

Tamaño crítico de la transición magnética no-magnética en cúmulos pequeños y películas delgadas de metales de transición no-magnéticos de la serie 3d y 4d

Salazar-Ortíz R.*

*Facultad de Contaduría y Administración, Universidad Autónoma de San Luis Potosí
Álvaro Obregón 64, Centro, C.P. 78000, San Luis Potosí, S.L.P., México*

Aguilera-Granja F.

*Instituto de Física, "Manuel Sandoval Vallarta", Universidad Autónoma de San Luis Potosí
Álvaro Obregón 64, Centro, C.P. 78000, San Luis Potosí, S.L.P., México.*

**estancia sabática en el Instituto de Física "Manuel Sandoval Vallarta"*

Se estudia la transición magnética no-magnética en cúmulos pequeños y películas delgadas de metales de transición, partiendo del modelo de amarre fuerte de Friedel de la banda d, junto con el criterio de Stoner. Se propone un modelo geométrico simple para la densidad de estados, el cuál introduce el efecto del número de electrones que ocupan la banda d y se utiliza la aproximación del segundo momento para introducir la dependencia del ancho de banda con el número de coordinación del cúmulo. Se consideran aplicaciones a estructuras bcc e icosaédrica y en películas delgadas con estructuras bcc (110) y fcc (111). Se obtienen ecuaciones analíticas para el tamaño crítico de los cúmulos y el espesor crítico para la transición magnética no magnética en las películas delgadas con las estructuras antes mencionadas. Se comentan los resultados respecto de cálculos teóricos y experimentales disponibles en la literatura.

Keywords: Cúmulos de átomos; Propiedades magnéticas de cúmulos; Geometría de cúmulos; Densidad de estados; Interacción de intercambio; Transiciones magnéticas no-magnéticas

1. Introducción

Dada la importancia que tienen las propiedades magnéticas y electrónicas de los cúmulos pequeños de metales de transición 3d y 4d para el desarrollo tecnológico, estas han sido extensamente estudiadas tanto de manera teórica[1] como experimental[2] en sus mas variados aspectos, tales como momento magnético por átomo en el cúmulo[3], transición metal no-metal [4], magnetización media del cúmulo, potencial de ionización[5], afinidad electrónica, transición magnética no-magnética[6], y su dependencia con el tamaño y la geometría[7], entre otras.

En el estudio teórico de las propiedades electrónicas y geométricas de cúmulos pequeños es común utilizar las técnicas *ab-initio* que se basan principalmente en la teoría del funcional de la densidad (DFT), en combinación con el método discreto variacional (DMV) y el método de combinación lineal de orbitales atómicos (LCAO) entre otros, para la solución de las ecuaciones, los cuales tienen la dificultad de que solo permiten estudiar cúmulos de tamaño relativamente pequeño[8] y requieren de una gran cantidad de tiempo de cómputo. De manera alternativa (tanto en tiempo de cómputo como en cuanto al tamaño de los cúmulos), también se han utilizado técnicas semi-empíricas[9] para el estudio de cúmulos, estas tienen la ventaja de que permiten estudiar tamaños de cúmulos comparables a los experimentales, sin embargo, la dificultad en este tipo de técnicas consiste en como encontrar una buena parametrización y como encontrar criterios únicos para que esta parametrización sea

ampliamente aceptada. Aunque con este tipo de técnicas no se encuentren resultados cuantitativamente comparables a los experimentos[2,10] las tendencias son en general bien descritas.

Por otra parte el estudio experimental de las propiedades magnéticas de cúmulos se realiza típicamente en un dispositivo Stern-Gerlach acoplado con un difractorómetro de masas. El primero de ellos se usa para medir las propiedades magnéticas de los cúmulos generados y el segundo para medir su tamaño. Uno de los diseños experimentales[11] que se utilizan para estudiar la estructura de cúmulos es mediante el método de análisis químico, en el cuál los cúmulos producidos son sometidos mediante ionización con un láser de baja potencia a procesos de saturación y adsorción con gases como hidrógeno, nitrógeno o amoníaco y analizados en un espectrómetro de masas. El análisis de su reactividad química[11-13] permite tener buenos indicios de la posible estructura del cúmulo. Aunque de éstos experimentos se puede determinar las propiedades magnéticas y el tamaño de los cúmulos, la estructura geométrica que presentan los cúmulos sigue siendo una de las grandes incógnitas.

