

Universidade do Estado do Rio Grande do Norte
Faculdade de Ciências Exatas e Naturais-FANAT
Departamento de Física
Programa de Pós-Graduação em Física

Francisco Adriano de Lima Santiago

Modelagem e Simulação Numérica de
Espalhamento de Nêutrons em Filmes de
Hólmio

Mossoró

2013

Francisco Adriano de Lima Santiago

**Modelagem e Simulação Numérica de Espalhamento
de Nêutrons em Filmes de Hólmio**

Dissertação apresentada ao programa
de Pós-graduação em Física como parte
dos requisitos para obtenção do título
de MESTRE EM FÍSICA

Orientador: Prof. Dr. Vamberto Dias de Mello

Mossoró

2013

**Catálogo da Publicação na Fonte.
Universidade do Estado do Rio Grande do Norte.**

Santiago, Francisco Adriano de Lima

Modelagem e simulação numérica de espalhamento de nêutrons em filmes de hólmio. / Francisco Adriano de Lima Santiago. – Mossoró, RN, 2013.

74f.

Orientador(a): Prof. Dr. Vamberto Dias de Mello

Dissertação (Mestrado em Física). Universidade do Estado do Rio Grande do Norte. Programa de Pós-Graduação em Física..

1. Física. 2. Espalhamento de Nêutrons. 3. Fases Magnéticas. 4. Terras Raras. I. Mello, Vamberto Dias de. II. Universidade do Estado do Rio Grande do Norte. III. Título.

UERN/BC

CDD 530

Francisco Adriano de Lima Santiago

**Modelagem e Simulação Numérica de Espalhamento
de Nêutrons em Filmes de Hólmio**

Dissertação apresentada ao programa
de Pós-graduação em Física como parte
dos requisitos para obtenção do título
de MESTRE EM FÍSICA

Banca Examinadora

Prof. Dr. Vamberto Dias de Mello
Orientador
UERN

Prof. Dr. Dory Hélio Aires de Lima Anselmo
Examinador externo
UFRN

Prof. Dr. João Maria Soares
Examinador interno
UERN

À todos que contribuíram para a realização deste trabalho.

Agradecimentos

Quero agradecer Primeiramente a Deus que é o responsável por todas as coisas boas que acontecem na nossa vida, gostaria de deixar claro a importância que teve meu orientador, o Professor Doutor Vamberto Dias de Mello, neste trabalho de dissertação, obrigado pelo suporte teórico que me foi dado e pela paciência em me orientar durante esses mais de dois anos de mestrado.

Quero agradecer minha família que me deu apoio de todas as formas desde a graduação até aqui no mestrado, me dando ajuda financeira e me apoiando nas minhas decisões. Agradeço ao meu avô Francisco Lima de Santiago, minhas tias Maria Marineide Santiago da Costa e Maria Marlene Santiago da Costa, ao meu pai Francisco Santiago da Costa e minha mãe Maria Alvaneide Ferreira de Lima e a todos os outros que não citei, mas que contribuíram para minha formação.

Gostaria de agradecer aos meus colegas e amigos da graduação e do mestrado que contribuíram para esse trabalho e para minha formação, me dando ajuda nas disciplinas tirando dúvidas, apoiando quando foi necessário e inclusive me ajudando financeiramente, para essas pessoas quero deixar meus agradecimentos.

Agradecer ao programa de pós-graduação pelo apoio estrutural de salas e computadores para a realização do trabalho de pesquisa e agradecer a CAPES pelo apoio financeiro que me foi dado durante o trabalho desenvolvido.

Resumo

Muito do nosso entendimento da estrutura em escala atômica e as propriedades dinâmicas dos sólidos e líquidos foram adquiridas com o estudo de espalhamento de nêutrons. O espalhamento de nêutrons elástico e inelástico fornece um detalhamento sem precedentes das estruturas de spins, espectros de excitação magnética e transições de fase magnética, sendo este incomparável com outras técnicas experimentais. O primeiro estudo de espalhamento de nêutrons no Hólmio foi realizado por Koehler [1], que identificou a estrutura magnética como uma hélice no plano-basal na temperatura de Néel ($\sim 132K$). Na temperatura de aproximadamente $20K$, o Hólmio forma uma única estrutura denominada de spin-slip. Neste contexto, investigaremos neste trabalho, através de simulação numérica de espalhamento de nêutrons as fases magnéticas de volume e de filmes finos de Hólmio com diferentes espessuras, no intervalo de temperatura de $20K$ a $132K$ para um campo externo aplicado no plano basal. O estudo foi realizado utilizando um algoritmo de campo local auto-consistente, que nos permite calcular a função de correlação spin-spin estática que é proporcional à intensidade de espalhamento. Foram obtidos resultados de espalhamento magnético de nêutrons na identificação das fases magnéticas Hélice, Helifan, Spin-Slip, Fan e a fase Ferromagnética. Para o Hólmio no volume a fase Hélice surge em um campo de $1T$ e em uma temperatura de $89K$ com o pico de intensidade máxima de espalhamento de nêutrons em torno do vetor de onda $Q = 0,71$, como pode ser observado na figura (5.6). Porém, para filmes finos de hólmio a fase hélice surge em um campo de $1T$ e em uma temperatura de $25K$ com o pico de intensidade máxima de espalhamentos de nêutrons em torno do vetor de onda $Q = 0,57$, como mostra a figura (5.13). Foram

obtidos outros resultados do espalhamento magnético de nêutrons na identificação de outras fases magnéticas como a helifan, spin-slip, fan e ferromagnética, que são mostrados ao longo do trabalho.

Palavras-chave: Espalhamento de Nêutrons, Fases Magnéticas, Terras Raras.

Abstract

Much of our understanding of the atomic-scale magnetic structure and the dynamical properties of solids and liquids was gained from neutron scattering studies. Both elastic and inelastic neutron scattering provided physicists with an unprecedented, detailed access to spin structures, magnetic-excitation spectra, magnetic phase transitions, which is unrivaled by other experimental techniques. The first neutron scattering study of the Holmium in bulk was carried out by Koehler [1], who identified the structure as a basal-plane helix below a Néel temperature of $132K$. At a temperature of approximately $20K$, Holmium forms a one spin-slip structure. In this context, will investigate in this work, through numerical simulation of magnetic neutron scattering the magnetic phases in bulk and in thin holmium films with different thicknesses, in the temperature interval of $20K$ to $132K$ for an external field applied in the basal-plane. The scattering peaks found are a signature useful to identify the phases of these magnetic films. The study was performed using a self-consistent local field algorithm which allows us to the calculate the static spin-spin correlation function this is proportional to the scattering intensity. Results were obtained magnetic neutron scattering for the identification of magnetic phases Helix, Helifan, spin-Slip, Fan and the ferromagnetic phase. For Holmium volume in the propeller phase arises in a field of $1T$ and a temperature of $89K$ with the peak of maximum intensity of neutron scattering around the wave vector $Q = 0,71$, As can be seen in Figure (5.6). However, for thin films of holmium propeller phase arises in a field of $1T$ and a temperature of $25K$ with the peak of maximum intensity of neutron scattering around the wave vector $Q = 0,57$, as shown in Figure (5.13). Other results were obtained from

the magnetic scattering of neutrons in the identification of other magnetic phases as helifan, spin-slip, fan and ferromagnetic, which are shown throughout the work.

Keyword: Neutron Scattering, Magnetic Phase, Rare Earth.

Sumário

Lista de Tabelas	i
Lista de Figuras	ii
1 Introdução	1
2 Propriedades Magnéticas das Terras Raras	2
2.1 Classificação das Terras Raras	2
2.2 Estrutura Cristalina das Terras Raras	4
2.3 Estrutura Eletrônica das Terras Raras	7
2.4 Energias dos sistemas Magnéticos de Terras Raras	8
2.4.1 Energia Magnetocristalina	9
2.4.2 Energia Zeeman	16
2.4.3 Energia de troca indireta	17
3 Teoria do Espalhamento de Nêutrons	23
3.1 Interação do Nêutron Com a Matéria	23
3.2 O Espalhamento de Nêutrons	26
3.3 Espalhamento Magnético de Nêutrons	28
3.3.1 Amplitude de Espalhamento Magnético	31
3.3.2 Intensidade do Espalhamento Nêutrons	33

4	Resultados Experimentais de Espalhamento de Nêutrons	39
4.1	Introdução	39
4.2	Estrutura Magnética do Hólmio em Baixas Temperaturas.	39
4.3	As Estruturas Magnéticas de Superredes de Hólmio-Ítrio em um Campo Magnético Aplicado	42
4.4	Estruturas Magnéticas das Ligas e Superredes de Hólmio-Lutécio	46
5	Espalhamento de Nêutrons em Filmes de Hólmio (Ho)	49
5.1	Introdução	49
5.2	Diagrama de Fases Magnéticas	50
5.2.1	Diagrama de Fases de Volume	51
5.2.2	Diagrama de Fases de Filmes Finos	53
5.3	Espalhamento Magnético de Nêutrons em Hólmio no Volume	56
5.4	Espalhamento Magnético de Nêutrons em Filmes Finos de Hólmio (Ho)	62
6	Considerações Finais e Perspectivas	70
6.1	Considerações Finais	70
6.2	Perspectivas	71
	Bibliografia	72

Lista de Tabelas

2.1	Tabela Classificatória dos Elementos de Terras Raras [2]	4
2.2	Propriedades Estruturais das Terras Raras [2]	6
3.1	Classificação dos Nêutrons em Relação a Energia [3].	24

Lista de Figuras

2.1	Estrutura cristalina hexagonal compacta (hcp) [2]	5
2.2	Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_2 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os circulos são os dados obtidos por Feron [4] e a linha cheia a curva teórica $4,16 \times 10^8 \hat{I}_{5/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2]. . .	13
2.3	Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_4 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os circulos são os dados obtidos por Feron e a linha cheia a curva teórica $1,77 \times 10^7 \hat{I}_{9/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2]. . .	14
2.4	Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_6 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os circulos são os dados obtidos por Feron e a linha cheia a curva teórica $27 \times 10^6 \hat{I}_{13/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2]. . . .	15
2.5	Sistema de eixos destacando as coordenadas esféricas dos vetores magnetização e campo magnético externo [2].	16
2.6	Caráter oscilatório da interação RKKY	19
2.7	Representação da fase helimagnética de filmes finos.	20
3.1	Feixe de Nêutrons incidindo em Uma Placa de Espessura t	26
3.2	Esquema de Espalhamento Elástico [5].	27
3.3	Esquema de Espalhamento Inelástico [5].	27
3.4	Seção Transversal de Choque do Espalhamento de Neútrons.	33

3.5	intensidade máxima do espalhamento com o passo da hélice de 45 graus de uma fase hélice no volume	38
4.1	Espalhamento de Nêutrons em um Cristal de <i>Ho</i> na temperatura de 10K [6]	40
4.2	Projeções dos momentos no plano basal na fase $(\frac{1}{6})c^*$ [6]	41
4.3	(a) As projeções dos momentos ao longo da direção do campo aplicado e (b) na direção perpendicular ao plano basal para os momentos de uma fase ferromagnética, fan, helifan e uma hélice assumindo que, em cada caso, os quatro planos sucessivos estão todos alinhados paralelo ou antiparalelos a direção do campo aplicado [7].	43
4.4	As estruturas magnéticas são uma fase ferromagnética, uma fase fan com $\theta_1 = \pi/8$ e $\theta_2 = 3\pi/8$, uma fase helifan com o ângulo entre os planos sucessivos $\theta = \pi/4$ e uma hélice com um ângulo de $\pi/4$ entre planos sucessivos [7].	44
4.5	O espalhamento de nêutrons a partir de (a) uma fase ferromagnética $H = 3T$ e $T = 4K$, (b) uma fase de fan $H = 3T$ e $T = 60K$, (c) uma fase de helifan $H = 2T$ e $T = 50K$ e (d) um hélice $H = 1T$ e $T = 30K$. As linhas sólidas são aproximadas com uma série de gaussiana [7]. . .	45
4.6	O espalhamento de nêutrons observado com Q ao longo de $[00L]$ a partir da liga $Ho_{0.9}Lu_{0.1}$ como uma função da temperatura [8].	47
4.7	As estruturas magnéticas encontradas em baixa temperatura de ligas de Ho_xLu_{1-x} : (a) a estrutura $q = 1/4c^*$ (211), e (b) a estrutura $q = 2/9c^*$ (212121). Os ângulos de deformação θ_1 são os ângulos entre o spin e o dubleto, e θ_2 representa o ângulo entre a direção do próximo eixo fácil e o spin [8].	48
5.1	Fases magnéticas das terras raras pesadas em função das temperaturas	50

5.2	Fases magnéticas das terras raras Leves em função das temperaturas .	50
5.3	Diagrama de fases magnéticas do hólmio no volume.	52
5.4	Diagrama de Fases Magnéticas para um Filme de Hólmio com 24 Monocamadas.	54
5.5	Diagrama Esquemático dos Momentos de Spins para a temperatura constante de $107K$	55
5.6	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase hélice no volume em um campo de $1T$ e uma temperatura de $89K$. .	56
5.7	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase hélice no volume em um campo de $7T$ e uma temperatura de $120K$.	57
5.8	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase spin-slip no volume em um campo de $10T$ e uma temperatura de $99K$	58
5.9	Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases hélice e spin-slip sobrepostos em um único gráfico	59
5.10	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase fan no volume em um campo de $0, 1T$ e uma temperatura de $120K$.	60
5.11	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase ferromagnética no volume em um campo de $18T$ e uma temperatura de $120K$	61
5.12	Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases Ferromagnética, Fan e Hélice sobrepostos em um único gráfico	62
5.13	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética Hélice em um campo de $1T$ e uma temperatura de $25K$. .	63
5.14	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética Helifan em um campo de $7T$ e uma temperatura de $86K$.	64
5.15	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética fan em um campo de $13T$ e uma temperatura de $85K$. . .	65

5.16	Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases magnéticas hélice, Helifan e Fan sobrepostos em um único gráfico	66
5.17	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase ferromagnética em um campo de $17T$ e uma temperatura de $85K$. .	67
5.18	Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase spin-slip em um campo de $1T$ e uma temperatura de $99K$	68
5.19	Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases Ferromagnética, Fan e spin-slip sobrepostos em um único gráfico	69

Capítulo 1

Introdução

Desenvolvemos nesta dissertação um estudo sobre uma forma alternativa de obter cada perfil característico de identificação de uma determinada estrutura magnética. A técnica Experimental que modelamos foi a de Espalhamento de Nêutrons, que se mostra bastante eficaz neste sentido. As estruturas magnéticas que investigamos foram as da Terra Rara Hólmio no volume e na forma de filme. Os resultados obtidos estão descritos nos capítulos na seguinte sequência:

No capítulo-2, faremos uma revisão histórica das propriedades estruturais e magnéticas das Terras Raras nas fases de volume. Descrevemos também, as propriedades de filmes e multicamadas de terras raras, destacando o interesse em estudá-las.

No capítulo-3, apresentamos um breve resumo a respeito da Teoria do Espalhamento de Nêutrons.

No capítulo-4, apresentaremos alguns resultados experimentais de espalhamento de Nêutrons obtidos para filmes e superredes de Hólmio.

No capítulo-5, apresentaremos os perfis obtidos de nossa modelagem do Espalhamento de Nêutrons nas fases magnéticas de volume e filmes de Hólmio, submetidos a variações de campo externo e temperatura.

No capítulo-6, apresentamos as nossas conclusões e perspectivas.

Capítulo 2

Propriedades Magnéticas das Terras Raras

2.1 Classificação das Terras Raras

As terras raras são 17 elementos metálicos, semelhantes em sua estrutura química e com propriedades desconhecidas, até poucos anos. Começaram a ser descobertos na segunda metade do século XVIII, sua denominação decorre do aspecto terroso de seus óxidos e por serem elementos pouco presentes na natureza. As terras raras correspondem aos elementos do lantânio ao lutécio, entre os quais se incluem o Ítrio e o Escândio. Mas, segundo recomendações da IUPAC (International Union of Pure and Applied Chemistry), usam-se os termos lantanídeos para designar os elementos do Lantânio (La) ao Lutécio (Lu) e terras raras quando são incluídos aos lantanídeos o Escândio (Sc) e Ítrio (Y).

As terras raras encontram-se concentradas em vários minerais, porém sempre misturadas com outros elementos como o lantânio, ítrio, tório e outros elementos. A quantidade de uma determinada terra rara varia bastante de mineral para mineral, onde as mais pesadas ocorrem normalmente em menores concentrações. O Hólmio é uma das terras raras mais escassas, com sua presença na natureza estimada na

razão de 12 partes em 10 milhões. As fontes mais importantes de Hólmio são os minerais ricos em ítrio, tais como xenotima, gadolinita, euxenites e etc. No entanto, o Hólmio aparece na forma de impureza em vários minerais como a apatita, bastnasita e a monazítica. A monazítica é processada para retirar o cério, lantânio, tório e ítrio, sendo os produtos secundários de alguns destes processos as principais fontes de Hólmio [2].

As terras raras pertencem ao grupo III-B da tabela periódica (os lantanídeos), onde temos os elementos químicos de número atômico entre 57 e 71. Estes elementos possuem propriedades químicas bastante semelhantes que resultam da natureza de suas configurações eletrônicas, levando a um estado de oxidação estável 3^+ . As terras raras são classificadas em dois grupos: O primeiro grupo é formado pelos elementos leves ou grupo do Cério (Ce), cujo os números atômicos estão entre 57 e 63, e o segundo formado pelos elementos pesados ou grupo do ítrio (Y), que tem números atômicos entre 64 e 71. Estabelecemos essa classificação em razão das diferenças entre suas propriedades químicas. A seguir mostramos na Tabela (2.1) os 17 elementos que compõem as terras raras com sua simbologia, o grupo a que pertencem e número atômico [2].

