II.3) do Capítulo II, com $\theta = \pi/2$. Ignoramos os termos que contêm D e E pois, conforme Kimura[18], toda a anisotropia de campo cristalino está contida nos parâmetros de intercâmbio J_1 (primeiros vizinhos) e J_2 (segundo vizinhos) considerados anisotrópicos. Não apresentamos aqui os resultados obtidos para $\theta = 0$ (campo paralelo ao eixo fácil) uma vez que podem ser encontrados na literatura.[2] O espectro de energia que obtemos para os magnons neste caso é dado pelas equações (II.22), (II.23) e (II.24) do capítulo II, calculadas para $\theta = \pi/2$, ou seja, teremos:

$$\mathcal{E}_{\vec{\lambda}}^2 = \omega_{\vec{\lambda}}^2 - \Gamma_{\vec{\lambda}}^2 \qquad , \tag{III.10}$$

onde

$$\begin{aligned}\omega_{\vec{\lambda}} = {} & 2z_1 S J_1^b \gamma_{\vec{\lambda}} - z_1 S J_1^x + 2 z_2 S J_2^b \gamma'_{\vec{\lambda}} - z_2 S J_2^x + \mu H - \frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1} \Big\{ \Big[\\ & 4z_1 S J_1^a (\gamma_{\vec{\lambda}} + 2\gamma_1) + 4 z_2 S J_2^a (\gamma'_{\vec{\lambda}} + 2\gamma'_1) \Big] \langle a_1 a_{-1} \rangle \; + \\ & \Big[8 z_1 S J_1^b (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) - 4 z_1 S J_1^x (1 + \gamma_{1-\vec{\lambda}}) + 8 z_2 S J_2^b (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) - \\ & 4 z_2 S J_2^x (1 + \gamma'_{1-\vec{\lambda}}) \Big] \langle a_1^+ a_1 \rangle \Big\} \qquad ,\end{aligned} \tag{III.11}$$

$$\begin{aligned}\Gamma_{\vec{\lambda}} = {} & 2 z_1 S J_1^a \gamma_{\vec{\lambda}} + 2 z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec{\lambda}} - \frac{1}{4SN} \sum_{\vec{k}_1} \Big\{ \Big[4 z_1 S J_1^a (2\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) \; + \\ & 4 z_2 S J_2^a (2\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) \Big] \langle a_1^+ a_1 \rangle + \Big[4 z_1 S J_1^b (\gamma_{\vec{\lambda}} + \gamma_1) - 4 z_1 S J_1^x \gamma_{1+\vec{\lambda}} \; + \\ & 4 z_2 S J_2^b (\gamma'_{\vec{\lambda}} + \gamma'_1) - 4 z_2 S J_2^x \gamma'_{1+\vec{\lambda}} \Big] \langle a_1 a_{-1} \rangle \Big\} \qquad ,\end{aligned} \tag{III.12}$$

com

$$J_{1,2}^{a,b} = \frac{1}{4}\left(J_{1/2}^{z} \mp J_{1/2}^{y}\right) \quad . \tag{III.13}$$

Para T = 0 K, o espectro de energia é mínimo quando $\gamma_{\vec{\lambda}_v} = -1$ e $\gamma'_{\vec{\lambda}_v} = -1$, onde o vetor $\vec{\lambda}_v$ é vértice da primeira ZB do $CoCl_2.6H_2O$, na aproximação ortorrômbica ($\beta = 90^o$) ora considerada. Determinamos o campo crítico da transição paramagnética-spin flop, impondo que $\varepsilon_{\vec{\lambda}_v} = 0$. Como $\gamma_{\vec{\lambda}_v} = -1$ e $\gamma'_{\vec{\lambda}_v} = -1$, temos para T = 0 K que:

$$\mu H_{co}^{\pm} = z_1 S\left(J_1^x + J_1^{y,z}\right) + z_2 S\left(J_2^x + J_2^{y,z}\right) \quad . \tag{III.14}$$

Para o $CoCl_2.6H_2O$, $J_1^z > J_1^y$ e $J_2^z > J_2^y$, logo, apenas o sinal inferior deve ser considerado. Temos portanto:

$$\mu H_{co} = z_1 S\left(J_1^x + J_1^z\right) + z_2 S\left(J_2^x + J_2^z\right) \quad . \tag{III.15}$$