En el caso de cúmulos de elementos ferromagnéticos como Fe, Ni y Co[1] es bien conocido que el momento magnético y el magnetismo de un sólido ferromagnético puede aumentarse por reducción de su dimensionalidad y hacerse mas estrechas las bandas de energía al incrementar la densidad local de estados en el nivel de Fermi. Este comportamiento se observa también en elementos como V, Cr[6,15] y Rh,[2] y se espera que este comportamiento pueda presentarse en otros metales de transición no

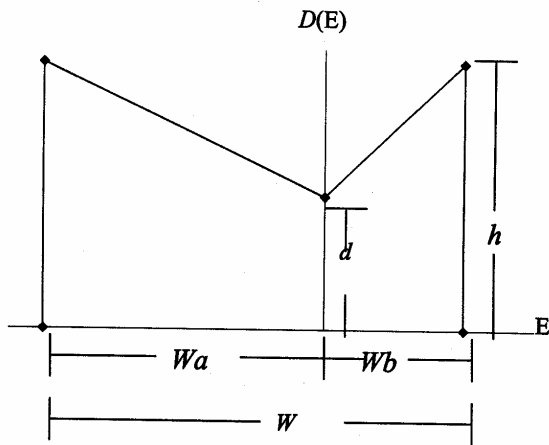


Figura 1. Modelo geométrico propuesto para la densidad de estados.

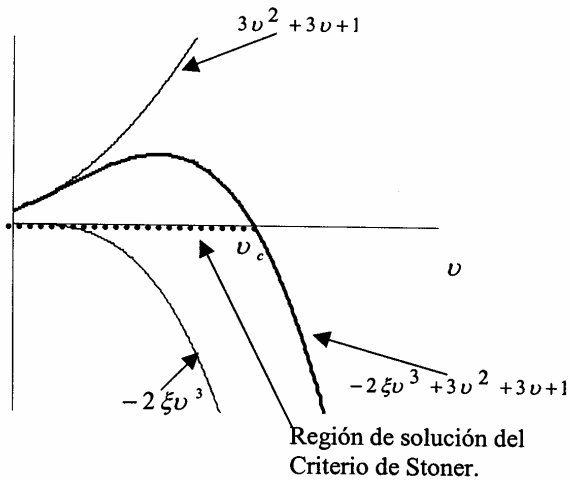


Figura 2. Comportamiento de la solución al valor crítico ν para estructura bcc. La región punteada indica que la solución es magnética hasta el valor ν_c .

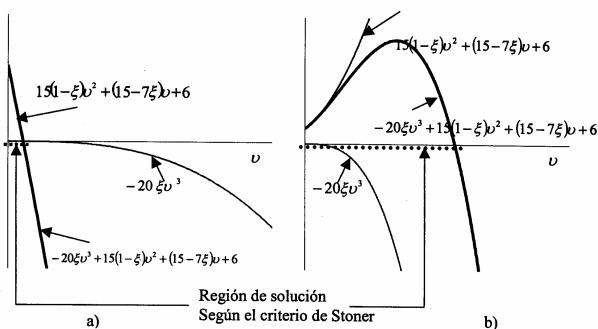


Figura 3. Comportamiento de la solución al valor crítico ν para estructura I csaédrica en los valores extremos, donde la línea punteada representa los valores de ν con comportamiento magnético. Caso a) $x \rightarrow 0$ ($\xi \rightarrow \infty$), N_c es pequeño, cuando la banda está casi vacía o casi llena. Caso b) $x \rightarrow 1$ ($\xi \rightarrow 0$) N_c es grande, en este caso dicho valor dependerá en general de la forma de la densidad de estados.

ferromagnéticos. En particular Rh[16] presenta magnetización espontánea cuando forma cúmulos pequeños –de 12 a 32 átomos– pese a no ser magnético en el volumen, lo que indica que para algún tamaño de cúmulo se presenta la transición de no-magnético a magnético. En el caso de Rodio desde un punto de vista teórico, Galicia[17] usando dentro de la teoría del funcional de la densidad orbitales moleculares (SCF-X α -SW), predice magnetismo para Rh₁₃ tomando como estructura del cúmulo la estructura fcc del volumen, y sus cálculos arrojan un momento magnético de 1 μ_B por átomo. Esto abre la posibilidad de que otros elementos[23] de la capa 3d y 4d puedan presentar magnetización espontánea para algún tamaño pequeño de cúmulo. También en el caso de películas delgadas[18] suspendidas o en sustrato, varios autores han estudiado la posibilidad de magnetismo en películas de Paladio y Vanadio. H. Dreyssé *et al.*,[15] basándose en el criterio de Stoner y analizando el efecto de la integral de intercambio[19] para que se lleve a cabo la transición magnética no-magnética, y la gran dependencia del número de coordinación, encuentra que películas de Paladio en el plano (001) suspendidas ó sobre un sustrato de plata, presentan magnetismo en el rango de 3 a 6 capas. Películas de Vanadio también en (001) presentan magnetismo para 3 y 11 capas. Otros estudios sobre transiciones magnéticas en películas delgadas de los elementos 3d y 4d pueden ser revisadas en este artículo[15].