	Elementos de Terras-Raras	Símbolo	Número Atômico
L	Lantânio	La	57
	Cério	Ce	58
E	Praseodímio	Pr	59
V	Neodímio	Nd	60
E	Promécio	Pm	61
S	Samário	Sm	62
	Európio	Eu	63
P	Gadolínio	Gd	64
	Térbio	Tb	65
E	Disprósio	Dy	66
S	Hólmio	Ho	67
A	Érbio	Er	68
D	Túlio	Tm	69
O	Itérbio	Yb	70
S	Lutécio	Lu	71
	Ítrio	Y	39
	Escândio	Sc	21

Tabela 2.1: Tabela Classificatória dos Elementos de Terras Raras [2]

2.2 Estrutura Cristalina das Terras Raras

A maioria das terras raras no volume cristalizam-se em uma estrutura do tipo hcp (hexagonal compacta), os elementos leves cristalizam-se em uma estrutura dhcp (dupla hexagonal compacta) e os elementos pesados em uma estrutura hcp (hexagonal compacta). Essa estrutura é caracterizada pelo empilhamento de átomos em planos de simetria hexagonal, ao longo da direção-c. A célula unitária desse tipo de estrutura é composta por um átomo que possui doze primeiros vizinhos, sendo seis no plano hexagonal, três no plano acima e três no plano abaixo, o número de coordenação é igual a 12 e seu fator de empacotamento é de 0,74, assim sendo conhecida como uma estrutura hexagonal compacta (hcp) [9], veja a figura (2.1).

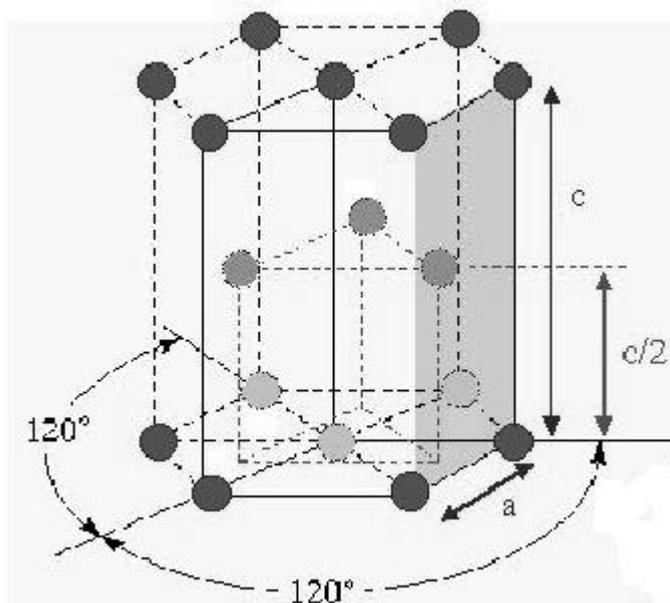


Figura 2.1: Estrutura cristalina hexagonal compacta (hcp) [2]

Existem quatro exceções em relação ao processo de cristalização dos elementos terras raras que são: o európio (Eu) que cristaliza-se em uma estrutura ccc (cúbica de corpo centrado); o itérbio (Yb) que possui uma estrutura cfc (cúbica de face centrada); o samário (Sm) que tem uma particular estrutura romboédrica e por último temos o cério (Ce) que tem muitas fases alotrópicas do tipo: β -cério (dhcp), γ -cério (cfc) que é estável em condições normais de temperatura e pressão, apresentando uma resistência a mudança de fase em baixas temperaturas ou em altas pressões para a fase, α -cério (cfc). Veja na Tabela (2.2) algumas dessas propriedades [10, 11, 12].

Terra Rara	Estrutura (300K)	Parâmetro de rede	
		a(Å)	c(Å)
La	dhcp	3.774	12.171
Ce(β)	dhcp	3.681	11.857
Ce(γ)	fcc	5.161	
Ce(α)	fcc	4.84(77K)	
Pr	dhcp	3.672	11.833
Nd	dhcp	3.658	11.797
Pm	dhcp	3.65	11.65
Sm	rhom	3.629	26.207
Eu	bcc	4.583	
Gd	hcp	3.634	5.781
Tb	hcp	3.606	5.697
Dy	hcp	3.592	5.650
Ho	hcp	3.578	5.618
Er	hcp	3.559	5.585
Tm	hcp	3.538	5.554
Yb	fcc	5.485	
Lu	hcp	3.505	5.549

Tabela 2.2: Propriedades Estruturais das Terras Raras [2]

Outro conceito geral das terras raras é o volume atômico ou raio atômico que é definido como sendo a metade da distância entre um átomo e o seu primeiro vizinho, o correspondente raio atômico diminui sempre linearmente de 1,83Å para o Lantânio a 1,73Å para o Lutécio, Porém temos duas exceções: O Európio(Eu) de raio igual a 2,03Å e o Itérbio(Yb) de raio igual a 1,94Å.

A grande uniformidade da estrutura cristalina das terras raras, como podemos ver na Tabela (2.2), e dos raios atômicos, é descrita como sendo um resultado dos elétrons da banda de condução $5d6s$ que é aproximadamente igual para todos os metais terras raras que contêm três elétrons de condução. As exceções são Európio

e Itérbio que possuem dois elétrons de condução e Cério que possui quatro elétrons. Usa-se nos elementos terras raras, a notação de *valência* que é definida como sendo igual ao número de elétrons de condução [2], que são os elétrons que estão na camada mais externa do átomo (camada de valência).

2.3 Estrutura Eletrônica das Terras Raras

A propriedade mais comum entre os elementos terras raras é que quase todos eles possuem a camada $4f$ incompleta, as exceções são: Escândio (Sc), Itérbio (Yb), Ítrio (Y), Lantânio (La) e Lutécio (Lu). Esta camada é interna e acima dela estão as camadas $6s$ e $5d$, elas participam das ligações dos elementos, assim a camada $4f$ mesmo incompleta fica blindada pelas mais externas. A ocupação da camada $4f$ varia bastante entre os elementos terras raras que é sempre crescente do cério(Ce) $4f^1$ para o lutécio(Lu) $4f^{14}$. A configuração dos elétrons externos é praticamente a mesma para todos estes elementos, que determinam o número e a natureza dos elétrons de valência [2].

Os elétrons da camada $4f$ estão presos no interior do átomo e protegidos pelos elétrons que ocupam os estados da camada $5s$ e $5p$. Assim os elétrons da camada $4f$ exercem uma influência nas ligações químicas, estes comportam-se como íons livres, ou seja, com o momento angular total originado da combinação do movimento orbital e de spin. Portanto há uma similaridade química entre as terras raras devido às suas propriedades eletrônicas. Agora podemos observar que as propriedades físicas variam bastante na série dos lantanídeos, isso acontece devido ao preenchimento da camada interna $4f$, quando percorremos a série do latânio (La) para o lutécio (Lu) [11, 12].

2.4 Energias dos sistemas Magnéticos de Terras Raras

O Hamiltoniano de Spin é uma ferramenta poderosa no estudo de materiais magnéticos, no nosso caso as Terras Raras, pois permite determinar as fases magnéticas e excitações magnéticas destes sistemas, tais como, ferromagnetos, antiferromagnetos, ferrimagnetos, helimagnetos, entre outros. O hamiltoniano descreve as interações de sistemas magnéticos com a luz, íons, moléculas, etc., de modo a obter o estado magnético do material. Entre os modelos de hamiltoniano de spin o que tem maior destaque é o hamiltoniano de Heisenberg [10].

O hamiltoniano de spin descreve a interação dos momentos de spin de um sistema formado por dois elétrons (molécula diatômica) numa subcamada não-degenerada, mas com orbitais atômicos de mais baixa energia, definindo o subespaço de mais baixa energia da molécula. Neste subespaço, temos dois autovalores de energia: O estado singleto não-degenerado e o tripleto com três degenerescências [13]. O Hamiltoniano de Heisenberg tem origem na interação coulombiana entre dois elétrons e no princípio da exclusão de Pauli que dá origem a um termo chamado integral de troca. Para a construção do Hamiltoniano de Heisenberg é necessário determinar as configurações eletrônicas que descrevem o estado fundamental e as excitações de mais baixa energia, estabelecendo assim uma correlação entre os níveis eletrônicos de energia e configuração de spin.

Para um melhor entendimento das fases magnéticas, devemos considerar as energias que melhor descrevem as propriedades magnéticas do sistema. Para os sistemas de Terras Raras as energias são: Energia Magnetocristalina, Energia de Troca

Indireta ou Interação RKKY (Rudeman, Kittel, Kasuya e Yoshida), na qual os momentos magnéticos localizados dos diferentes íons são acoplados pelos elétrons polarizados da camada $4f$ e a Energia Zeeman que é proveniente da interação entre o campo magnético externo e os momentos magnéticos do sistema.

2.4.1 Energia Magnetocristalina

A anisotropia é uma propriedade intrínseca do material, na qual a orientação da magnetização tem direções preferenciais ou eixos fáceis, o alinhamento preferencial dentro do material constitui um estado de baixa energia que é causado pela interação spin-órbita. A energia magnetocristalina depende da orientação da magnetização em relação aos eixos cristalinos. Os eixos cristalográficos na qual a magnetização tende a se alinhar são chamados de eixos fáceis e naqueles em que é mais difícil de se alinhar são chamados de eixos duros, a energia de anisotropia é portanto a diferença de energia entre o sistema saturado ao longo do eixo duro e o sistema saturado ao longo do eixo fácil [10].

Podemos observar vários tipos de anisotropia no estudo de filmes finos e multicamadas, são os seguintes: anisotropia de forma, anisotropia de superfície e anisotropia cristalina. Vamos considerar apenas a anisotropia cristalina no estudo de filmes finos de terras raras, pois a contribuição da anisotropia de superfície é desprezível para esse sistema. A rede cristalina interage com os spins eletrônicos por causa do campo cristalino que age sobre os elétrons $4f$ dando origem as anisotropias magnetocristalinas. Essas anisotropias podem resultar de interações intrínsecas que dependem de efeitos quânticos e eletromagnéticos, ou extrínsecas, que dependem da forma cristalina ou do método de crescimento do filme fino.

As formas mais conhecidas desse tipo de anisotropia são a uniaxial e a cúbica, a origem da energia cristalina é dada pela interação spin-órbita, interação dipolo-dipolo

e efeitos quânticos relativísticos. A anisotropia uniaxial surge quando o crescimento ocorre em uma rede com simetria hexagonal, onde o eixo-fácil é paralelo ao eixo-c e o eixo-duro é perpendicular ao eixo-c tendo uma magnetização quase isotrópica para um dado ângulo θ entre a direção de magnetização e o eixo de simetria. Na anisotropia cúbica a energia livre tem que ser invariante em relação à inversão do sentido da magnetização e a troca de eixos. Assumindo que o campo cristalino é produzido por um arranjo de cargas elétricas pontuais ao redor de um íon central, podemos então escrever a energia potencial cristalina da seguinte forma [10]:

$$E_{Anis} = \sum_i q_i V(r_i) = -e \sum_i V(r_i) \quad (2.1)$$

Onde: $V(r_i)$ é o potencial eletrostático que age sobre o elétron localizado no sítio r_i , que é gerado pela carga elétrica dos íons da rede cristalina. É conveniente desenvolver esta expressão em termos de harmônicos esféricos.

$$E_{Anis} = -e \sum_i \sum_l r_i^l V_l^m Y_l^m(\theta_i, \phi_i) \quad (2.2)$$

O número de termos do Hamiltoniano depende do grupo de simetria pontual do sítio ao qual o elemento pertence. No caso das terras raras, que possuem simetria hexagonal o potencial cristalino é dado pela soma de quatro potenciais para as cargas elétricas dos íons de terra rara [14], esses quatro potenciais podem ser escritos como:

$$V_2^0 = \frac{1}{2} \sum_i (3z_i^2 - r_i^2) \quad (2.3)$$

$$V_4^0 = \frac{1}{8} \sum_i (35z_i^4 - 30r_i^2 z_i^2 + 3z_i^4) \quad (2.4)$$

$$V_6^0 = \frac{1}{16} \sum_i (231z_i^6 - 315r_i^2 z_i^4 + 105r_i^4 z_i^2 - 5r_i^6) \quad (2.5)$$

$$V_6^6 = \sum_i (x_i^6 - 15x_i^4 y_i^2 + 15x_i^2 y_i^4 - y_i^6) \quad (2.6)$$

Os somatórios são tomados sobre as coordenadas de todos os elétrons. Vemos que cada potencial V_l^m pode ser de fato escrito como um produto $f(r)Y_l^m(\theta, \phi)$ e transformados portanto, como harmônicos esféricos Y_l^m [14]. Escrevendo em termos de Harmônicos Esféricos temos:

$$E_{Anis} = -e\{V_2^0\alpha_2 Y_2^0(\vec{S}) + V_4^0\alpha_4 Y_4^0(\vec{S}) + V_6^0\alpha_6 Y_6^0(\vec{S}) + V_6^6\alpha_6 [Y_6^6(\vec{S}) + Y_6^{-6}(\vec{S})]\} \quad (2.7)$$

O valor do momento angular total \vec{S} no estado fundamental é um bom número quântico para as terra raras pesadas, para que possamos tomar o valor do potencial V_l^m no interior do estado fundamental. Na equação Eq. (2.7), os $Y_l^m(\vec{S})$ são operadores agindo sobre o momento angular total \vec{S} do íon terra rara e equivalem aos harmônicos esféricos $Y_l^m(\theta, \phi)$. Eles podem ser escritos como:

$$Y_2^0(\vec{S}) = D_0[3S_z^2 - S(S+1)] \quad (2.8)$$

$$Y_4^0(\vec{S}) = E_0[35S_z^4 - 30S(S+1)S_z^2 + 25S_z^2 + 3S^2(S+1)^2 - 6S(S+1)] \quad (2.9)$$

$$\begin{aligned} Y_6^0(\vec{S}) = & F_0[231S_z^6 - 315S(S+1)S_z^4 + 735S_z^4 \\ & + 105S^2(S+1)^2S_z^2 - 525S(S+1)S_z^2 + 294S_z^2 - 5S^3(S+1)^3 \\ & + 40S^2(S+1)^2 - 60S(S+1)] \end{aligned} \quad (2.10)$$

$$Y_6^6(\vec{S}) + Y_6^{-6}(\vec{S}) = G_6[S_+^6 + S_-^6] \quad (2.11)$$

Os coeficientes $\alpha_l(l=2,4,6)$ da Eq. (2.7) são constantes numéricas calculadas por Elliott e Stevens [14].

Como o momento angular para os íons de metais terras raras é grande ($J = 6$, no mínimo), é possível tratar os spins classicamente sem haver mudanças significativas nos resultados esperados. Assim, a energia de anisotropia para spins clássicos tem a seguinte forma:

$$E_{Anis} = K_2^0 P_2(\cos \theta) + K_4^0 P_4(\cos \theta) + K_6^0 P_6(\cos \theta) + K_6^6 \sin^6 \theta (\cos 6\phi) \quad (2.12)$$

Os termos: P_l são polinômios de Legendre, sendo θ e ϕ os ângulos que a magnetização faz com respeito aos eixos z e x respectivamente, os termos K_l^m representam as constantes de anisotropia.

Essas constantes de anisotropias e sua dependência com a temperatura foram estimadas através de um modelo teórico desenvolvido por E.R.Callen e H.B.Callen [15], e seus valores são expressos pela equação:

$$K_l^m(T) = K_l(T=0) \hat{I}_{(l+\frac{1}{2})}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)] \quad (2.13)$$

Mostramos a seguir medidas experimentais das constantes de anisotropia $K_2(T)$, $K_4(T)$ e $K_6^6(T)$ para o elemento terra rara Hólmio e seu respectivo ajuste teórico obtido pela função teórica de Callen-Callen, Eq.(2.13). Onde $\mathcal{L}(\sigma)$ representa a função de Lengiven e σ é uma função de H e T , a função de Lengiven é dada por:

$$\mathcal{L}\left(\frac{\mu H}{k_B}\right) = \coth\left(\frac{\mu H}{k_B T}\right) - \left(\frac{k_B T}{\mu H}\right) \quad (2.14)$$

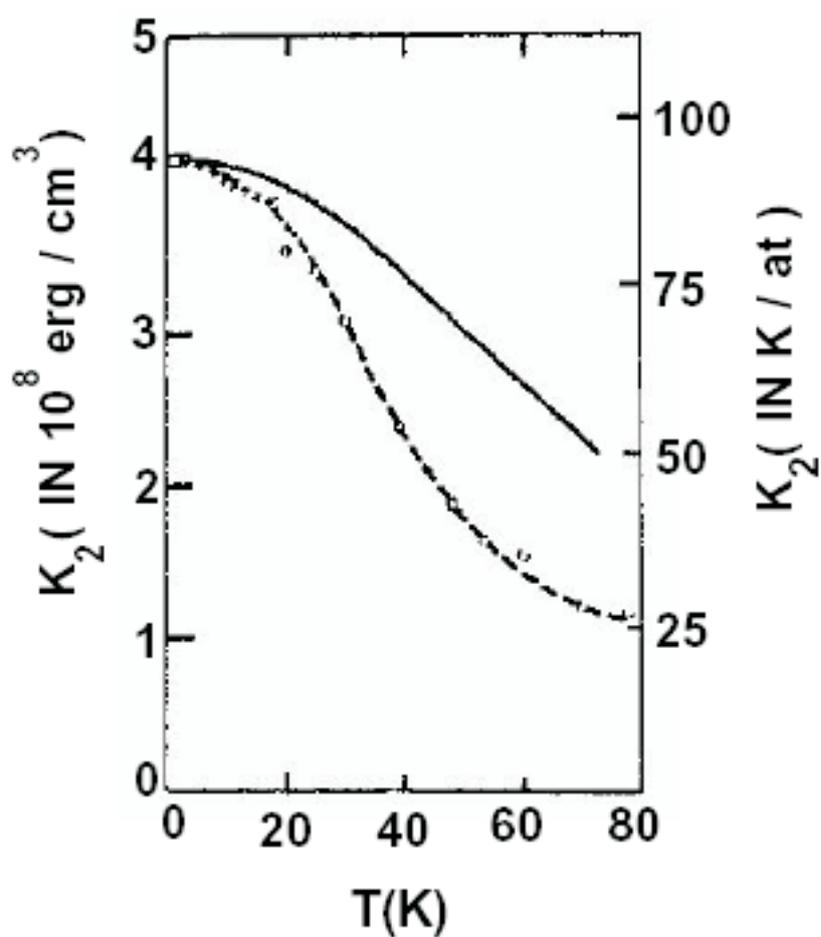


Figura 2.2: Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_2 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os círculos são os dados obtidos por Feron [4] e a linha cheia a curva teórica $4,16 \times 10^8 \hat{I}_{5/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2].