Levando-se em conta que

$$\langle a_{\vec{k}}^{+} a_{\vec{k}} \rangle = \frac{1}{2}\left(\frac{\mathring{\omega}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}} - 1\right) + \frac{\mathring{\omega}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}} n_{\vec{k}} \tag{III.16}$$

e

$$\langle a_{\vec{k}} a_{-\vec{k}} \rangle = -\frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{k}}}{2\mathring{\varepsilon}_{\vec{k}}} - \frac{\mathring{\Gamma}_{\vec{k}}}{\mathring{\varepsilon}_{k}} n_{\vec{k}} \quad , \tag{III.17}$$

onde

$$\mathring{\omega}_{\vec{k}} = 2z_1 S J_1^b (1+\gamma_{\vec{k}}) + 2z_2 S J_2^b (1+\gamma'_{\vec{k}}) - 2z_1 S J_1^a - 2z_2 S J_2^a \quad , \tag{III.18}$$

$$\overset{o}{\Gamma}_{\vec{k}} = 2 z_1 S J_1^a \gamma_{\vec{k}} + 2 z_2 S J_2^a \gamma'_{\vec{k}} \quad , \tag{III.19}$$

com

$$\overset{o}{\varepsilon}_{\vec{k}} = \left(\overset{o}{\omega}_{\vec{k}}^{\,2} - \overset{o}{\Gamma}_{\vec{k}}^{\,2} \right)^{1/2} \quad , \tag{III.20}$$

e

$$n_{\vec{k}} = \left(e^{\beta \overset{o}{\varepsilon}_{\vec{k}}} - 1 \right)^{-1} \quad , \tag{III.21}$$

obtemos a seguinte expressão para o campo crítico dependente da temperatura:

$$\mu H_c(T) = \mu H_{co} - \mu \Delta H_{co} - \mu \Delta H_c(T) \; . \tag{III.22}$$

Desprezando a pequena correção de ponto zero e lembrando que as maiores contribuições ao último termo do lado direito de (III.22) vem dos pontos nas vizinhanças dos vértices da ZB , podemos facilmente determinar a dependência dominante na temperatura. Temos portanto que:

$$\mu \Delta H_c(T) = \frac{3\sqrt{2}\,\zeta(2)\, K_\beta^2 T^2}{\pi^2} \cdot \frac{\left[z_1 (J_1^z + J_1^x) + z_2 (J_2^z + J_2^x) \right]}{(z_1 S J_1^z) \cdot (z_2 S J_2^z)^{1/2} \cdot \left[z_1 S (J_1^z - J_1^y) + z_2 S (J_2^z - J_2^y) \right]^{1/2}} \; . \tag{III.23}$$

Lembrando que no $CoCl_2.6H_2O$ existem dois íons por célula unitária e adotando o valor encontrado na literatura para o fator de Landé[19], g=2.9, e os valores determinados por Kimura[18] para os parâmetros de intercâmbio, ou seja,

$$J_{\perp}^{x,y,z} = 0.61 \times (1.19\,;\,3.59\,;\,3.81)\ k_B$$

e

$$J_{2}^{x,y,z} = 0.46 \times (1.19\,;\,3.59\,;\,3.81)\ k_B\ ,$$

obtemos a seguinte expressão para o campo crítico perpendicular da transição paramagnética - spin flop do $CoCl_2.6H_2O$:

$$H_c^x(T) = 43.12 - 16.29\ T^2\ , \qquad \text{(III.24)}$$

onde H_c é dado em KOe e T em K.

Não é dificil derivar expressões semelhantes às anteriores no caso do campo magnético externo aplicado paralelo ao eixo fácil de magnetização. Entretanto, tais cálculos já foram realizados por Figueiredo e Salinas[2], e o resultado obtido para o campo crítico é dado pela seguinte expressão:

$$H_c^z(T) = 41.15 - 2.55\ T^2\ . \qquad \text{(III.25)}$$

Com as duas últimas equações podemos prever um cruzamento entre as duas fronteiras de fase na temperatura de 0.38 K. Os resultados experimentais de Rives e Bathia[3] entretanto não parecem estar de acordo com nossas previsões. Acreditamos que isso se deva à simplicidade da Hamiltoniana modelo proposta por Kimura[18] onde são desprezadas possíveis contribuições da anisotropia uniaxial de íon único.

CONCLUSÕES

Neste trabalho determinamos o campo magnético crítico entre as fases spin-flop e paramagnética de antiferromagnetos anisotrópicos para qualquer valor do ângulo θ entre o campo magnético e o eixo fácil de magnetização na região de baixas temparaturas. Utilizamos o formalismo das funções de Green aplicado aos operadores de criação e destruição de ondas de spin na fase paramagnética em conexão com as transformações de Holstein e Primakoff. Desacoplamos as equações de movimento para as funções de Green pela aplicação sistemática da aproximação RPA ("Random Phase Approximation").