En este trabajo se presenta un tratamiento teórico de la transición magnética no-magnética de los cúmulos pequeños de metales de transición no magnéticos de las capas 3d y 4d y películas delgadas, basados en la aproximación de amarre fuerte de Friedel[20] y proponiendo un modelo geométrico simple para la densidad de estados de la banda d. La densidad de estados que se usará tiene una forma geométrica simple la cuál permite además incluir el efecto del llenado de la banda por los electrones. Usamos el criterio de Stoner para el cálculo del tamaño crítico en el cuál se presenta la transición magnética no-magnética en el cúmulo. La dependencia del ancho de banda es introducida por la aproximación de segundo momento[14]; las propiedades geométricas de los cúmulos que se manejarán en el modelo son el número medio de coordinación $Z(\nu)$ y el número de átomos del cúmulo. En la sección II se presenta el modelo, en la sección III se presenta las aplicaciones del modelo, la sección IV presenta algunos resultados y en la sección V las conclusiones finales.

2. Modelo

Las propiedades electrónicas y magnéticas de los cúmulos de metales de transición están determinadas principalmente por los electrones de la banda d. Estos electrones llamados electrones itinerantes, en su banda d pueden tener formas muy complicadas para la densidad de estados de los cúmulos de metales de transición[9]. En este trabajo plantearemos un análisis de su comportamiento

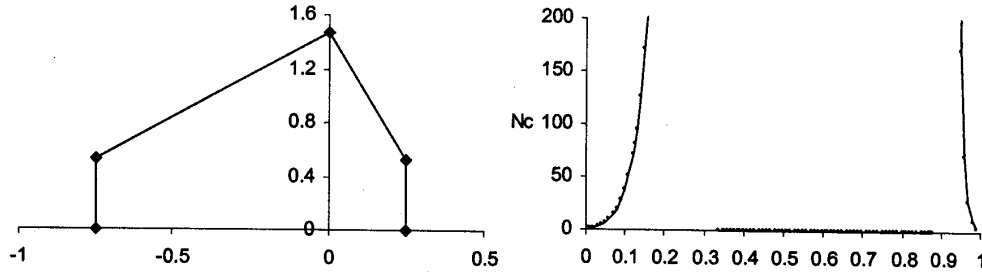


Figura 4. Densidad de estados tipo $h < d$, y gráfica del tamaño crítico en función de la ocupación electrónica de la banda d .

basados en el modelo de Friedel[20] de amarre fuerte de la banda d , utilizando un modelo simple para la densidad de estados (DDE) por átomo para un cúmulo de N átomos, representado en la figura 1, donde se considerará un área unitaria, lo que nos da las relaciones entre los parámetros $a + b = 1$, $Wa + Wb = W$ y $h + d = 2/W$. Con la densidad de estados definida como

$$D(E) = 10 \begin{cases} -\frac{(h-d)}{Wa} E + d & \text{si } -Wa \leq E \leq 0 \\ \frac{(h-d)}{Wb} E + d & \text{si } 0 \leq E \leq Wb \\ 0 & \text{en cualquier otro caso} \end{cases} \quad (2.1)$$

donde a, b, h y d son parámetros, W es el ancho de la banda d de un cúmulo de N átomos y el factor 10 se refiere al número de electrones de la banda d .