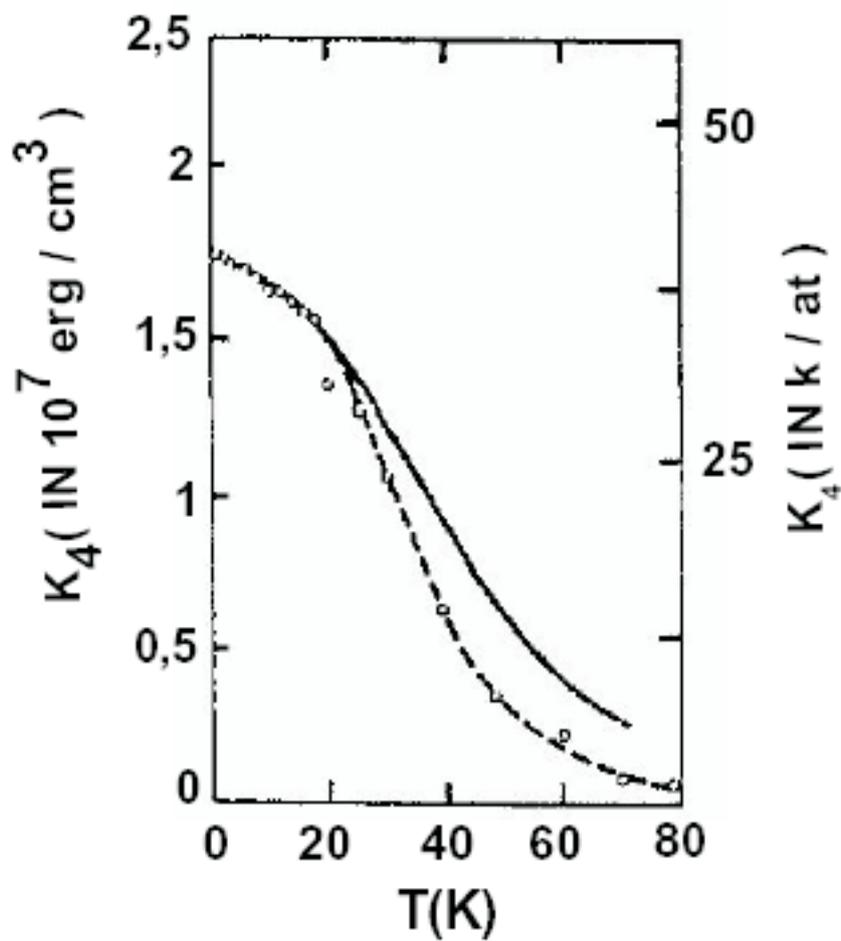


Figura 2.3: Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_4 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os círculos são os dados obtidos por Feron e a linha cheia a curva teórica $1,77 \times 10^7 \hat{I}_{9/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2].

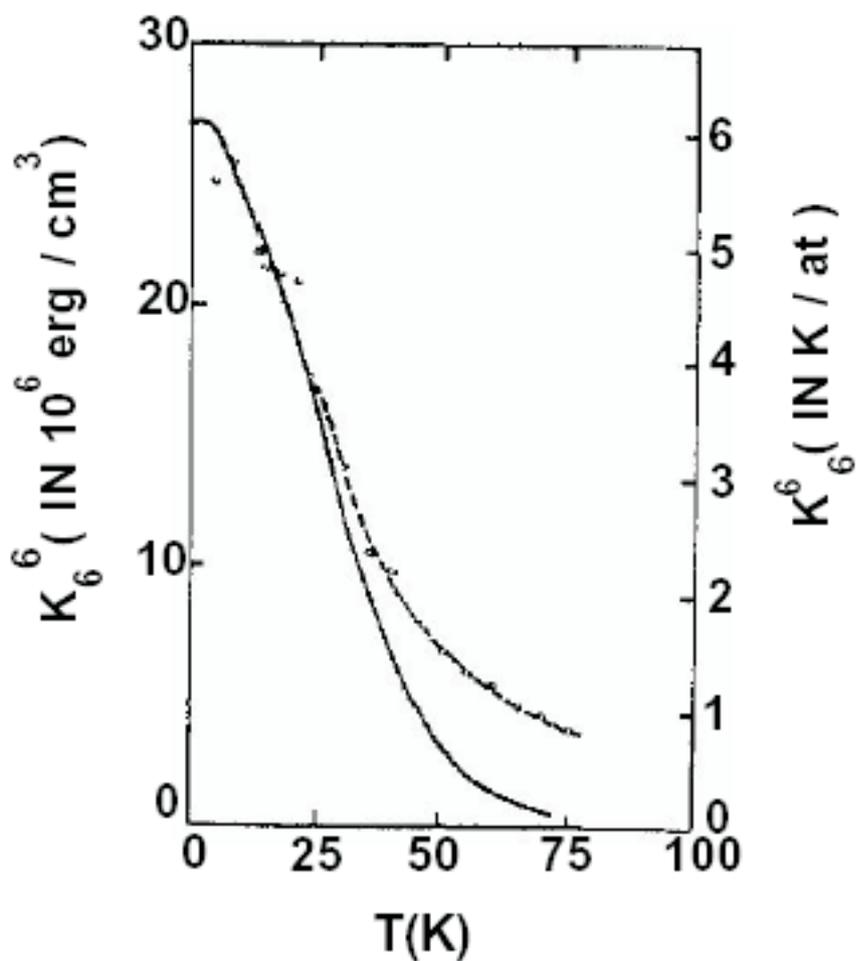


Figura 2.4: Dados experimentais e teóricos da anisotropia K_6 versus temperatura para o Hólmio(Ho). Os círculos são os dados obtidos por Feron e a linha cheia a curva teórica $27 \times 10^6 \hat{I}_{13/2}[\mathcal{L}^{-1}(\sigma)]$ em erg/cm^3 [2].

2.4.2 Energia Zeeman

Os filmes magnéticos são subdivididos em regiões conhecidas como domínios magnéticos. Na ausência de campo magnético externo esses domínios encontram-se localmente orientados em direções que venham a minimizar a energia magnetostática. A magnetização total da amostra é representada pela resultante da soma vetorial sobre as contribuições de cada domínio, sendo representada pelo vetor magnetização \vec{M} , ver a figura (2.5) [16].

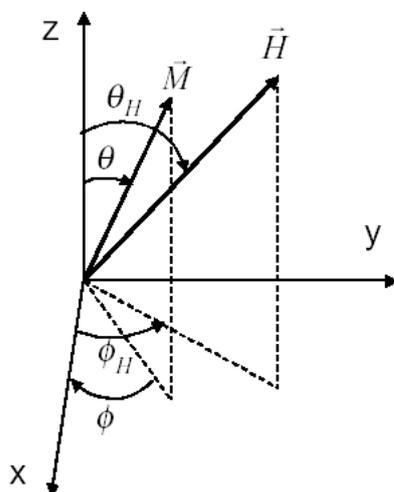


Figura 2.5: Sistema de eixos destacando as coordenadas esféricas dos vetores magnetização e campo magnético externo [2].

Quando um campo magnético externo é aplicado, a magnetização sofre um torque fazendo com que os momentos magnéticos se alinhem na direção do campo. A energia Zeeman é resultado da interação entre a magnetização do material e o campo magnético externo aplicado. A orientação da magnetização é um dos parâmetros no cálculo das propriedades magnéticas de filmes, ela é obtida pela minimização da energia magnética total do sistema. A contribuição Zeeman é minimizada quando a magnetização do sistema está alinhada com o campo externo aplicado.

A energia Zeeman é dada por:

$$E_{Zeeman} = \sum_i g\mu_B \vec{J}_i \cdot \vec{H} \quad (2.15)$$

Onde g é o fator de Landé, μ_B é o Magneton de Bohr, \vec{J}_i é o momento magnético que está sob influência do campo magnético externo e \vec{H} é o campo magnético externo aplicado.

2.4.3 Energia de troca indireta

Nos metais terras raras, exceto o Ce , os elétrons da camada $4f$ podem ser considerados localizados e seu estado fundamental é dado pelas regras de Hund. Os momentos magnéticos da camada $4f$ são acoplados pelos elétrons de condução das camadas $5d$ e $6s$. Os momentos magnéticos produzem uma densidade de ondas de spin nos elétrons de condução que por sua vez interagem com outros momentos magnéticos. Esse tipo de interação é conhecido como interação RKKY (Ruderman, Kittel, Kasuya e Yosida) [17].

Inicialmente a descrição desta interação foi feita por Ruderman e Kittel [18], que ficou conhecida como interação RK. A interação RK é a interação entre os spins nucleares dos metais de transição via interação hiperfina com os elétrons de condução da camada- s . Posteriormente Kasuya [19] e Yosida [20], expandiram essa teoria para os metais terras raras, mostrando que os íons magnéticos localizados nas camadas f interagem entre si via elétrons de condução da camada- s . Podemos resumir essa interação de troca indireta entre os momentos magnéticos da seguinte forma: Para os metais de transição interna é do tipo $[s-d]$ e para os metais terras raras é do tipo $[s-f]$. A energia para essa interação pode ser dada da seguinte forma [10]:

$$E_{exch} = - \sum_{i,j} J(\vec{R}_j - \vec{R}_i) \vec{S}(\vec{R}_i) \cdot \vec{S}(\vec{R}_j) \quad (2.16)$$

onde o acoplamento efetivo entre estes elétrons localizados nas camadas $4f$ e os elétrons de condução, é dado no modelo RKKY[19, 20] por:

$$J = \frac{4S^2 m^* k_F^4}{(2\pi)^3} F(2k_F r) \quad (2.17)$$

onde r é a distância entre os íons localizados, k_F é o vetor de onda do nível de fermi, S^2 é o momento angular total ao quadrado e m^* é a massa reduzida dos elétrons. A função $F(2k_F r)$ é dada por:

$$F(2k_F r) = \frac{2k_F r \cos(2k_F r) - \sin(2k_F r)}{(2k_F r)^4} \quad (2.18)$$

Podemos definir uma grandeza adimensional $\lambda = 2k_F r$, assim podemos reescrever a equação anterior da seguinte maneira:

$$F(\lambda) = \frac{\lambda \cos(\lambda) - \sin(\lambda)}{(\lambda)^4} \quad (2.19)$$

Da equação anterior podemos concluir que J possui um caráter oscilatório expresso pela função $F(\lambda)$, podemos observar este caráter oscilatório na figura (2.6), é devido a esta característica que obtemos diversas estruturas magnéticas observadas nos metais terras raras.

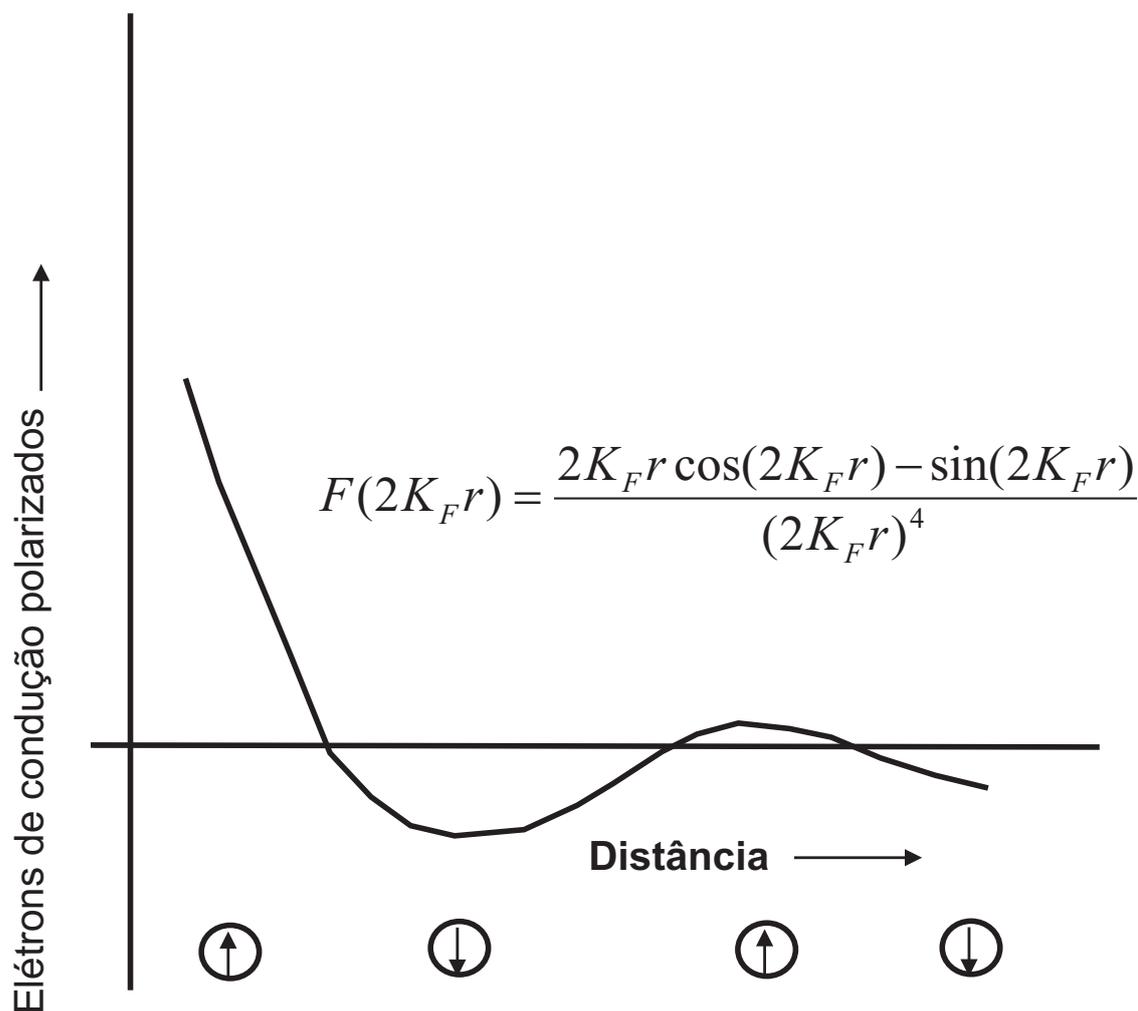


Figura 2.6: Caráter oscilatório da interação RKKY

A energia de troca é usada para descrever as fases magnéticas de filmes finos considerando em primeira aproximação, apenas a contribuição dessa energia, figura (2.7), onde a dependência angular, ϕ , para o ordenamento helimagnético em camadas sucessivas de planos atômicos, pode ser descrito de forma pelo hamiltoniano da Eq. 2.20 [2]

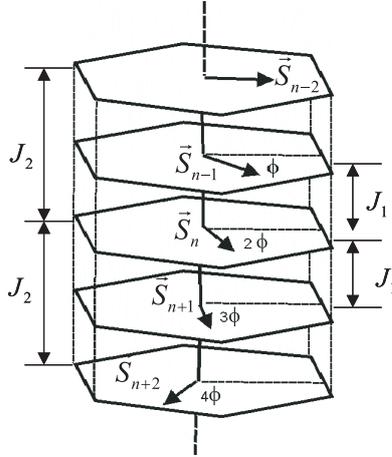


Figura 2.7: Representação da fase helimagnética de filmes finos.

$$E_n = - \sum_{i=0}^2 J_i \vec{S}_n \cdot \vec{S}_{n\pm i} \quad (2.20)$$

a interação de troca nas terras raras pode ser bem descrita quando consideramos interações de até segundos vizinhos. Assim este hamiltoniano passa a ser escrito na forma,

$$E_n = -[J_0 \vec{S}_n \cdot \vec{S}_n + J_1 \vec{S}_n \cdot (\vec{S}_{n+1} + \vec{S}_{n-1}) + J_2 \vec{S}(n) \cdot (\vec{S}_{n+2} + \vec{S}_{n-2})] \quad (2.21)$$

$$E_n = - [J_0 S_n^2 + J_1 (S_n S_{n+1} \cos \phi + S_n S_{n-1} \cos \phi) + J_2 (S_n S_{n+2} \cos 2\phi + S_n S_{n-2} \cos 2\phi)] \quad (2.22)$$

agora, vamos considerar que todos os spins estão saturados, de modo que teremos $S_n = S_{n\pm 1} = S_{n\pm 2} = S$, isto porque para uma dada fase magnética o sistema encontra-se a uma temperatura baixa, de modo que podemos reescrever o hamiltoniano na forma,

$$E = -[J_0 S^2 + J_1 S^2 \cos \phi + J_2 S^2 \cos 2\phi] \quad (2.23)$$

O ângulo característico, ϕ , que estabiliza a fase helimagnética, pode ser determinado a partir das condições de mínimo de energia, de modo que podemos expandir a energia na forma,

$$E(\phi) = E(\phi_i) + \frac{\partial E(\phi_i)}{\partial \phi_i} \Big|_{\phi_i=\phi} (\phi_i - \phi) + \frac{1}{2} \frac{\partial^2 E(\phi_i)}{\partial \phi_i^2} \Big|_{\phi_i=\phi} (\phi_i - \phi)^2 \quad (2.24)$$

Para que tenhamos um mínimo relativo de energia é necessário que,

$$\frac{\partial E(\phi_i)}{\partial \phi_i} = 0 \quad (2.25)$$

$$\frac{\partial^2 E(\phi_i)}{\partial \phi_i^2} > 0 \quad (2.26)$$

Aplicando a primeira condição, (Eq. 2.25), encontramos:

$$2J_1 S^2 \sin \phi + 4J_2 S^2 \sin 2\phi = 0 \quad (2.27)$$

$$2J_1 S^2 \sin \phi + 8J_2 S^2 \cos \phi \sin \phi = 0$$

$$S^2 \sin \phi (2J_1 + 8J_2 \cos \phi) = 0$$

o que nos leva à:

$$\cos(\phi) = -\frac{J_1}{4J_2} \quad (2.28)$$

onde obtemos a relação do ângulo característico da estrutura helimagnética em função das constantes de troca entre primeiros vizinhos (J_1) e segundos vizinhos (J_2). Fazendo uso, agora, da segunda condição de mínimo de energia Eq.(2.26), encontramos:

$$S^2 \cos \phi (2J_1 + 8J_2 \cos \phi) - S^2 8J_2 \sin^2 \phi > 0 \quad (2.29)$$

aplicando na equação anterior o resultado da equação Eq. (2.27), onde $(2J_1 + 8J_2 \cos \phi) = 0$, obtemos:

$$-S^2 8J_2 \sin^2 \phi > 0 \quad (2.30)$$

para que esta equação seja satisfeita, é necessário que $J_2 < 0$, isto é, o acoplamento de troca entre segundos vizinhos é antiferromagnético.