Nossos resultados para o campo crítico se reduzem àqueles da literatura quando o campo magnético é aplicado paralelamente ao eixo fácil de magnetização. Mostramos que para antiferromagnetos que apresentam somente anisotropias uniaxiais, não é possível haver cruzamento entre as fronteiras de fase para campos aplicados nas direções paralela e perpendicular ao eixo fácil. Verificamos que em geral, para qualquer valor do ângulo θ, a dependência do campo crítico com a temperatura é da forma T^2. Se o ângulo θ entre o campo magnético e o eixo fácil satisfaz à relação sen $\theta << (K_B T/SD)^{1/2}$; onde T é a temperatura absoluta e D a magnitude da anisotropia uniaxial de íon único, o campo magnético crítico varia assintòticamente com uma lei do tipo $T^{3/2}$.

Para os cristais antiferromagnéticos, $NiCl_2 . 4H_2O$ e $CoCl_2 . 6H_2O$, determinamos o campo magnético crítico entre as fases spin-flop e paramagnética e comparamos com os resultados experimentais encontrados na literatura. Verificamos o seguinte:

a) $NiCl_2.4H_2O$ - Muito embora sua estrutura cristalina seja complicada, tomamos como modelo uma Hamiltoniana que contém anisotropias uniaxiais e ortorrômbicas e notamos que os resultados obtidos para os campos críticos nas três direções cristalinas mutuamente ortogonais estão de acordo com as medidas experimentais.

b) $CoCl_2.6H_2O$ - Baseado num modelo que contém unicamente anisotropia nos parâmetros de intercâmbio, calculamos os campos críticos nas duas direções perpendiculares. Os resultados obtidos indicam que há um cruzamento entre essas fronteiras na região de baixas temperaturas, que entretanto não parece ser verificado experimentalmente.

Uma sugestão para trabalhos futuros acerca da análise de fronteiras de fase de antiferromagnetos, seria o de se considerar um modelo mais realístico para as anisotropias no $CoCl_2.6H_2O$. Acreditamos que a inclusão de anisotropias uniaxiais, além das anisotropias transversais nos parâmetros de intercâmbio, permitiriam compreender melhor as transições de fase spin flop - paramagnética neste antiferromagneto. Por outro lado, acreditamos que o cruzamento entre as fronteiras de fase do $CoBr_2.6H_2O$ se deve à presença de anisotropias ortorrômbicas em sua Hamiltoniana, muito embora não tenhamos realizado uma análise detalhada das fronteiras paramagnéticas desse sistema devido às poucas informações encontradas na literatura acerca desse antiferromagneto.

BIBLIOGRAFIA

01. M. Cieplak, Phys. Rev. B 15, 5310 (1977).

02. W. Figueiredo e S.R. Salinas, Physica B 124, 259 (1984).

03. J.E. Rives e S.N. Bathia, Phys. Rev. B 12, 1920 (1975).

04. N.F. Oliveira Jr., A. Paduan Filho, S.R. Salinas e C.C. Becerra, Phys. Rev. B 18, 6165 (1978).

05. W. Figueiredo, S.R. Salinas, C.C. Becerra, N.F. Oliveira Jr. e A. Paduan Filho, J. Phys. C 15, L 115, (1982).

06. R.M. White, "Quantum Theory of Magnetism", McGraw-Hill, N. York (1970).

07. S.V. Tyablikov, "Methods in the Quantum Theory of Magnetism", Plenum Press, N. York (1967).

08. T. Holstein e H. Primakoff, Phys. Rev. 58, 1098 (1940).

09. D.N. Zubarev, Soviet Phys. Uspekhi 3, 320 (1960).

10. C.A. Queiroz, "Magnetização de Superfície e Magnons Localizados em Ferromagnetos semi-infinitos", Dissertação de Mestrado, Pós-Graduação em Físico-Química - UFSC (1986).

11. J. Feder e E. Pytte, Phys. Rev. 168, 640 (1968).

12. W. Figueiredo, J. Phys. C 17, 2777 (1984).

13. H.B. Callen, Phys. Rev. 130, 890 (1963).

14. J.W. Metselaar e D. De Klerk, Physica 65, 208 (1973).

15. A.R. Miedema, R.F. Wielinga e W.J. Huiskamp, Physica 31, 835 (1965).

16. C.C. Becerra, N.F. Oliveira Jr., A. Paduan Filho, M.V.P. de Souza e W. Figueiredo - A ser publicado.

17. J.N. Mc Elearney, D.B. Losse, S. Merchant e R.L. Carlin, Phys. Rev. B 7, 3314 (1973).

18. I. Kimura, J. Phys. Soc. Jpn 30, 1603 (1971).

19. T. Haseda, J. Phys. Soc. Jpn 15, 483 (1960).