El nivel de Fermi, determinado por el número de electrones (N) dependerá de si $E \leq 0$ o bien si $E \geq 0$, ya que la $D(E)$ es una función segmentada; de acuerdo al modelo geométrico segmentado utilizado para la densidad de estados, el intervalo de ocurrencia del nivel de Fermi estará dado por

$$E \leq 0 \text{ si } N^* \leq a, \quad \text{y} \quad E \geq 0 \text{ si } N^* \geq a,$$

siendo $N^* = N/10$ (número de electrones normalizado o fracción de electrones). Al integrar la función segmentada de la densidad de estados desde $-Wa$ hasta algún valor de la energía de Fermi (ϵ_f) para encontrar el valor de N o N^* que propician este valor de ϵ_f y haciendo un poco de álgebra, la expresión para la energía en el nivel de Fermi puede escribirse como

$$\epsilon_f = \begin{cases} \left(\frac{Wa}{h-d}\right) \left[d - \sqrt{d^2 - 2\left(\frac{h-d}{Wa}\right)(N^* - a)} \right] & \text{si } N^* \leq a \\ \left(\frac{Wb}{h-d}\right) \left[-d + \sqrt{d^2 + 2\left(\frac{h-d}{Wb}\right)(N^* - a)} \right] & \text{si } N^* \geq a \end{cases} \quad (2.2)$$

Dado que la representación de la densidad de estados depende solo de dos parámetros, el alto y ancho de los

segmentos, (ya que W depende del material y N^* es el llenado de la banda) reduciremos las ecuaciones a dos parámetros que nos permitan tener ecuaciones más simples introduciendo los parámetros f y g mediante las relaciones

$$h = fd \quad \text{y} \quad b = ga, \quad (2.3)$$

con lo que la densidad de estados en el nivel de Fermi queda expresada como

$$D(\epsilon_f) = \frac{10\alpha}{W}, \quad (2.4)$$

donde α es función de (f, g, N^*) que contiene la información de la forma de la banda y está dada por

$$\alpha(f, g, N^*) = \begin{cases} \sqrt{\left(\frac{2}{1-f}\right)^2 - 4\left(\frac{f-1}{f+1}\right)[(1+g)N^* - 1]} & \text{si } N^* \leq a \\ \sqrt{\left(\frac{2}{1+f}\right)^2 + \frac{4}{g}\left(\frac{f-1}{f+1}\right)[(1+g)N^* - 1]} & \text{si } N^* \geq a, \end{cases} \quad (2.5)$$

nótese que, en el caso particular de $g=1$ y $f=1$ obtenemos $a=b$ y $d=h$ y tenemos el caso del modelo de banda cuadrada con $\alpha=1$.

Usando la aproximación de amarre fuerte en el segundo momento[14] se puede relacionar los anchos de banda de los cúmulos con los números de coordinación de la siguiente manera

$$W(N) = W \left[\frac{Z(N)}{Z} \right]^{1/2}, \quad (2.6)$$

donde $W(N)$ es el ancho de banda de un cúmulo con N átomos, W es el ancho de banda en el volumen, $Z(N)$ el número de coordinación de un cúmulo de tamaño N y Z el número de coordinación en el volumen. Usaremos el parámetro ν [21] llamado el orden del cúmulo en lugar de N , para el tamaño del cúmulo. Usando la expresión anterior la densidad de estados puede escribirse como

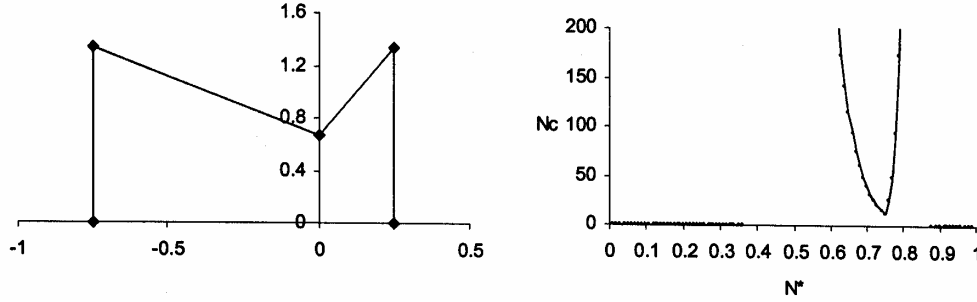


Figura 5. Densidad de estados tipo $h < d$, y gráfica del tamaño crítico en función de la ocupación electrónica de la banda d .