Se considerarmos que os elementos terras raras com ordenamento helimagnético encontrados na natureza, apresentam uma variação angular de $0^\circ < \phi < 90^\circ$, associado ao resultado obtido na Eq.(2.28), nos leva a deduzir que o acoplamento de troca entre primeiros vizinhos é ferromagnético, $J_1 > 0$.

Capítulo 3

Teoria do Espalhamento de Nêutrons

3.1 Interação do Nêutron Com a Matéria

A interação do nêutron com a matéria ocorre em um processo diferente ao das partículas carregadas e da radiação eletromagnética, sua interação se dá por meio de reações nucleares. A ausência de carga nos nêutrons faz com que a interação do nêutron com os campos elétricos atômicos seja desprezível, sendo assim a interação ocorre diretamente com os núcleos. Porém, ao contrário da radiação gama, as radiações secundárias são frequentemente núcleos de recuo com alto poder de ionização, principalmente para materiais hidrogenados [21]. O mecanismo de interação e a consequente atenuação dessas partículas dependem de sua energia e da estrutura do núcleo em questão. Os principais mecanismos de interação do nêutron com a matéria são o espalhamento e a absorção.

Nas reações de absorção, o núcleo energeticamente excitado que é composto pelo nêutron incidente e o núcleo alvo atinge a estabilidade através da emissão de um ou mais fótons ou partículas. As reações de absorção são divididas em função da

energia do nêutron incidente e do resultado da colisão que pode ser: Captura Radiativa, quando os nêutrons incidentes são nêutrons térmicos resultando em reações do tipo (n, γ) , onde o nêutron incidente é absorvido com posterior emissão de radiação γ ; Partículas carregadas para nêutrons rápidos em reações do tipo (n, p) e (n, α) ; Nêutrons de alta energia para reações do tipo $(n, 2n)$ e $(n, 3n)$ [21]; Processo de fissão nuclear que é a divisão do núcleo de um átomo instável em dois átomos menores pelo bombardeamento de partículas como o nêutron com liberação de altas energias, para núcleos pesados, existe a fissão em mais de dois pedaços, porém é rara, uma em 1 milhão para urânio (U). A fissão do núcleo raramente ocorre de forma espontânea na natureza, mas pode ser induzida se bombardearmos núcleos pesados com um nêutron, que ao ser absorvido torna o núcleo instável. Veja a seguir na tabela (3.1) a classificação dos nêutrons quanto a sua energia .

Classe de Nêutrons	Faixa de Energia (eV)
Nêutrons Lentos	$0 < E < 10^{-3}$
Nêutrons Frios	$E < 0,1$
Nêutrons Térmicos	$0,01 < E < 0,5$
Nêutrons Epitérmicos	$0,5 < E < 1$
Nêutrons de Ressonância	$1 < E < 10^2$
Nêutrons Rápidos	$10^3 < E < 2 \cdot 10^4$
Nêutrons Ultra-Rápidos	$E > 2 \cdot 10^4$

Tabela 3.1: Classificação dos Nêutrons em Relação a Energia [3].

A energia do nêutron é o fator de maior importância no processo de interação do nêutron com a matéria, uma vez que, a probabilidade de ocorrer um certo tipo de interação depende da energia. Nêutrons lentos, que são de baixa energia, interagem com a matéria através do espalhamento elástico, já que eles tem pequena energia cinética, pouca energia é transferida ao núcleo do material em estudo. Para nêutrons

rápidos com energia bastante alta, pode ocorrer espalhamento inelástico [5].

A interação do Nêutron com a matéria pode ser descrito pela *seção de choque*, que representa o efeito resultante de um feixe de nêutrons após ser atenuado por mecanismos de absorção ou espalhamento, a seção de choque depende da energia do nêutron incidente e da estrutura do núcleo alvo. Para vários núcleos, a seção de choque de absorção é inversamente proporcional a velocidade v do nêutron incidente, para baixas energias. Para alguns valores de energia, aparecem picos de absorção, causados por ressonância que ocorrem quando a energia do nêutron incidente é igual a um nível particular de energia do núcleo alvo [5].

A atenuação macroscópica de nêutrons pela matéria, pode ser estudada pela atenuação que um feixe de nêutrons incidentes com energia E e intensidade I_0 sofre ao penetrar em material com espessura t , ver a figura (3.1), observando experimentalmente que a intensidade do feixe de nêutrons incidente I_0 decai exponencialmente para $I(t)$ conforme a seguinte relação:

$$\frac{I(t)}{I_0} = e^{-\Sigma_{Total} t} \quad (3.1)$$

Onde I_0 é a intensidade do feixe de nêutrons incidente, $I(t)$ é a intensidade de nêutrons transmitidos pelo material e t é a espessura da placa.

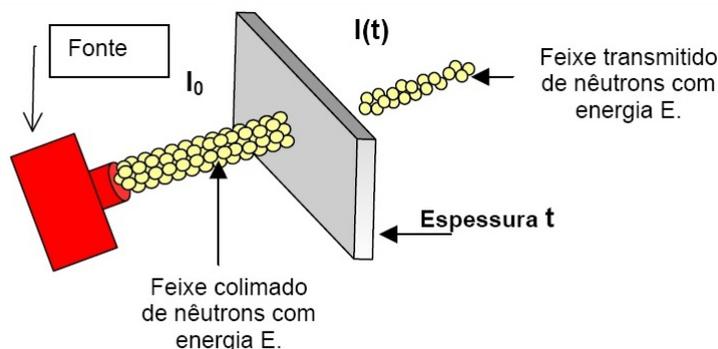


Figura 3.1: Feixe de Nêutrons incidindo em Uma Placa de Espessura t

3.2 O Espalhamento de Nêutrons

O norte-americano Bertran Brockhause e o canadense Clifford shull, ganharam o Nobel de Física de 1994 pelo desenvolvimento de técnicas de espalhamento de nêutrons aplicadas em estudos de Matéria Condensada. O primeiro a estudar o espalhamento de nêutrons no Hólmio (Ho) foi Koehler, que identificou a estrutura magnética como sendo uma hélice no plano basal abaixo da temperatura de Néel ($T_N \cong 132,2K$). Historicamente, o espalhamento de nêutrons provou ser um método poderoso para determinar tanto a estrutura microscópica magnética[?] como a dinâmica de materiais no volume[22].

O espalhamento de nêutrons consiste em incidir um feixe de nêutrons num material no qual há interação direta com o núcleo do mesmo. Para haver espalhamento, o comprimento de onda do material deve ser aproximadamente igual ao do feixe de nêutrons incidente, cujo o comprimento de onda é de aproximadamente $10^{-10}m$, o espalhamento de nêutrons permite determinar com precisão a posição dos átomos leves como o hidrogênio e o deutério e determina as estruturas magnéticas dos sólidos, podendo ocorrer três tipos de espalhamento: elástico, inelástico e o magnético.

O *Espalhamento Elástico* ocorre quando os nêutrons colidem com os núcleos e são espalhados sem alterações de intensidade ou velocidade em relação ao ângulo de deflexão, ocorrendo uma transferência de energia cinética e de momento linear e também ocorre conservação de energia, onde não se observa o efeito de interferência devido as diferentes partes do núcleo. O espalhamento elástico é análogo as colisões elásticas entre duas partículas, conforme é ilustrado na figura (3.2).

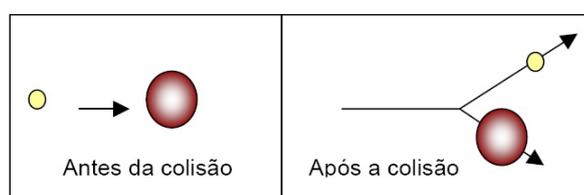


Figura 3.2: Esquema de Espalhamento Elástico [5].

Espalhamento Inelástico ocorre quando o nêutron colide com o núcleo e este apresenta uma transferência parcial de energia, figura (3.3), portanto a energia cinética do sistema nêutron-núcleo não se conserva, em que parte da energia do nêutron é absorvida e leva o núcleo a um estado excitado. Posteriormente o núcleo excitado decai através da emissão de raio gama e o nêutron é reemitido com menor energia e em direção diferente, de acordo com a conservação da energia e do momento. Para haver espalhamento inelástico é necessário que a energia do nêutron incidente seja igual ou próxima a do primeiro estado excitado do núcleo alvo.

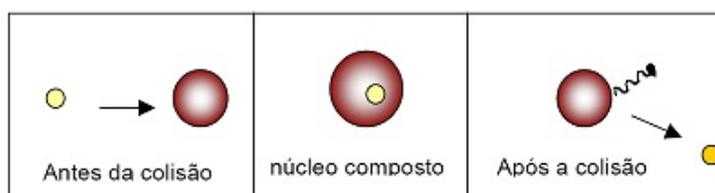


Figura 3.3: Esquema de Espalhamento Inelástico [5].

O *espalhamento magnético* ocorre em átomos ou íons que possuem subníveis eletrônicos incompletos, onde tem-se elétrons desemparelhados que dão origem a um momento magnético resultante, e quando esse momento magnético interage com o momento magnético do nêutron produz-se o espalhamento magnético.

O espalhamento magnético de nêutrons é semelhante ao espalhamento de Raio-x, pois ambos são produzidos pelos elétrons dos átomos. No espalhamento de Raio-x todos os elétrons do átomo contribuem para o espalhamento enquanto que no espalhamento magnético de nêutrons, somente os elétrons que dão origem as propriedades magnéticas do átomo contribuem para o espalhamento de nêutrons. Tanto o espalhamento magnético de nêutrons quanto o de Raio-x apresentam uma dependência de um fator de forma, entretanto estes fatores são diferentes nos casos mencionados, porque no espalhamento magnético de nêutrons somente alguns orbitais referente às camadas mais externas do átomo contribuem para o momento magnético e para o fator de forma magnética do espalhamento, com isso a influência do fator de forma magnética sobre o espalhamento magnético de nêutrons é maior do que o fator de forma eletrônico do átomo sobre o espalhamento de raio-x.

3.3 Espalhamento Magnético de Nêutrons

Como foi observado primeiramente por Bloch, os momentos magnéticos dos átomos ou íons deveriam contribuir significativamente para o espalhamento da seção transversal dos nêutrons lentos. Bloch sugeriu experimentos de polarização magnética em corpos ferromagnéticos saturados, para diferenciar o espalhamento magnético do nuclear. Tais experimentos permitiram a produção de feixe de nêutrons no qual os spins foram preferencialmente orientados, onde estes estados parcialmente polarizados poderiam ser detectados por um segundo espalhamento ou absorção em um corpo ferromagnético [23].

O princípio de Bloch pode ser expresso matematicamente de maneira simples: representando por ψ_n e ψ_m as funções de onda de um nêutron espalhado através de forças magnéticas ou nucleares, a seção transversal total é proporcional a $|\psi_n \pm \psi_m|^2$, onde o sinal depende da orientação relativa do momento magnético do nêutron. Para um feixe não polarizado em um corpo não magnetizado obtém-se pela média uma expressão proporcional a $|\psi_n|^2 + |\psi_m|^2$ para o espalhamento da seção transversal total. Enquanto que para um corpo magnetizado o termo transversal $2\psi_n\psi_m$ não desaparece na média, levando aos efeitos de polarização acima mencionados [23].

O princípio de Bloch tem sido estudado com um maior detalhe matemático por Schwinger. O resultado encontrado por ele para o espalhamento da seção transversal de um feixe não-polarizado em um corpo não-magnetizado é coerente com a expressão de Bloch e é dado por

$$\sigma = \sigma_n + \sigma_m = (\sigma_n + 0,67 \cdot 10^{-24} B^2) cm^2 \quad (3.2)$$

onde B representa o número de magnetons de Bohr do espalhamento de um átomo. A expressão obtida somente é válida quando obtém-se $\frac{\lambda}{2\pi}$ grande em comparação com as dimensões lineares do domínio atômico, que dão origem ao momento magnético, em que λ representa o comprimento de onda do nêutron incidente. O segundo termo da equação (3.2) é multiplicado por um fator de forma magnética que diminui para o valor 1 quando $\frac{\lambda}{2\pi}$ torna-se menor que as dimensões lineares do domínio atômico. Assume-se ainda na equação (3.2) que o momento magnético do nêutron é igual a 2 magnetons de Bohr nuclear [23].

O espalhamento magnético de nêutrons resulta da interação eletromagnética com um sistema qualquer de cargas. Vamos assumir que o sistema de espalhamento pode ser descrito por uma hamiltoniana não-relativística, assim a interação do nêutron com o sistema pode ser descrita da seguinte maneira [24]:

$$H_{int} = \frac{-1}{c} \int \vec{j}(\vec{r}) \cdot \vec{A}_n(\vec{r}) d\vec{r} + \int \rho(\vec{r}) \phi_n(\vec{r}) d\vec{r} - \frac{2\pi\hbar\mu_n}{Mc} \rho(\vec{r}) \quad (3.3)$$

Onde \vec{j} é a densidade de corrente e $\rho(\vec{r})$ é a densidade de cargas do sistema e M é a massa do nêutron. A densidade de corrente e de carga são relacionadas pela equação da continuidade

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{j} = \frac{-\partial\rho}{\partial t} = \frac{-i}{\hbar} [H, \rho] \quad (3.4)$$

Onde H é a hamiltoniana do sistema. Para nêutrons lentos, o vetor e o potencial escalar devido ao momento magético do nêutron são dados por

$$\vec{A}_n(\vec{r}) = \frac{\vec{\mu}_n \times (\vec{r} - \vec{r}_n)}{|\vec{r} - \vec{r}_n|^3} \quad (3.5)$$

e

$$\phi_n(\vec{r}) = \frac{1}{c} \vec{\mu}_n \cdot \left(\vec{V} \times \frac{\vec{r}_n - \vec{r}}{|\vec{r} - \vec{r}_n|^3} \right) \quad (3.6)$$

Nas equações anteriores \vec{r}_n é o vetor posição do nêutron, \vec{V} é a velocidade do nêutron, $\vec{\mu}_n = \gamma\mu_N\vec{\sigma}$ é o momento magnético e $\vec{\sigma}$ é a matriz de Pauli. O primeiro termo da equação (3.3) é a interação do momento magnético do nêutron com a convecção e a corrente de spin do sistema, o segundo termo é a órbita nêutron-spin-nêutron que resulta do acoplamento do campo elétrico do nêutron em movimento com a densidade de carga do sistema e o terceiro termo é o movimento ultra vibracional do momento magnético anômalo do nêutron [24], em torno da trajetória clássica de uma partícula quântica que são elétrons ou outras partículas de spin 1/2, no qual obedecem a equação de Dirac.

3.3.1 Amplitude de Espalhamento Magnético

Estudando um processo de espalhamento em que o sistema sofre mudanças a partir de estados iniciais de energia E_i para um estado final de energia E_f , em que o nêutron é espalhado a partir de um estado inicial do vetor de onda \vec{K} e da energia E para um estado final do vetor de onda \vec{K}' e energia E' . Concluimos que o espalhamento diferencial de nêutrons da seção transversal de choque, ver a figura (3.4), na primeira aproximação de Born pode ser escrito como [24]

$$\frac{d^2\sigma}{d\Omega dE} = \frac{k'}{k} |f(\vec{q})|^2 \delta(E_i - E_f - \hbar\omega) \quad (3.7)$$

onde $\vec{q} = \vec{k} - \vec{k}'$ é o vetor espalhamento de nêutron e $\hbar\omega = E' - E$ é a energia transferida para o nêutron. Para o espalhamento magnético a amplitude de espalhamento é dada por:

$$f(\vec{q}) = \frac{M}{2\pi\hbar^2 c} \left\langle f \left| \int e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}_n} \vec{j}(\vec{r}) \cdot \frac{\vec{\mu}_n \times (\vec{r} - \vec{r}_n)}{|\vec{r} - \vec{r}_n|^3} d\vec{r} d\vec{r}_n \right| i \right\rangle \quad (3.8)$$

Após algumas manipulações, a equação pode ser escrita como

$$f(\vec{q}) = \frac{i\gamma r_0}{(2\pi)^3} \left(\frac{m}{e\hbar} \right) \vec{\sigma} \cdot \int d\vec{r}_n d\vec{q}' e^{i(\vec{q}-\vec{q}')\cdot\vec{r}_n} \frac{\vec{q}'}{q'^2} \times \langle f | \int \vec{j}(\vec{r}) e^{i\vec{q}'\cdot\vec{r}} d\vec{r} | i \rangle \quad (3.9)$$

onde m é a massa do elétron, $r_0 = \frac{e^2}{mc^2}$ é o raio clássico do elétron e e indica a carga do elétron. Esta expressão pode ser simplificada se assumirmos que a densidade de corrente é independente das coordenadas do nêutron. Esta suposição é equivalente para os termos desprezados na interação hamiltoniana que são quadrados, ou para ordens mais altas em $\vec{A}_n(\vec{r})$. Com isso a equação (3.9) pode ser reescrita como:

$$f(\vec{q}) = i(\gamma r_0) \left(\frac{m}{e\hbar q} \right) \vec{\sigma} \cdot (\hat{q} \times \vec{J}_\perp) \quad (3.10)$$

onde \vec{J} é a transformada de Fourier do operador densidade de corrente.

$$\vec{J} = \langle f | \int \vec{j}(\vec{r}) e^{i\vec{q}\cdot\vec{r}} d\vec{r} | i \rangle \quad (3.11)$$

Em que \hat{q} é um vetor unitário ao longo do vetor espalhamento \vec{q} . Observa-se que apenas \vec{J}_\perp , que é a componente perpendicular de \vec{J} , contribui para a amplitude de espalhamento. A amplitude de espalhamento pode ser escrita de outra maneira, definindo o operador adimensional \vec{j}_\perp como

$$\vec{j}_\perp = -i \left(\frac{m}{e\hbar q} \right) \hat{q} \times \vec{J}_\perp \quad (3.12)$$

Apartir desta definição a amplitude do espalhamento magnético pode ser escrita da seguinte maneira:

$$f(\vec{q}) = (|\gamma|r_0)\vec{\sigma} \cdot \vec{j}_\perp \quad (3.13)$$

A amplitude de espalhamento magnético está relacionada com a transformação de Fourier da componente transversal do operador densidade de corrente, assim o espalhamento é semelhante à interação de radiação polarizada com o sistema [24]. A figura (3.4) representa a seção de choque transversal do espalhamento magnético, que é uma medida de quão grande o núcleo aparece para o nêutron e assim como fortemente os nêutrons serão espalhados a partir dele.

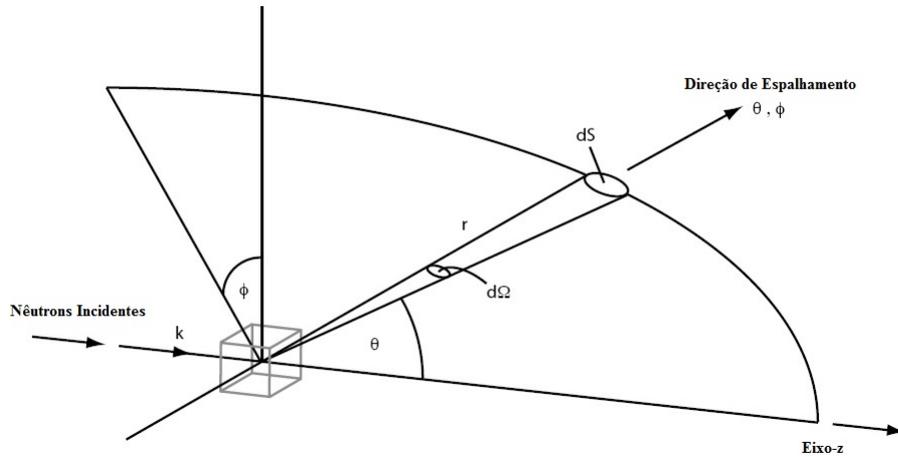


Figura 3.4: Seção Transversal de Choque do Espalhamento de Nêutrons.

3.3.2 Intensidade do Espalhamento Nêutrons

Quando usa-se nêutrons como um teste, existem ambos processos de espalhamento, o nuclear e o magnético para considerar. A intensidade de espalhamento nuclear tem uma forma funcional semelhante à intensidade de espalhamento de raio-x, mas com os comprimentos adequados de espalhamento nuclear no lugar dos fatores de forma de raio-x. Estamos aqui interessados no espalhamento magnético. Se os momentos no sítio l têm componentes $\langle J_{\alpha l} \rangle$, então a intensidade do espalhamento será dada por [25].

$$I_{mag}(\vec{Q}) \propto |F(\vec{Q})|^2 \sum_{\alpha, \beta} (\delta_{\alpha\beta} - \hat{Q}_{\alpha} \cdot \hat{Q}_{\beta}) S^{\alpha\beta}(\vec{Q}) \quad (3.14)$$

na equação (3.14) temos que $\hat{Q}_{\alpha} = |\vec{Q}_{\alpha}|/|\vec{Q}|$ e $F(\vec{Q})$ representa o fator de forma magnética, e a função de correlação spin-spin estática é dada por

$$S^{\alpha\beta}(Q) = \frac{1}{N} \left| \sum_{ll'} \langle J_{\alpha l} \rangle \langle J_{\beta l'} \rangle e^{i(\vec{R}_l - \vec{R}_{l'}) \cdot \vec{Q}} \right|^2 \quad (3.15)$$

Vamos considerar o vetor de onda incidente ao longo do eixo z, substituindo então a função de correlação na equação (3.14), obtemos:

$$I_{mag}(\vec{Q}) \propto |F(\vec{Q})|^2 \sum_{\alpha,\beta} [S^{xx}(\vec{Q}) + S^{yy}(\vec{Q})] \quad (3.16)$$

onde podemos escrever S^{xx} e S^{yy} da seguinte forma:

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{l,l'} J_{x,l} J_{x,l'} e^{-i(\vec{R}_l - \vec{R}_{l'}) \cdot \vec{Q}} \right|^2 \quad (3.17)$$

$$S^{yy}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{l,l'} J_{y,l} J_{y,l'} e^{-i(\vec{R}_l - \vec{R}_{l'}) \cdot \vec{Q}} \right|^2 \quad (3.18)$$

onde temos:

- Vetor de onda incidente do Nêutron : $\hat{Q} = Q\hat{z}$
- Distância entre planos adjacentes: $\vec{R}_l - \vec{R}_{l'} = \frac{c}{2}(l - l')$
- Passo da hélice entre planos adjacentes: $\beta_l = lq_0$

Para uma hélice do plano basal $S^{xx}(\vec{Q}) = S^{yy}(\vec{Q})$. Se β_l é o ângulo da camada l e o primeiro momento se encontra ao longo do eixo-x positivo então temos $\langle J_{xl} \rangle = \frac{1}{2} J_l (e^{i\beta_l} + e^{-i\beta_l})$. Com isso a intensidade do espalhamento torna-se

$$I_{mag}(\vec{Q}) \propto |F(\vec{Q})|^2 \left[\left(\sum_l J_l e^{i(\vec{Q} \cdot \vec{R}_l - \beta_l)} \right)^2 + \left(\sum_l J_l e^{i(\vec{Q} \cdot \vec{R}_l + \beta_l)} \right)^2 \right] \quad (3.19)$$

onde:

$$J_{x,l} = J_l \cos \beta_l = \frac{1}{2} J_l (e^{i\beta_l} + e^{-i\beta_l}) \quad (3.20)$$

$$J_{y,l} = J_l \sin \beta_l = \frac{1}{2i} J_l (e^{i\beta_l} - e^{-i\beta_l}) \quad (3.21)$$

Com estas relações podemos reescrever $J_{x,l}$ e $J_{x,l'}$ da seguinte maneira:

$$J_{x,l} = J \cos \beta_l = \frac{1}{2} J (e^{ilq_0} + e^{-ilq_0}) \quad (3.22)$$

$$J_{x,l'} = J \cos \beta_{l'} = \frac{1}{2} J (e^{il'q_0} + e^{-il'q_0}) \quad (3.23)$$

Sabendo as relações que representam $J_{x,l}$ e $J_{x,l'}$ podemos reescrever $S^{xx}(\vec{Q})$ a partir delas.

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \sum_{l,l'} J_{x,l} J_{x,l'} e^{-i(\vec{R}_l - \vec{R}_{l'}) \cdot \vec{Q}} \right|^2 \quad (3.24)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} \sum_{l,l'} (e^{ilq_0} + e^{-ilq_0})(e^{il'q_0} + e^{-il'q_0}) e^{iQ\frac{c}{2}(l-l')} \right|^2 \quad (3.25)$$

sabendo que $\lambda = Q\frac{c}{2}$, obtemos :

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} \sum_{l,l'} (e^{ilq_0} + e^{-ilq_0})(e^{il'q_0} + e^{-il'q_0}) e^{i\lambda(l-l')} \right|^2 \quad (3.26)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} \sum_{l,l'} (e^{ilq_0} \cdot e^{i\lambda l} + e^{-ilq_0} \cdot e^{i\lambda l})(e^{il'q_0} \cdot e^{i\lambda l'} + e^{-il'q_0} \cdot e^{i\lambda l'}) \right|^2 \quad (3.27)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} \sum_{l,l'} [e^{il(q_0+\lambda)} + e^{-il(q_0-\lambda)}][e^{il'(q_0-\lambda)} + e^{-il'(q_0+\lambda)}] \right|^2 \quad (3.28)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} \sum_l [e^{il(q_0+\lambda)} + e^{-il(q_0-\lambda)}] \sum_{l'} [e^{il'(q_0-\lambda)} + e^{-il'(q_0+\lambda)}] \right|^2 \quad (3.29)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2}{4} [N(\delta_{q_0,-\lambda} + \delta_{q_0,\lambda})][N(\delta_{q_0,\lambda} + \delta_{q_0,-\lambda})] \right|^2 \quad (3.30)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{1}{N} \left| \frac{J^2 N^2}{4} (\delta_{q_0,\lambda} + \delta_{q_0,-\lambda})^2 \right|^2 \quad (3.31)$$

$$S^{xx}(\vec{Q}) = \frac{J^4 N^3}{16} (\delta_{q_0,\lambda} + \delta_{q_0,-\lambda})^4 \quad (3.32)$$

Analogamente podemos obter para $S^{yy}(\vec{Q})$ uma expressão semelhante à encontrada para $S^{xx}(\vec{Q})$. Partindo de:

$$J_{y,l} = J \sin \beta_l = \frac{1}{2i} J (e^{ilq_0} - e^{-ilq_0}) \quad (3.33)$$

e

$$J_{y,l'} = J \sin \beta_{l'} = \frac{1}{2i} J (e^{il'q_0} - e^{-il'q_0}) \quad (3.34)$$

substituindo as equações anteriores na equação (3.18), obtemos a seguinte relação

$$S^{yy}(\vec{Q}) = \frac{J^4 N^3}{16} (\delta_{q_0,\lambda} - \delta_{q_0,-\lambda})^4 \quad (3.35)$$

Sabendo a relação de $S^{xx}(\vec{Q})$ e $S^{yy}(\vec{Q})$ podemos agora reescrever a equação(3.16), para a intensidade do espalhamento magnético de nêutrons, como

$$I(\vec{Q}) = |F(\vec{Q})|^2 \frac{J^4 N^3}{16} [(\delta_{q_0,\lambda} + \delta_{q_0,-\lambda})^4 + (\delta_{q_0,\lambda} - \delta_{q_0,-\lambda})^4] \quad (3.36)$$

A equação anterior pode ser representada pela sua proporcionalidade da seguinte maneira:

$$I(\vec{Q}) \propto |F(\vec{Q})|^2 [(\delta_{q_0, \lambda} + \delta_{q_0, -\lambda})^4 + (\delta_{q_0, \lambda} - \delta_{q_0, -\lambda})^4] \quad (3.37)$$

Onde obtemos uma expressão para a intensidade do espalhamento magnético de nêutrons, o qual é proporcional a $|F(\vec{Q})|^2$ e uma dependência com o comprimento de onda λ e o vetor de onda q_0 . A equação (3.37) resulta em um espalhamento máximo em $q_0 = \pm\lambda$, onde temos para o vetor de onda \vec{Q} a seguinte relação.

$$\frac{Qc}{2} = \pm q_0 \quad (3.38)$$

Onde Q está em unidades de $\frac{2\pi}{c}$.

Resultados experimentais mostram que o ângulo médio do passo da hélice para o Hólmio no volume é de 45 graus ($\frac{\pi}{4}$). Este resultado nos fornece um valor de Q igual à:

$$Q = \pm q_0 = \frac{\pi}{4} \approx 0,785rad \quad (3.39)$$

Resultado este que podemos verificar, na figura (3.5), através da simulação para a intensidade máxima de espalhamento para o Hólmio no volume.

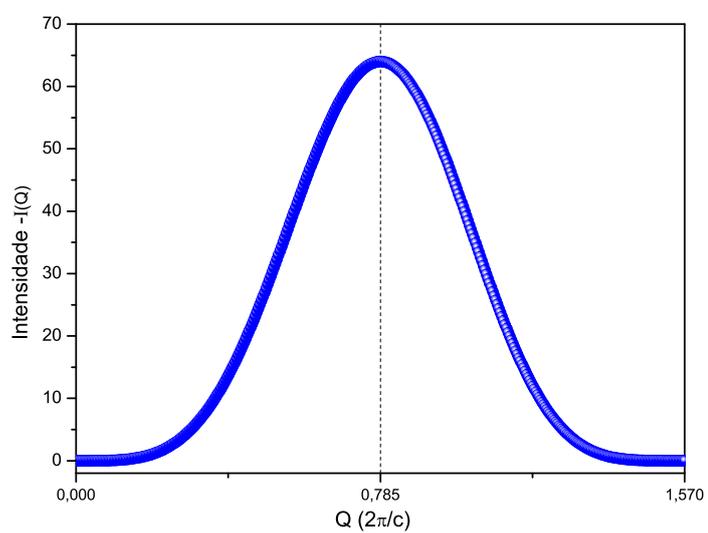


Figura 3.5: intensidade máxima do espalhamento com o passo da hélice de 45 graus de uma fase hélice no volume

Capítulo 4

Resultados Experimentais de Espalhamento de Nêutrons

4.1 Introdução

Apresentaremos a seguir alguns resultados experimentais, onde poderemos evidenciar que o Espalhamento de Nêutrons é uma poderosa técnica na identificação de excitações e estruturas magnéticas.

4.2 Estrutura Magnética do Hólmio em Baixas Temperaturas.

Medidas de espalhamento de nêutrons foram realizadas em monocristais de Hólmio (Ho), com plano de espalhamento o plano $(h0l)$. A transição da fase cone foi estudada através de medidas das intensidades nas posições (100) , $(10\frac{7}{6})$, $(00\frac{3}{2})$, $(10\frac{1}{3})$ e (002) , em intervalos de temperatura de $\Delta T \sim 1K$ entre 15 e $25K$.

Estudos anteriores em monocristais de Ho [26, 27] identificaram uma estrutura magnética caracterizada por pares de momentos agrupados em torno do eixo de fácil magnetização do cristal e com uma pequena componente ao longo do eixo- c (J_z). Essa forma de estrutura resultou do espalhamento magnético, Figura (4.1), nas

posições cristalográficas $(00n \pm \frac{1}{6})$, $(10 \pm \frac{1}{6})$ e $(10n)$, onde n é um inteiro. Os experimentos realizados em baixas temperaturas ($10K$) mostram a existência de picos de baixa intensidade nas posições cristalográficas $(00\frac{n}{3})$, (101) e $(10\frac{n}{3})$. Embora as características gerais do espalhamento sejam consistentes com um arranjo da fase cone, a estrutura apresenta-se como uma fase distorcida.

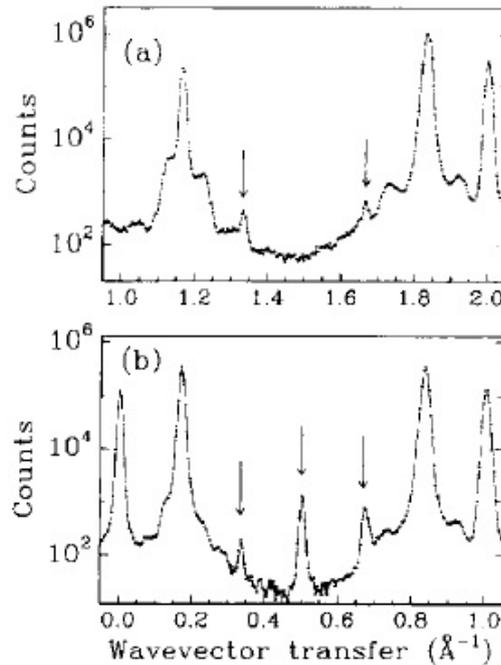


Figura 4.1: Espalhamento de Nêutrons em um Cristal de Ho na temperatura de $10K$ [6]

O efeito dos acoplamentos trigonais na estrutura magnética foram calculados usando o hamiltoniano de campo médio[28]. A presença de picos na posição $(10\frac{1}{2})$, indica que deve haver uma variação na inclinação fora do plano entre os pares de momentos agrupados. O espalhamento no plano (001) indica uma modulação, em pares, das componentes dos momentos magnéticos no plano basal. Estas características são consistentes com a componente do eixo-c, alternando entre dois valores, embora a

inclinação seja no mesmo sentido do eixo- c . No modelo de acoplamento Trigonal dá-se origem a uma estrutura deste tipo, com o efeito adicional de que as projeções no plano basal e ângulos aglomerados assumem dois valores possíveis que se alternam em pares de agrupamentos, figura (4.2)(a).