$$D(\epsilon_f) = \frac{10\alpha}{W} \left[\frac{Z}{Z(v)} \right]^{1/2} \quad (2.7)$$

donde $10\alpha/W$ corresponde a la densidad de estados en el nivel de Fermi del volumen. Ya que los sistemas a estudiar (metales de transición $3d$ y $4d$) son paramagnéticos en el volumen, eventualmente podrían presentar magnetismo para cúmulos pequeños si se satisface el criterio del comportamiento ferromagnético de Stoner,[9,15,18,21] el cuál establece que para que un sistema presente magnetismo, la densidad de estados en el nivel de Fermi debe satisfacer la relación

$$ID(\epsilon_f) \geq 1 \quad (2.8)$$

donde I es la integral de intercambio. Es claro que en el volumen $ID(\epsilon_f) < 1$, lo que limita los valores de I y D , pero en el caso de cúmulos, al reducirse su dimensionalidad aumenta la altura de la banda y el valor de la densidad de estados crece y pudiera suceder que elementos como Pd, Rb, Y, V, y Mn, eventualmente podrían cumplir el criterio de Stoner y presentar magnetización. Entonces, si una transición magnética no-magnética tiene lugar para algún tamaño crítico N_c o v_c (en términos del orden del cúmulo), la correspondiente $ID(\epsilon_f)$ del cúmulo debe satisfacer el criterio

$$I \frac{10\alpha}{W} \left[\frac{Z}{Z(v)} \right]^{1/2} \geq 1 \quad (2.9)$$

Esta relación se puede escribir como

$$Z(v) \leq Z x^2, \quad \text{donde} \quad x = \frac{10\alpha I}{W}, \quad (2.10)$$

y $Z(v)$ es la coordinación promedio para un cúmulo de orden v con N átomos y una determinada geometría.

3. Aplicaciones

a) Cúmulos con estructura bcc .

Para esta estructura el número medio de coordinación y el número total de átomos son respectivamente[21],

$$Z(v) = \frac{2Zv^3}{2v^3 + 3v^2 + 3v + 1} \quad \text{y} \quad N = (2v + 1)(v^2 + v + 1), \quad (3.1)$$

sustituyendo en la Ec. 2.11 del criterio de Stoner $Z(v) \leq Z x^2$ obtenemos

$$-2\xi v^3 + 3v^2 + 3v + 1 \geq 0, \quad (3.2)$$

con $\xi = -1 + 1/x^2$, donde los intervalos $0 < x < 1$, o bien $0 < \xi < \infty$ representan el rango de valores permitido para poder tener un volumen paramagnético y el término de tercer orden dominante nos garantiza tener una sola raíz. En la Fig. 2 se muestra gráficamente el comportamiento de la Eq. (3.2), y su desglose en el término cúbico y el polinomio restante.

La solución general de la ecuación (3.2) usando el típico método de Cardano es

$$v_c = \frac{1}{2\xi} \left[1 + (1 + 2\xi)^{1/3} + (1 + 2\xi)^{2/3} \right], \quad 0 < \xi < \infty \quad (3.3)$$

y el tamaño crítico N_c se obtiene sustituyendo ésta solución en la Ec. (3.1)

$$N_c = (2v_c + 1)(v_c^2 + v_c + 1) \quad (3.4)$$

Este valor nos indica que para cúmulos con esta estructura se presenta comportamiento magnético hasta el tamaño N_c y después de esto el comportamiento paramagnético queda establecido de este tamaño hasta el volumen.

b) Cúmulos con estructura Icosaédrica.

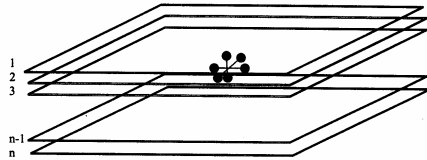
Para la estructura Icosaédrica, el número medio de coordinación y el número de átomos son, respectivamente[21],

$$Z(v) = \frac{Zv(20v^2 + 15v + 7)}{20v^3 + 30v^2 + 22v + 6}, \quad N = \frac{10}{3}v^3 + 5v^2 + \frac{11}{3}v + 1 \quad (3.5)$$

entonces, de la Ec. 2.11 del criterio de Stoner $Z(v) \leq Zx^2$ obtenemos

$$-20\xi v^3 + 15(1\xi)v^2 + (15-7\xi)v + 6 \geq 0 \quad (3.6)$$

dada la dependencia del parámetro ξ en los coeficientes de las v 's, la gráfica tendrá diferente aspecto según sea el