Na temperatura de aproximadamente $20K$, o Ho forma uma estrutura de spin-slip com um vetor de onda $(\frac{2}{11})c^*$. A dependência com a temperatura foi medida no aquecimento do grande cristal, onde a queda acentuada na intensidade $(10\frac{7}{6})$ em $19,5K$ confirma que o vetor de onda permanece bloqueado em $(\frac{1}{6})c^*$, até que essa temperatura seja alcançada. Neste intervalo a componente antiferromagnética do momento magnético ao longo do eixo c permanece constante, e os pares sucessivos de momentos devem manter uma diferença constante em J_z para toda a faixa de temperatura, no qual o vetor de onda é $(\frac{1}{6})c^*$. Em contraste, as intensidades (100) e $(10\frac{1}{3})$ diminuem com o aquecimento bem abaixo de $19,5K$, mostrando que a inclinação média fora do plano e as modulações no plano diminuem constantemente. Concluindo-se então que a inclinação média da estrutura cone modulada diminui com o aumento da temperatura, até chegar na transição da estrutura, como representada na figura (4.2)(b), com J_z igual e oposto em pares sucessivos e as componentes no plano são iguais.

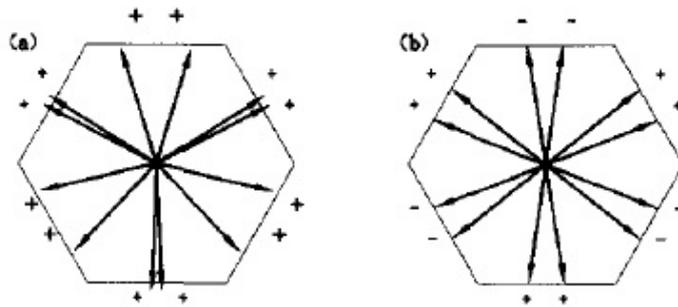


Figura 4.2: Projeções dos momentos no plano basal na fase $(\frac{1}{6})c^*$ [6]

4.3 As Estruturas Magnéticas de Superredes de Hólmio-Ítrio em um Campo Magnético Aplicado

Experimentos com hólmio no volume mostraram que as estruturas magnéticas dos átomos de hólmio têm os momentos em cada plano basal alinhados ferromagneticamente, porém a direção dos diferentes momentos altera os planos basais. Ocorrem cinco arranjos diferentes dos planos magneticamente ordenados: uma hélice no plano basal, uma estrutura Fan, uma helifan, uma ferromagnética e uma estrutura de cone [29].

O espalhamento de nêutrons de uma superrede ideal é um produto do espalhamento de uma única unidade de repetição (bloco) com a rede recíproca da mesma.

Utilizando-se das medidas de espalhamento de nêutrons em uma temperatura fixa de $80K$, e com o campo magnético variando entre 0 e $6T$, Fuente[7], determinou as estruturas magnéticas de uma superrede de terra rara em um campo magnético aplicado ao longo do plano basal. A superrede estudada foi formada por uma unidade periódica de 41 planos de Hólmio (Ho) e 16 planos de Ítrio (Y). Os resultados encontrados, mostraram quatro diferentes tipos de fases magnéticas: Hélice, Helifan, Fan e Ferromagnética. Observou-se que a fase cone não ocorre na superrede [30].

Na figura (4.3) são apresentados exemplos destas quatro estruturas magnéticas, onde as estruturas têm quatro planos sucessivos com as componentes dos seus momentos, estando paralelo ou antiparalelo ao campo magnético. A hélice tem grupos alternados paralelo e antiparalelo, a helifan tem o grupo paralelo $2/3$ e antiparalelo $1/3$, a fase ferromagnética tem todos os grupos paralelos e a fan é um caso especial da ferromagnética no qual o ângulo de abertura é $\theta = 0$.

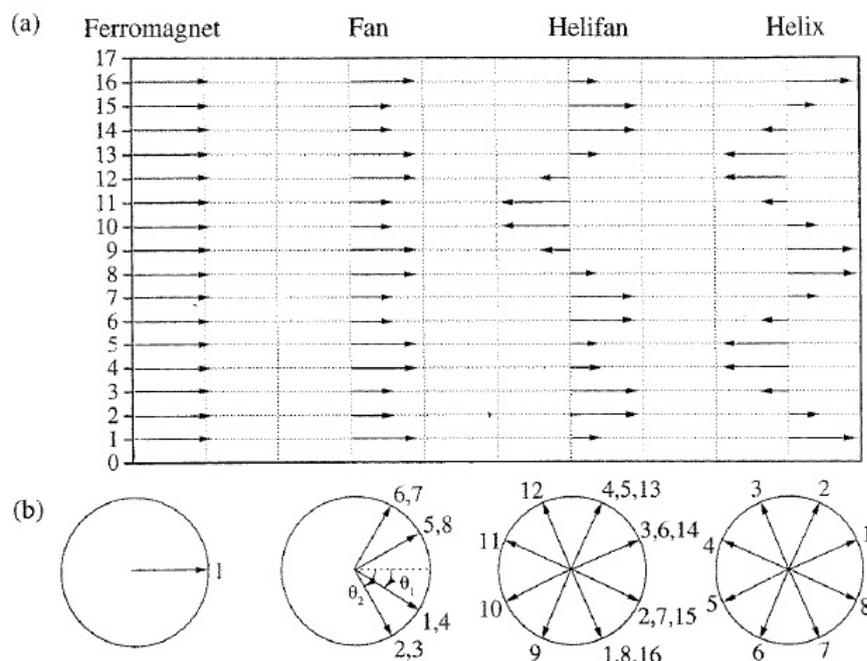


Figura 4.3: (a) As projeções dos momentos ao longo da direção do campo aplicado e (b) na direção perpendicular ao plano basal para os momentos de uma fase ferromagnética, fan, helifan e uma hélice assumindo que, em cada caso, os quatro planos sucessivos estão todos alinhados paralelo ou antiparalelos a direção do campo aplicado [7].

Na figura (4.4) é mostrado o espalhamento para uma superrede de 40 planos atômicos de Ho, com o vetor de onda, \vec{Q} , ao longo da direção $[00L]$. Para a hélice o espalhamento ocorre perto de $L = 1,75$ e $2,25$, onde $L = 2 - q$ está em unidades do vetor da rede recíproca ($c^* = 2/c$) do eixo hexagonal c . O espalhamento a partir de um bloco ferromagnético é semelhante a estrutura da fase fan, que tem duas componentes, mas centrada no volume da reflexão Bragg $L = 2,00$.

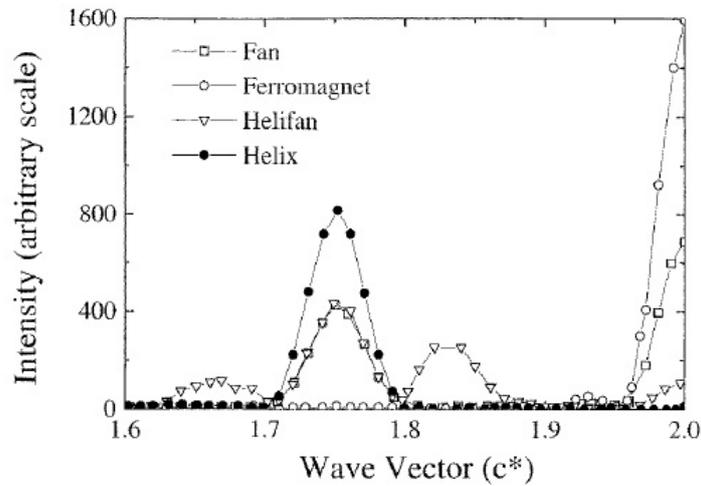


Figura 4.4: As estruturas magnéticas são uma fase ferromagnética, uma fase fan com $\theta_1 = \pi/8$ e $\theta_2 = 3\pi/8$, uma fase helifan com o ângulo entre os planos sucessivos $\theta = \pi/4$ e uma hélice com um ângulo de $\pi/4$ entre planos sucessivos [7].

Os resultados apresentados na figura (4.5) demonstram que os diferentes tipos de estrutura magnética podem ser distinguidos a partir do espalhamento. A estrutura helicoidal resulta no espalhamento próximo de um vetor de onda da hélice, modulado por um vetor da rede recíproca. O espalhamento da fase ferromagnética ocorre perto dos vetores da rede recíproca. A estrutura fan resulta no espalhamento perto de ambas as posições e o espalhamento da helifan é fraco nas reflexões de Bragg.

O espalhamento é constituído por funções *delta* separadas pelo vetor de rede recíproca da superrede, $|\vec{\tau}|$, em que $|\vec{\tau}| = 2\pi/D$ com D sendo o comprimento de repetição do bloco. A estrutura magnética pode diferir da estrutura cristalográfica da superrede com o aumento regular da fase da estrutura magnética de um bloco para o seguinte, por um ângulo de fase ϕ que não é necessariamente um múltiplo de 2π . Com a diferença entre as posições magnéticas e cristalográficas do vetor de onda das reflexões de Bragg, podemos obter a medida com que este ângulo de fase é diferente de um múltiplo de 2π .

Os dados experimentais foram analisados pelo ajuste de um conjunto de distribuições gaussianas para os picos observados nas experiências, conforme ilustrado na figura (4.5). Os vetores de onda dos picos determinam o comprimento de repetição de blocos, D , e do ângulo de fase do bloco, Φ , enquanto que as intensidades dos picos são indicadas pelos fatores de estrutura do bloco. As larguras dos picos Gaussianos determinam o comprimento de coerência das diferentes estruturas magnéticas, $\xi = 2\pi/\omega$ [7].

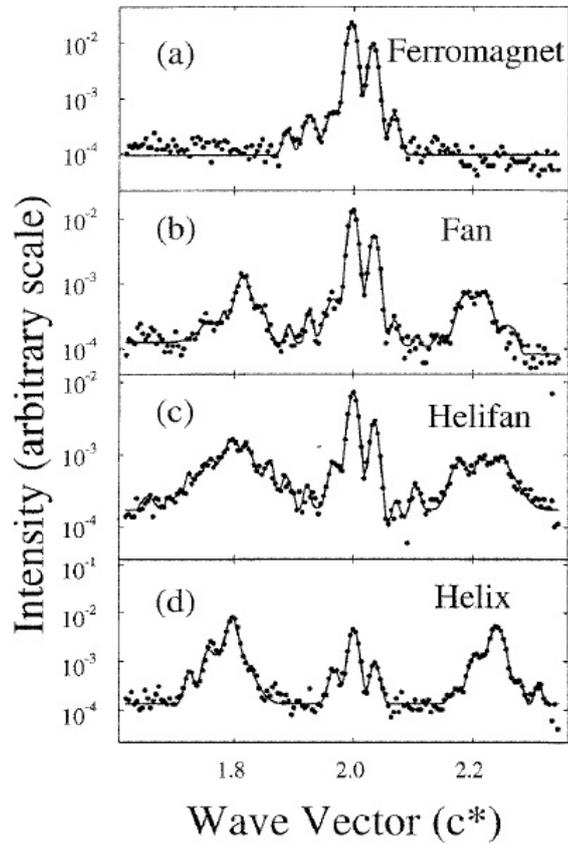


Figura 4.5: O espalhamento de nêutrons a partir de (a) uma fase ferromagnética $H = 3T$ e $T = 4K$, (b) uma fase de fan $H = 3T$ e $T = 60K$, (c) uma fase de helifan $H = 2T$ e $T = 50K$ e (d) um hélice $H = 1T$ e $T = 30K$. As linhas sólidas são aproximadas com uma série de gaussiana [7].

4.4 Estruturas Magnéticas das Ligas e Superredes de Hólmio-Lutécio

No trabalho de P.P. Swaddling et al.[8], as estruturas magnéticas destas ligas foram determinadas por técnicas de espalhamento de nêutrons. As medidas foram realizadas com o vetor de onda \vec{Q} ao longo da direção cristalográfica $[00l]$ e para uma variação de temperatura entre 140 e 10K.

A dependência na temperatura do espalhamento de nêutrons nas ligas de $Ho_{0.9}Lu_{0.1}$ é mostrada na figura(4.6). Na temperatura de 30K observamos dois picos distintos. Estes picos correspondem ao espalhamento nuclear de Bragg (002) em $Q = 2,237 \text{ \AA}^{-1}$, e um pico com vetor de onda de $Q = 1,985 \text{ \AA}^{-1}$. Este último pico resulta do ordenamento magnético e mostra que a estrutura é uma hélice no plano basal com um vetor de onda, $q = 0.225(2)c^*$, que é próximo do vetor $2/9c^*$. A largura do pico a $Q \sim 1,985 \text{ \AA}^{-1}$ é instrumentalmente estreita, demonstrando que a hélice magnética tem ordem de longo alcance e é coerente ao longo de pelo menos 1000 \AA [8].

Quando a amostra foi resfriada a 20K, foi observado picos adicionais com $Q = 0,990 \text{ \AA}^{-1}$ e $Q = 1.239 \text{ \AA}^{-1}$ como é mostrado na figura (4.6). Estes picos correspondem aos quintos harmônicos de (002) e a origem, respectivamente, foram observados em Ho no volume e em ligas de $Ho - Y$. A intensidade do pico magnético principal reduzido e transferido aumenta com o aumento da temperatura, já a largura permanece constante em todas as temperaturas, e a temperatura de transição para o surgimento da ordem magnética foi determinada a partir da temperatura em que a intensidade magnética já não podia ser observada. A dependência com a temperatura da intensidade foi encontrada como sendo aproximadamente linear, em temperatura reduzida, $T_N - T$, dentro de 10K da temperatura de Néel (T_N).

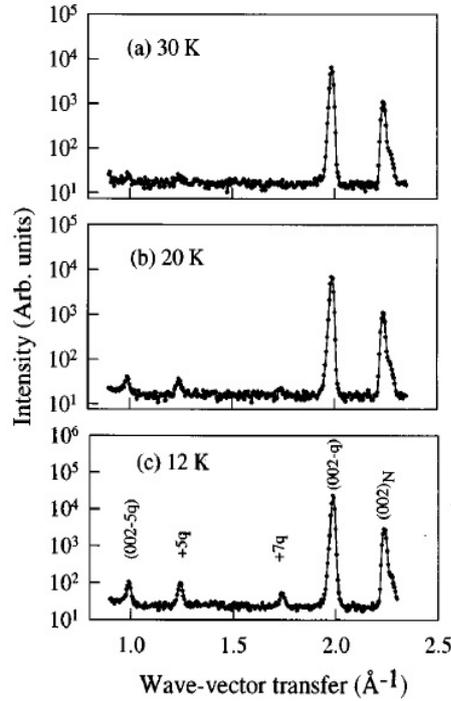


Figura 4.6: O espalhamento de nêutrons observado com Q ao longo de $[00L]$ a partir da liga $Ho_{0.9}Lu_{0.1}$ como uma função da temperatura [8].

Em baixa temperatura os vetores de onda tem valores correspondentes a $2/9(90\%)$, $1/4(70, 30 \text{ e } 10\%)$, e $8/31(50\%)$, todos em unidades de c^* . Estas estruturas surgem, de modo a minimizar as estruturas nos planos basais e são quase sempre encontrados em baixas temperaturas, nas ligas e superredes de Ho . As fases correspondentes a $2/9c^*$ e $1/4c^*$ são mostradas na Figura (4.7), e formam as estruturas (21) e (211), onde os números representam o número de planos sucessivos associados aos eixos fáceis. Os ângulos de aglomeração dos momentos, definidos na Figura (4.7), para as fases $2/9c^*$ e $1/4c^*$ foram deduzidas a partir das intensidades dos harmônicos mais elevados, para a estrutura (21) $\theta_1 = 16 \pm 1^\circ$, enquanto que para a estrutura (211), $\theta_1 = 11 \pm 3^\circ$ e $\theta_2 = 0 \pm 7^\circ$.

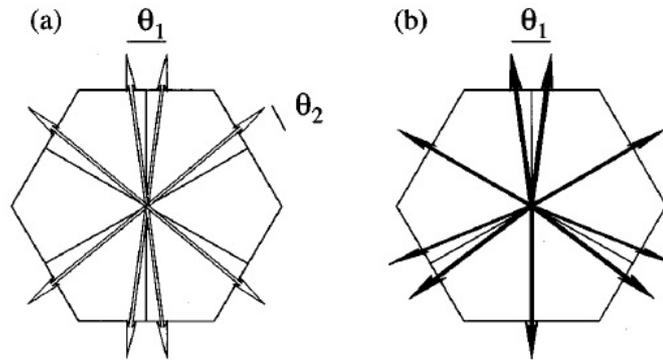


Figura 4.7: As estruturas magnéticas encontradas em baixa temperatura de ligas de Ho_xLu_{1-x} : (a) a estrutura $q = 1/4c^*$ (211) , e (b) a estrutura $q = 2/9c^*$ (212121). Os ângulos de deformação θ_1 são os ângulos entre o spin e o dubleto, e θ_2 representa o ângulo entre a direção do próximo eixo fácil e o spin [8].

Embora estes resultados sejam semelhantes aos obtidos para os filmes finos de ligas de $Ho - Y$ e de ligas de $Ho - Y$ no volume, apresentam características interessantes: a dependência da temperatura de ordenamento magnético $T_N(c)$ com a concentração de c , é diferente para as ligas $Ho - Lu$ e $Ho - Y$. Para as ligas $Ho - Lu$, $T_N(c)$ é de aproximadamente linear com c , enquanto que, para as ligas de $Ho - Y$ não é linear.

A explicação para a variação linear de T_N com c é a de que a susceptibilidade de condução de elétrons não é independente da terra rara, mas sim que a altura do pico na susceptibilidade varia de forma quase linear entre os constituintes puros do modelo de uma liga. Esta explicação sugere que $T_N(c) = c[cT_{Ho} + (1 - c)T_Y]$ para as ligas de $Ho - Y$, onde T_{Ho} é a temperatura de transição para o Ho puro, e T_Y é a temperatura de transição de Y puro partindo do princípio que a susceptibilidade de elétrons de condução é a de Y puro.

Capítulo 5

Espalhamento de Nêutrons em Filmes de Hólmio (Ho)

5.1 Introdução

Grande parte da nossa compreensão da estrutura magnética em escala atômica e das propriedades dinâmicas dos sólidos e líquidos foi adquirida a partir de estudos de espalhamento de nêutrons. Motivado pelos recentes resultados experimentais de Ligas e Superredes de Hólmio, realizamos um extensivo estudo das fases magnéticas de volume e filmes de diferentes espessuras, no intervalo de temperatura de $20K$ a $132K$ na presença de um campo magnético externo aplicado ao longo de uma direção fácil do plano basal. O sistema é descrito pelo modelo de Heisenberg, que usa um Hamiltoniano clássico de interação e considera as energias de troca, anisotropia e Zeeman. As diferentes fases magnéticas identificadas nesta investigação: hélice, helifan, spin-slip e fan, foram caracterizados através da determinação do perfil de espalhamento magnético de nêutrons. O estudo foi conduzido utilizando um algoritmo local de campo médio auto-consistente, o que nos permitiu calcular a função de correlação spin-spin estática que é proporcional à intensidade de espalhamento.

5.2 Diagrama de Fases Magnéticas

As terras-raras apresentam fenomenologicamente várias fases magnéticas complexas. A origem dessas fases depende da energia de troca entre os elétrons localizados na camada $4f$, da anisotropia de campo cristalino e da energia magnetoelástica. As fases magnéticas fundamentais das terras raras, como também as várias estruturas espiraladas que apresentam uma certa periodicidade são derivadas da natureza particular da estrutura de banda dos átomos da série dos lantanídeos.

As fig.5.1 e fig.5.2 mostram esquematicamente as fases magnéticas no volume de algumas terras raras pesadas e leves respectivamente [31].

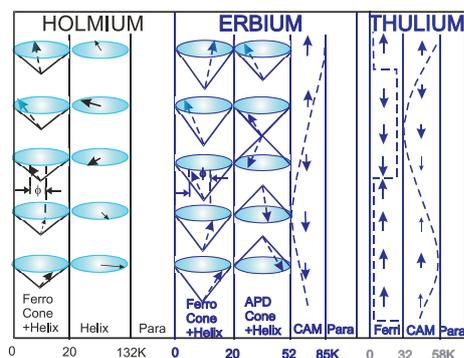


Figura 5.1: Fases magnéticas das terras raras pesadas em função das temperaturas

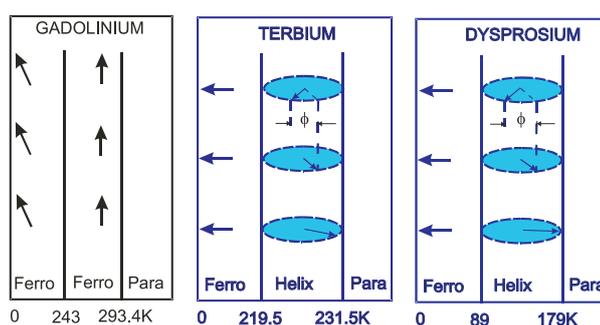


Figura 5.2: Fases magnéticas das terras raras Leves em função das temperaturas

Em particular destacamos o elemento Hólmio que tem número atômico ($Z = 67$) e 10 elétrons na camada principal $4f$. O seu momento orbital ($L = 6$), o momento de spin ($S = \frac{7}{2} - \frac{3}{2} = 2$) e por fim o seu momento magnético total é igual a $J = L + S = 6 + 2 = 8$. A difração de nêutrons realizada por Koehler[1, 32] mostrou que abaixo do ponto de Néel os momentos magnéticos estendem-se no plano basal formando uma estrutura helicoidal. Apenas abaixo da Temperatura de Néel o ângulo entre a magnetização e um dos eixos fáceis é de 50° . A medida que a temperatura diminui esse ângulo também diminui e abaixo de $20K$ atinge um ângulo de 30° . Abaixo de $20K$ os momentos magnéticos se inclinam para fora do plano basal formando uma estrutura cônica com uma componente ferromagnética de $1,7\mu_B$ ao longo do eixo c e com uma componente ferromagnética no plano basal de $9,5\mu_B$ em uma hélice distorcida, por isso o ângulo meio-cone era acima de 80° .

Estas fases magnéticas das terras-raras no volume vem despertando o interesse de vários pesquisadores em investigar compostos desses materiais na forma de filmes, multicamadas e superredes magnéticas. Isto porque, em multicamadas as tendências intrínsecas dos materiais e os efeitos impostos pela estrutura artificial pode dar origem a novas fases magnéticas envolvendo esses compostos.

Neste sentido, fizemos um estudo sistemático de modelagem e simulação para determinar os diagramas de fases magnéticas, $(H - T)$, de volume e filmes finos para o Hólmio, no intervalo de temperatura de $20K$ a $132K$. As transições de fases magnéticas observadas são função do campo magnético externo (H), da temperatura (T) e da espessura (N) do filme.

5.2.1 Diagrama de Fases de Volume

Na ausência de campo externo o Hólmio, no volume, é helimagnético na temperatura de $20K$ (T_C , temperatura de Curie) até $132K$ (T_N , temperatura de Néel). Na figura (5.3), apresentamos o diagrama $(H - T)$ do Hólmio no volume [2].

O diagrama ($H - T$) contém todas as fases magnéticas possíveis que um diagrama de fases magnéticas de hólmio no volume possa apresentar. A fase magnética Fan é uma fase que surge devido ao efeito de campo externo aplicado. Em qualquer processo isotérmico observa-se duas transições de fase. A primeira da fase Hélice para a fase Fan (Hélice→Fan) e a segunda da fase Fan para fase Ferromagnética (Fan→FM). Mantendo-se o campo magnético constante observa-se de uma até seis transições de fase, como por exemplo nos campos fixos de $1kOe$ e $6kOe$. No campo magnético de $1kOe$ ocorre a transição da fase Hélice para fase paramagnética (Hélice→PM). Já no campo magnético de $6kOe$ ocorrem as seguintes transições: FM→Fan→Hélice→Fan→Hélice→Fan→PM [33, 34].

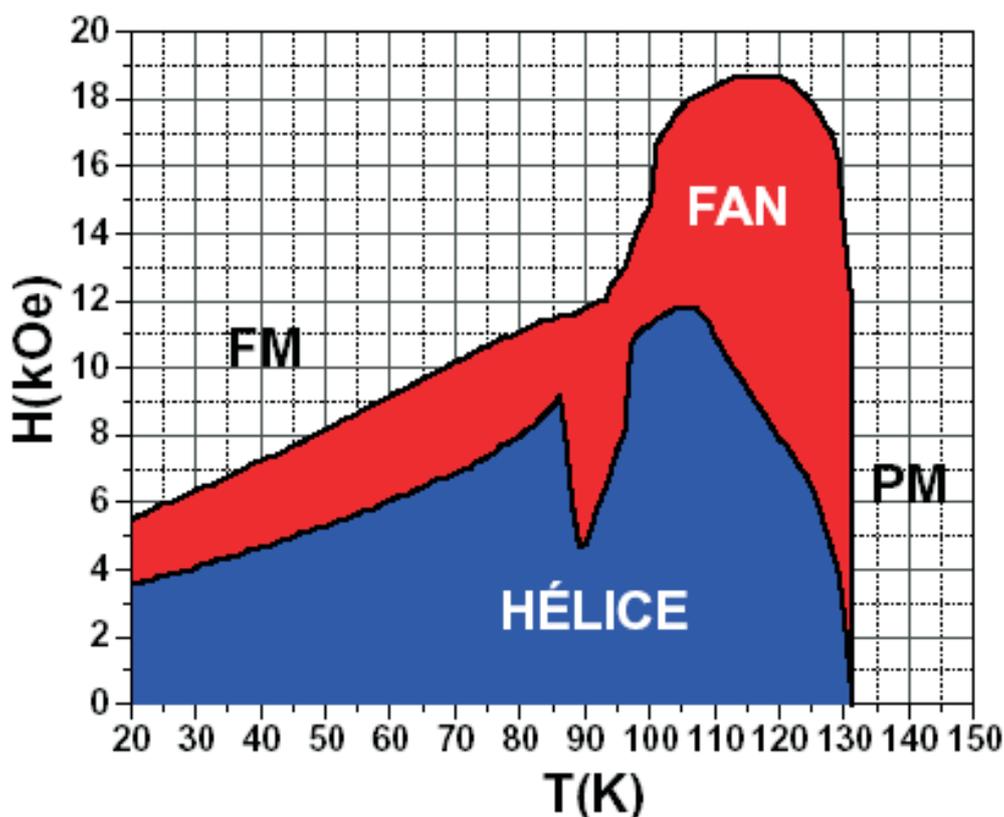


Figura 5.3: Diagrama de fases magnéticas do hólmio no volume.

5.2.2 Diagrama de Fases de Filmes Finos

Fenomenologicamente as fases magnéticas de volume em filmes surgem quando um campo magnético é aplicado ao longo do plano helicoidal da estrutura magnética do elemento terra rara. Apresentamos aqui, figura (5.4), o diagrama de fase ($H - T$) para um filme de hólmio espesso com 24 monocamadas. Em princípio, esta espessura é suficiente para comportar duas voltas completas de hélice que tenha uma variação angular de passo 30° . Entretanto, o diagrama de fases magnéticas obtido é diferente do diagrama de fases magnéticas observado para o hólmio no volume, isto ocorre devido à presença das superfícies que induzem uma nova fase magnética. Esta nova fase, a fase helifan, é induzida pela presença das superfícies. Estudos indicam que existe uma espessura crítica que estabiliza a fase magnética helifan. Em um filme de 24 monocamadas a fase helifan aparece no intervalo de temperatura de $T = 104K$ a $129K$ e no intervalo de campo magnético de $H = 3,7kOe$ a $13,7kOe$. O perfil angular revela as fases magnéticas do filme de hólmio com 24 monocamadas para uma temperatura constante e campo magnético variável. No campo magnético de $2kOe$ e na temperatura constante de $110K$ o perfil angular exhibe a fase magnética hélice. Podemos observar também que no campo magnético de $9kOe$ a fase exibida é a helifan na mesma temperatura de $110K$. No campo magnético um pouco mais intenso de $15kOe$ temos para finalizar a fase magnética fan também na mesma temperatura de $110K$ [2].

Analizando o diagrama de fases para a temperatura de $107K$ observamos as seguintes transições: Hélice→Helifan→Fan→FM. Nesta temperatura observamos o surgimento da estrutura magnética spin-slip[33, 34] em dois intervalos de campo magnético: o primeiro que vai de $3,4kOe$ a $4,2kOe$ e o segundo de $6,2kOe$ a $7,7kOe$, que corresponde ao intervalo da fase hélice. A natureza das transições de fases mencionadas acima, são do tipo: a transição Hélice→Helifan é de segunda ordem e ocorre em um campo magnético de aproximadamente $11,8kOe$, a transição Helifan→Fan é de

primeira ordem e ocorre em um campo magnético de $13,3\text{kOe}$ e a transição $\text{Fan} \rightarrow \text{FM}$ é de segunda ordem e ocorre em um campo magnético de aproximadamente 20kOe .

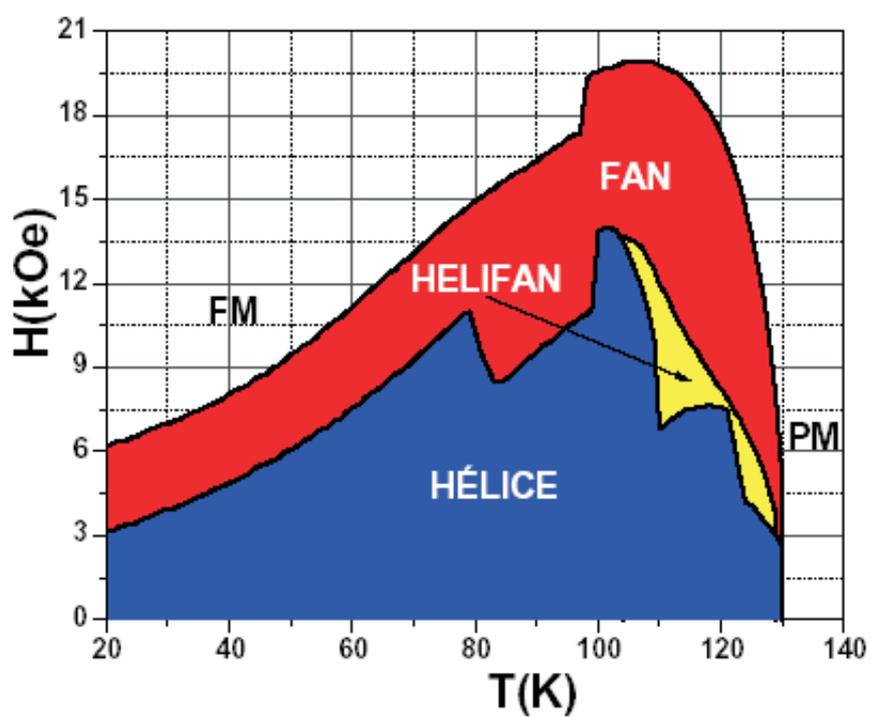


Figura 5.4: Diagrama de Fases Magnéticas para um Filme de Hólmio com 24 Monocamadas.

Para uma melhor visualização das fases magnéticas apresentamos o diagrama dos momentos de spins, na figura (5.5), para a temperatura de $107K$ nos campos magnéticos de $2kOe$, $12,5kOe$ e $15kOe$ [2].

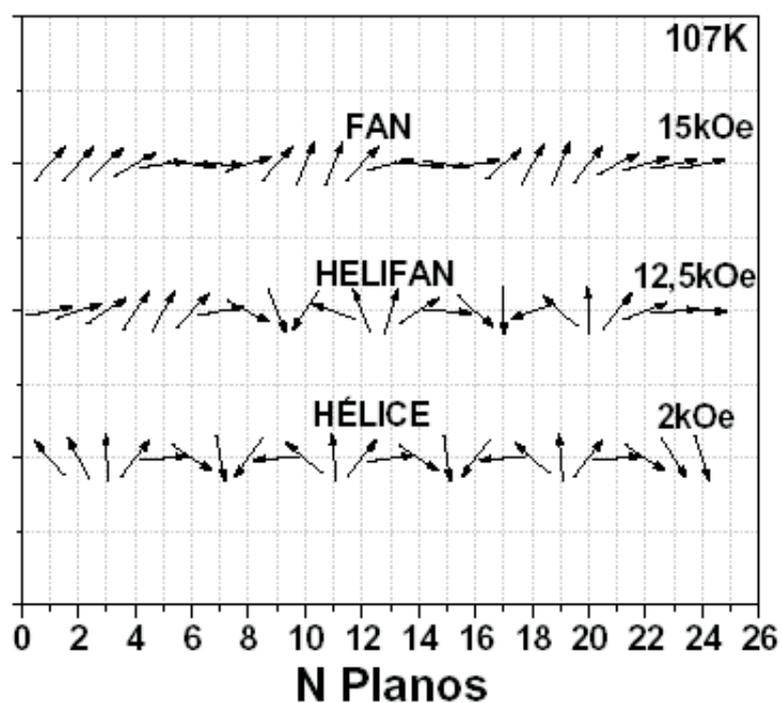


Figura 5.5: Diagrama Esquemático dos Momentos de Spins para a temperatura constante de $107K$.

5.3 Espalhamento Magnético de Nêutrons em Hólmio no Volume

Agora vamos fazer uma investigação de fases magnéticas do hólmio no volume com o campo variando de $0,1T$ a $20T$ e a temperatura variando de $20K$ a $135K$, usando o algoritimo local de campo médio auto-consistente. A primeira fase a ser identificada é a hélice no volume, representada na figura (5.6), em que os momentos magnéticos estão todos alinhados fazendo um ângulo de 30° entre si, vemos que surge dois picos característicos com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,71$.

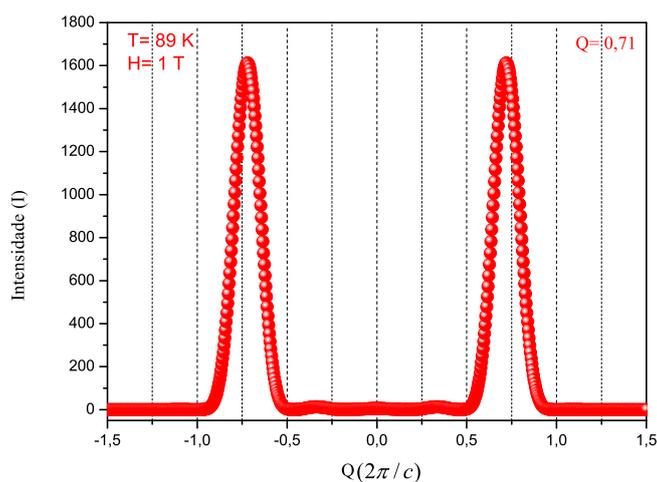


Figura 5.6: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase hélice no volume em um campo de $1T$ e uma temperatura de $89K$

Aqui temos uma outra fase hélice que surge em um campo de $7T$ e em uma temperatura $120K$, esta é uma fase hélice um pouco diferente, pois existem três picos distintos de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons como pode ser visto no gráfico da figura (5.7), esses picos adicionais surgem devido esta fase está próxima da transição da fase hélice para a fan. Os três picos são mostrados no gráfico, um com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,71$, comparando com o pico da fase hélice do gráfico da figura (5.6) vemos que esses picos ficam em torno do mesmo vetor de onda que caracteriza a fase hélice, já o segundo pico tem o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,33$ e o terceiro com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$. Estes dois últimos picos tem intensidades máxima de espalhamento magnético de nêutrons menores que o primeiro pico, por que esta fase está próxima da transição da fase hélice para a fase fan.