valor de ξ , donde $\xi = -1 + 1/x^2$ y los intervalos $0 < x < 1$, o bien $0 < \xi < \infty$ representan el rango de valores permitido para que exista solución física a la ecuación del valor crítico. Aunque podemos encontrar una solución analítica para este caso con una forma algebraica complicada el comportamiento de la solución es semejante al caso bcc. Analizando esta solución en sus casos límites caso a) $x \rightarrow 0$ ($\xi \rightarrow \infty$), que físicamente significa una ocupación electrónica normalizada de la banda muy cercana a 0 o muy cercana a 1 y en el caso de $f \gg 1$ ($h \gg d$) una ocupación cercana a $1/2$, y caso b) $x \rightarrow 1$ ($\xi \rightarrow 0$) que es cuando el parámetro $\alpha \rightarrow W/10I$; la solución en los valores extremos este valor crítico puede escribirse de manera aproximada como:

$$v_c \approx \frac{3}{4\xi} + \frac{1}{4} - \frac{4}{15}\xi + \frac{4}{15}\xi^2 + \dots \text{cuando } \xi \rightarrow 0 \quad (3.7)$$

y

$$v_c \approx \frac{6}{7\xi} + \frac{90}{343\xi^2} - \frac{25061}{40000\xi^3} + \dots \text{cuando } \xi \rightarrow \infty, \quad (3.8)$$

lo cuál se muestra gráficamente en la Fig. 3. El valor crítico para el tamaño de los cúmulos puede escribirse también de manera aproximada como

$$N_c \approx \frac{45}{32}\xi^{-3} + \frac{63}{32}\xi^{-2} + \frac{67}{32}\xi^{-1} + \frac{1141}{160} - \frac{44}{45}\xi + \dots \text{cuando } \xi \rightarrow 0 \quad (3.9)$$

y

$$N_c \approx 6 + \frac{22}{7}\xi^{-1} + \frac{582}{343}\xi^{-2} + \frac{4230}{16807}\xi^{-3} + \dots \text{cuando } \xi \rightarrow \infty \quad (3.10)$$

c) Aplicación a películas delgadas con estructuras *bcc* (110) y *fcc* (111)

En este caso, calcularemos el número de planos en los que se presenta la transición magnética no-magnética, basados en el criterio de Stoner. El número medio de coordinación

de los planos se puede obtener por el método geométrico descrito a continuación. Sea Z_0 el número de coordinación en el plano y sea Z_1 la coordinación entre planos.

Las contribuciones de los n -planos al número medio de coordinación del sistema viene de la siguiente manera: del primer plano, $(Z_0 + Z_1)$ del segundo al $(n-1)$ plano, $(Z_0 + 2Z_1)$ y del último plano $(Z_0 + Z_1)$, entonces el número medio de coordinación queda como

$$Z(n) = \frac{(Z_0 + Z_1) + (Z_0 + 2Z_1) + \dots + (Z_0 + 2Z_1) + (Z_0 + Z_1)}{n} \quad (3.11)$$

Ya que el número de planos puede ser tan grande como se quiera, podemos considerar que para los planos internos el número medio de coordinación es el del volumen $Z = Z_0 + 2Z_1$, entonces (3.11) puede escribirse como:

$$Z(n) = Z - 2 \frac{Z_1}{n} \quad (3.12)$$

Aplicando el criterio de Stoner $Z(n) \leq Zx^2$, tenemos

$$Z - 2 \frac{Z_1}{n} \leq Zx^2 \quad (3.13)$$

por tanto

$$n_c \leq \frac{2Z_1}{Z(1-x^2)}, \quad (3.14)$$

será el tamaño crítico n_c en el cuál se presente la transición magnética no-magnética en los planos o "fracción de plano" si consideramos que podemos pensar en una fracción de monocapa, aunque la coordinación media vale para $n \geq 1$. Para que la densidad de estados sea finita y que exista solución física, el valor de n debe ser $n \geq \frac{2Z_1}{Z}$, ya que de la expresión derivada de la aproximación de amarre fuerte $w = W \left[\frac{Z(n)}{Z} \right]^{1/2}$ al sustituir el número medio de coordinación tenemos:

$$w = W \left[1 - \frac{2Z_1}{Z} \left(\frac{1}{n} \right)^{1/2} \right] \quad (3.15)$$

por lo que el rango de x en (3.14) debe ser $0 < x < 1$, y así satisfacer el criterio de Stoner. Analizando el comportamiento de n_c en el caso límite de $x \rightarrow 0$, es decir para una población electrónica N^* en la banda cercana a 0 o cercana a 1; haciendo $x^2 = \Delta \neq 0$, con $\Delta \neq 0$ la Eq. (3.14) con el desarrollo en serie toma la forma

$$n_c \leq \left(\frac{2Z_1}{Z} \right) (1 + \Delta), \quad (3.16)$$

y en el caso en que $x \rightarrow 1$, $x^2 = 1 - \Delta$ y la Ec (3.14) toma la forma

$$n_c \leq \left(\frac{2Z_1}{Z\Delta} \right) \quad (3.17)$$

Si asumimos magnetismo en al menos una monocapa ($n=1$), el rango de valores permitidos para x cambia a: $\frac{Z_0}{Z} < x^2 < 1$; analizando el comportamiento de n_c en el nuevo límite inferior haciendo $x^2 = \frac{Z_0}{Z} + \Delta$, con $\Delta=0$, la Eq. 3.14 puede escribirse como

$$n_c \leq \frac{1}{1 - \frac{Z\Delta}{2Z_1}} \approx 1 + \frac{Z\Delta}{2Z_1}, \quad (3.18)$$

Lo que es congruente con nuestra suposición de magnetismo en al menos una monocapa.

4. Resultados

A continuación se presentan algunos resultados de la aplicación del modelo utilizando los parámetros[20] para el Rodio, que corresponde a la serie $4d$, considerando dos formas para la densidad de estados generadas con el modelo, aunque pueden generarse otras más. Para cúmulos pequeños se hará la suposición de que estructuras como *fcc* o de gran empaquetamiento, son las que están presentes, aunque las estructuras pudieran ser icosaédricas los resultados no son muy diferentes y las características son completamente semejantes.

Caso 1) Aplicación a Rodio con los siguientes parámetros de volumen[20] $W=6.89$, $I=0.65$, $Z=12$, $e_d=8$, y considerando la estructura icosaédrica. Para este caso consideremos que la DDE está descrita por una forma asimétrica dada por los siguientes parámetros:

banda asimétrica : $g=b/a=1/3$, $a=0.75$, $b=0.25$, $f=h/d=1/2.8$, $d=1.47$, $h=0.53$, esto es ilustrado en la figura 4.1 lado izquierdo.

Las soluciones al tamaño crítico de los cúmulos en que se presenta la transición magnética no-magnética que están presentadas en la figura 4 lado derecho, se puede interpretar con sentido físico en esta forma de la DDE con $h < d$, en términos de una transferencia de electrones de las capas externas de átomo hacia la capa d , ya que solo hay solución para valores de llenado de la banda $N^* = 0.94 \dots 0.97$, que están por encima del valor de los $N^* = 0.8$ electrones del Rodio atómico en la capa d , y los tamaños críticos N_c de los cúmulos con comportamiento magnético de acuerdo al modelo son respectivamente 416, 171, 71 y 28, como se puede ver en la parte derecha de la fig 4; para esta forma específica de la densidad de estados se requiere que el sistema transfiera carga de la capa externa hacia adentro.

Caso 2) Consideremos que ahora en vez de un pico en la DDE esté presente un valle, y usando los valores de volumen de nueva cuenta para Rodio: $W=6.89$, $I=0.65$, $Z=12$, $e_d=8$ y los siguiente parámetros para la DDE: banda asimétrica: $g=b/a=1/3$, $a=0.75$, $b=0.25$, $f=h/d=2$, $d=0.67$, $h=1.33$, representado en la figura 5 lado izquierdo.

En este caso para una DDE con $h > d$, los resultados se muestran en la figura 5 lado derecho. Para que exista solución en este caso, el sistema debe transferir electrones de la capa d hacia capas externas del sistema. Las soluciones para cúmulos de tamaño finito, se presentan en la fig. 5 derecha en el rango de valores de llenado la banda $N^* = 0.65 \dots 0.80$, y los correspondientes valores para el tamaño crítico de la transición son $N_c = 115, 94, 76, 62, 50, 40, 32, 26, 21, 16, 13, 26, 50, 94, 174$ y 325 , valores que están dentro del rango de los reportados en la literatura para el Rodio y cuya densidad de estados en cúmulos podría tener el aspecto mostrado en la fig. 5 izquierda.

Los resultados publicados para la densidad de estados de metales que no presentan magnetización espontánea y calculados con técnicas *ab initio* o semi-empíricas, se pueden representar con el modelo propuesto y permite la posibilidad de analizar diferentes configuraciones de los metales de la capa $3d$ y $4d$, al considerar la variación de la población electrónica en la banda d . Los resultados obtenidos para el tamaño crítico de la transición magnética no-magnética muestran una gran sensibilidad en el tamaño crítico del cúmulo, al considerar la variación de población electrónica que entra en la interacción y los parámetros de volumen; dentro del modelo de banda cuadrada este aspecto del problema no se ha visto reportado en la literatura y muestra los variados escenarios en los que se manifiesta la complejidad en la determinación del tamaño crítico de la transición magnética no magnética en los metales paramagnéticos $3d$ y $4d$.

5. Conclusiones

En este trabajo se hace un estudio de la transición magnética no-magnética utilizando un modelo simple de Fridel. Este modelo aunque es relativamente simple es la versión más sencilla en la cuál se puede considerar dependencia de la densidad de estados en el llenado de la banda. El modelo nos permite entender el fenómeno de la transición magnética no-magnética de manera cualitativa, sin pretender comparación directa con los resultados experimentales.

La definición del modelo nos permite mimetizar en cierta medida las densidades de estados calculadas con métodos usuales de la teoría cuántica. Esta representatividad, en combinación con la geometría de las estructuras típicamente asociadas a los cúmulos pequeños de metales de transición, nos permite calcular un tamaño crítico para la transición magnética no-magnética que no es absoluto, como en el caso del cálculo con banda cuadrada[6], sino que depende de la forma de la densidad de estados y del nivel de ocupación electrónica dentro del rango de

solución, lo que permite una gama de posibilidades que están dentro del rango de los valores reportados en la literatura.

Referencias

- [1] K. Lee, J. Callaway, S. Dhar, *Phys. Rev. B* **30** 1724 (1984).
 [2] A. J. Cox, J. G. Louderback, S. E. Apsel, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev. B* **49** 12295 (1994).
 [3] F. Liu, S.N. Khanna, P. Jena, *Phys. Rev. B* **42** 976 (1990).
 [4] J. Zhao, X. Chen, G. Wang, *Phys. Rev. B* **50** 15424 (1994).
 [5] J.J. Zhao, M. Han, G.H. Wuang, *Phys. Rev. B* **48** 15297 (1993).
 [6] Zhao, X. Chen, Q. Sun, F. Liu, G. Wang, *EuroPhys. Lett.* **32** 113 (1995).
 [7] B. V. Reddy, S. N. Khanna, B. I. Dunlap, *Phys. Rev. Lett.* **70** 3323 (1993).
 [8] F. Liu, M.R. Press, S.N. Khanna, P. Jena, *Phys. Rev. B* **39** 6914 (1989).
 [9] G.M. pastor, J. Dorantes-Dávila, K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B* **40** 7642 (1989).
 [10] J. P. Bucher, D. C. Douglas, L. A. Bloomfield, *Phys. Rev. Lett.* **66** 3052 (1991).
 [11] E.K. Parks, B.H. Weiller, P.S. Bechthold, W.F. Hoffman, G.C. Nieman, L.G. Pobo S.J. Riley, *J. Chem. Phys.* **88** 1622 (1988).
 [12] E. K. Parks, L. Zhu, J. HO, S. R. Riley, *J. Chem Phys.* **100** 7206 (1994).
 [13] E. K. Parks, G. C. Nieman, K. P. Kerns, S. R. Riley, *J. Chem. Phys.* **107** 1861 (1997)
 [14] D. Tománek, S. Mukherjee, K.H. Bennemann, *Phys. Rev. B* **28** 665 (1983).
 [15] H. Dreyssé, A. Mokrani, S. Bouarab, C. Demangeat, *Surf. Sc.* **251** 41 (1991).
 [16] C. X. Su, P. B. Armentrout, *J. Chem. Phys.* **99** 6506 (1993).
 [17] R. Galicia, *Rev. Mex. Fís.* **32** 51 (1985).
 [18] [18]D. C. A. Stoeffler, *J. Magn. Magn. Mat.* **165** 62 (1997).
 [19] J.F. Janak, *Phys. Rev. B* **16** 255 (1977) .
 [20] W. A. Harrison, *Electronic Structure and Propierties of Solids: The physics of the chemical bond*, Dover Publications Inc., New York, (1989).
 [21] J.M. Montejano Carrizales, F. Aguilera Granja, J.L. Morán López, *Nanostr. Mat.* **8** 269 (1997).
 [22] S. Bouarab, H. Nait-Laziz, C. Demangeat, A. Mokrani, H. Hreyssé, *J. Magn. Magn. Mater.*, **104** 1765 (1992) .
 [23] F. Liu, S.N. Khanna, P. Jena, *Phys. Rev. B* **43** 8179 (1991).