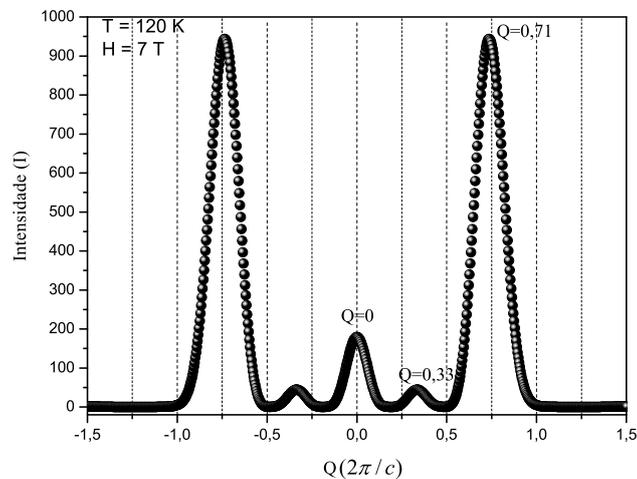


Figura 5.7: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase hélice no volume em um campo de $7T$ e uma temperatura de $120K$

A fase spin-slip surge em um campo de $10T$ e em uma temperatura de $99K$. Esta é uma fase que surge dentro da faixa de temperatura da fase hélice e que também

tem dois picos característicos, porém com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,85$ que são mas afastados da origem comparados com os picos da fase hélice. Nesta fase magnética os momentos magnéticos se alinham em torno dos eixos fáceis da estrutura cristalina do hólmio, que é do tipo HCP (hexagonal compacta), o espalhamento magnético desta fase é mostrado na figura (5.8).

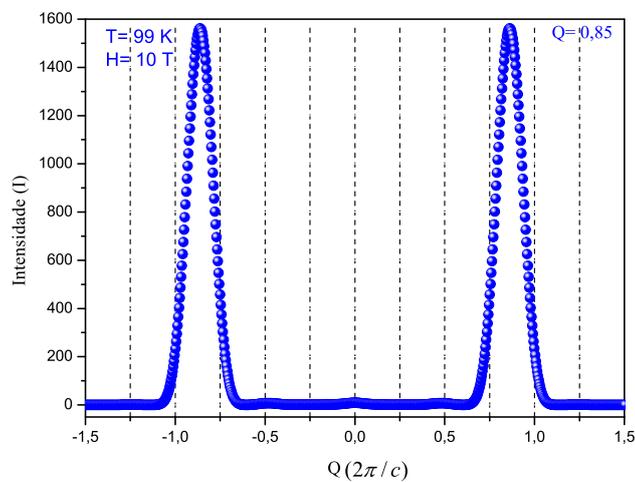


Figura 5.8: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase spin-slip no volume em um campo de $10T$ e uma temperatura de $99K$

A figura (5.9) apresenta as intensidades das duas fases magnéticas hélice e da fase spin-slip todas em um único gráfico, assim podemos ver as diferenças em cada fase através do espalhamento magnético de nêutrons. As duas fases hélice tem seus picos de máxima intensidade de espalhamento magnético de nêutrons no mesmo ponto (em torno de $Q = 0,71$), no entanto suas intensidades são diferentes, tendo a segunda fase hélice dois picos adicionais menores como pode ser visto na figura (5.9), já a fase spin-slip tem um pico de intensidade máxima próxima a do pico da fase hélice, no entanto seu pico de máxima intensidade de espalhamento magnético de nêutrons fica em torno de $Q = 0,85$ que é mais afastado da origem do que na fase

hélice, com isso concluímos que os resultados teóricos tiveram êxito na identificação das fases magnéticas citadas anteriormente.

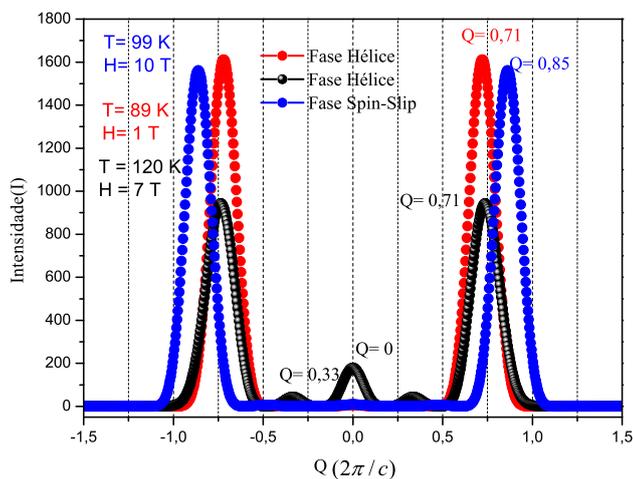


Figura 5.9: Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases hélice e spin-slip sobrepostos em um único gráfico

A fase fan no volume surge em uma temperatura de 120 K e em um campo magnético de $0,1\text{ T}$. O pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons surge com o vetor de onda em torno de $Q = 0$, apresentando nesta fase um maior pico de intensidade máxima quando comparado com os picos observados nas outras fases (hélice e spin-slip), sendo característico da fase fan. Isto ocorre porque seus momentos magnéticos estão aproximadamente alinhados na direção do campo aplicado e isso faz com que o pico de intensidade máxima seja maior nessa fase magnética, essa intensidade está mostrada na figura (5.10).

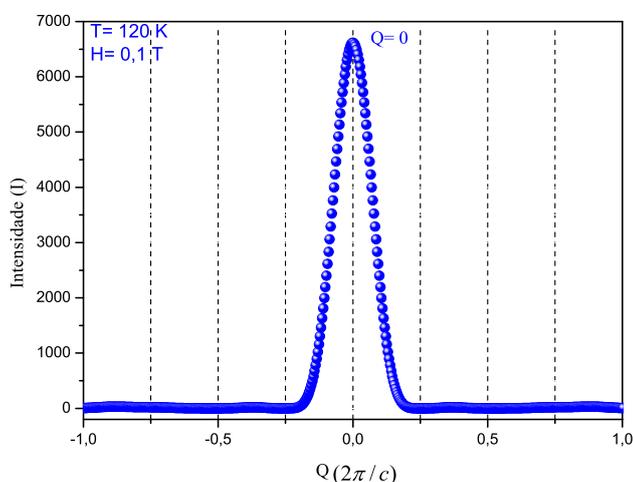


Figura 5.10: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase fan no volume em um campo de $0,1T$ e uma temperatura de $120K$

A fase ferromagnética no volume surge em uma temperatura de $120K$ e em um campo magnético de $18T$ tendo seu pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons no mesmo ponto do pico da fase fan. Apesar desta fase ter o pico de intensidade máxima no mesmo ponto do da fase fan (em $Q = 0$), o pico de intensidade máxima na fase ferromagnética é maior do que na fase fan, pois nesta fase os momentos magnéticos estão todos alinhados na direção do campo aplicado, fazendo com que a intensidade nesta fase seja maior do que nas demais fases magnéticas. O pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons na fase ferromagnética surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$, como está mostrado na figura (5.11).

Na figura (5.12) vamos analisar os gráficos das fases magnéticas fan, hélice e ferromagnética todos em um único gráfico. Podemos observar que os picos de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons das fases fan e ferromagnética

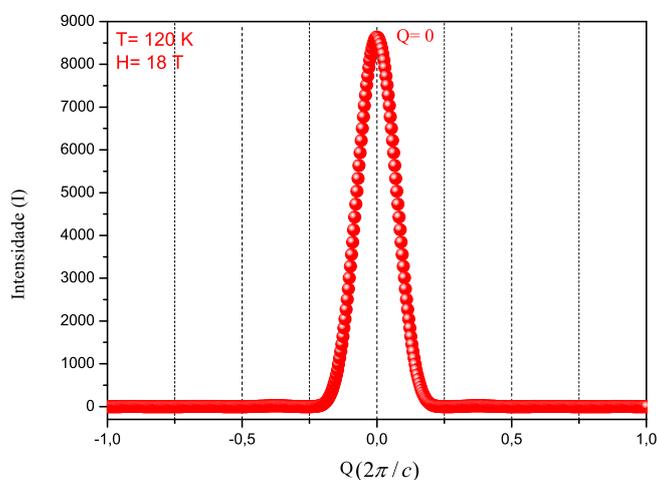


Figura 5.11: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase ferromagnética no volume em um campo de $18T$ e uma temperatura de $120K$

são maiores se comparados com o pico da fase hélice, isso por causa dos momentos magnéticos da fase ferromagnética, que estão alinhados com a mesma direção do campo aplicado e o da fase fan porque os momentos magnéticos estão alinhados próximos a direção do campo aplicado. No caso da fase hélice o pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons é menor por que os momentos magnéticos estão mais distantes um do outro e alinhados fazendo um ângulo entre si de 30° , alinhados assim de uma maneira diferente em relação aos das fases fan e ferromagnética como pode ser observado na figura (5.12). Estas fases magnéticas são bastante diferente umas das outras como pode ser observado nos gráficos, com esses dados da simulação numérica de espalhamento magnético de nêutrons concluímos que este é uma boa ferramenta para identificar as fases magnéticas de hólmio no volume.

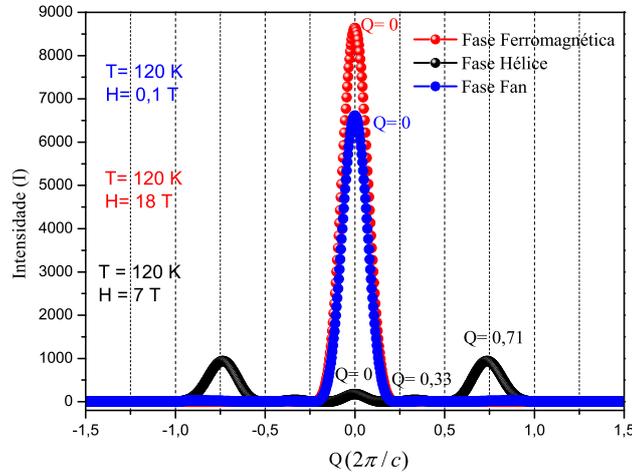


Figura 5.12: Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases Ferromagnética, Fan e Hélice sobrepostos em um único gráfico

5.4 Espalhamento Magnético de Nêutrons em Filmes Finos de Hólmio (Ho)

O cálculo para a intensidade do espalhamento magnético de nêutrons foi realizado no capítulo 6 na seção (3.3.2), depois de realizados os referentes cálculos chegou-se a seguinte expressão para a intensidade de espalhamento magnético de nêutrons como:

$$I(\vec{Q}) = |F(\vec{Q})|^2 \frac{J^4 N^3}{16} [(\delta_{q_0, \lambda} + \delta_{q_0, -\lambda})^4 + (\delta_{q_0, \lambda} - \delta_{q_0, -\lambda})^4] \quad (5.1)$$

Onde obtemos uma expressão para a intensidade do espalhamento magnético de nêutrons, no qual é proporcional a $|F(\vec{Q})|^2$ que é o fator de forma magnético que depende do tipo de material a ser estudado, também tem uma dependência com o comprimento de onda λ e o vetor de onda q_0 . A partir dessa expressão de intensidade podemos calcular os picos de intensidade máxima de espalhamento para identificar as fases magnéticas de filmes finos de Hólmio (Ho), vamos ter um pico de intensidade máxima quando $\lambda = \pm q_0$. A fase magnética hélice pode ser identificada através do

espalhamento magnético de nêutrons, em que os momentos magnéticos estão espalhados no plano basal com o ângulo do passo da hélice de 30° , assim podemos ver que tipo de gráfico é gerado para esta fase magnética a partir do espalhamento magnético de nêutrons, como é mostrado na figura (5.13), na temperatura de $25K$ e no campo de $1T$. O pico de intensidade máxima do espalhamento magnético de nêutrons nesta fase surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,57$.

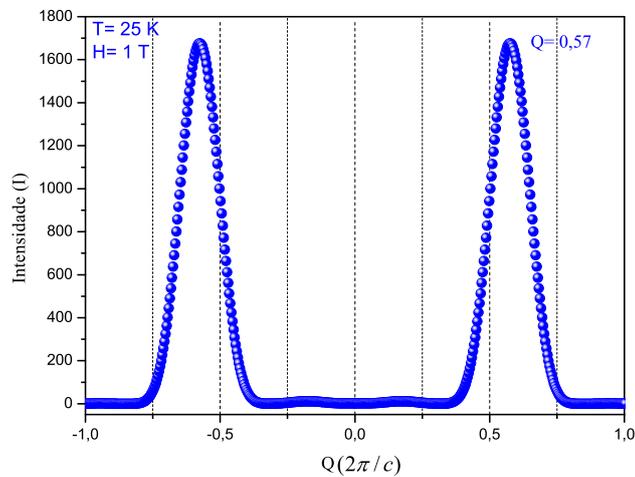


Figura 5.13: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética Hélice em um campo de $1T$ e uma temperatura de $25K$

Agora para um campo de $7T$ e para uma temperatura de $86K$ observamos uma outra fase magnética que é chamada helifan, veja a figura (5.14), esta é uma fase intermediária que aparece entre as fases magnéticas hélice e fan, no qual a direção do campo aplicado faz um ângulo de 30° com o plano de espalhamento, esta fase apresenta três picos característicos, um pico com intensidade máxima do espalhamento magnético de nêutrons surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,68$, o segundo surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$ e o terceiro surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,30$. Estes picos adicionais surgem devido

a orientação dos momentos magnéticos desta fase em relação a direção do campo aplicado.

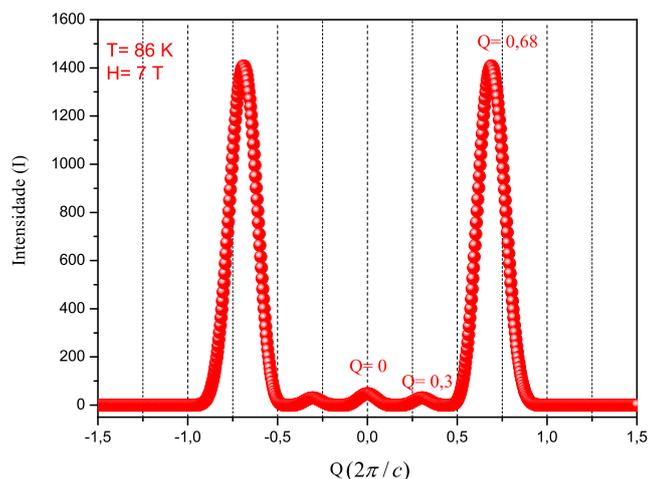


Figura 5.14: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética Helifan em um campo de $7T$ e uma temperatura de $86K$

A fase magnética fan surge em uma temperatura de $85K$ e em um campo de $13T$ como mostrado na figura (5.15). Nesta fase temos os momentos magnéticos todos alinhados aproximadamente na direção do campo aplicado, isto faz com que o pico de intensidade máxima do espalhamento seja maior nesta fase magnética do que nas outras fases citadas anteriormente (hélice e helifan). Observando o gráfico seguinte vemos que esta fase apresenta um perfil de espalhamento magnético diferente em relação aos das outras fases (hélice e helifan), apresentando um único pico que fica localizado com um vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$.

Na figura (5.16) apresentamos os picos característicos de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons das fases hélice, helifan e fan. Na fase hélice observamos dois picos simétricos com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,57$, estes picos surgem devido a orientação dos momentos magnéticos que estão espalhados no

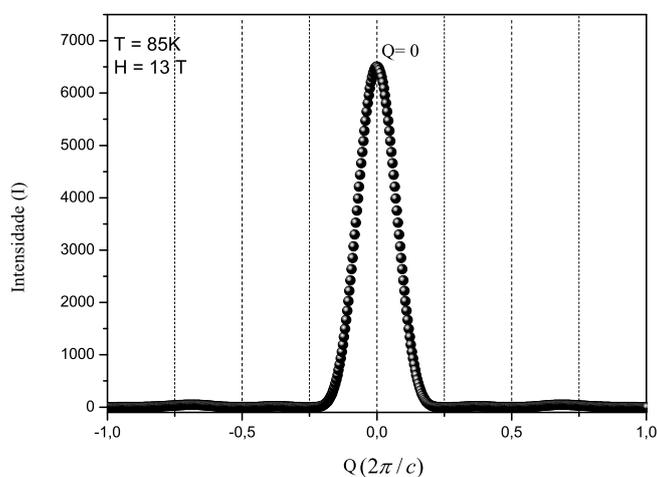


Figura 5.15: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase magnética fan em um campo de $13T$ e uma temperatura de $85K$

plano basal com o passo da hélice de 30° . A fase helifan é uma fase intermediária que surge entre as fases hélice e fan, sendo caracterizada por três picos distintos, um pico maior com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,68$, o segundo menor com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$ e o terceiro que é o menor com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,3$, essa fase apresenta estes picos distintos devido a orientação dos momentos magnéticos em relação a direção do campo aplicado. A fase fan é caracterizada por ter apenas um pico característico, com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$, esta fase apresenta esse pico devido os momentos magnéticos estarem alinhados aproximadamente na direção do campo aplicado e como consequencia a intensidade nesta fase é maior do que nas fases citadas anteriormente (hélice e helifan).

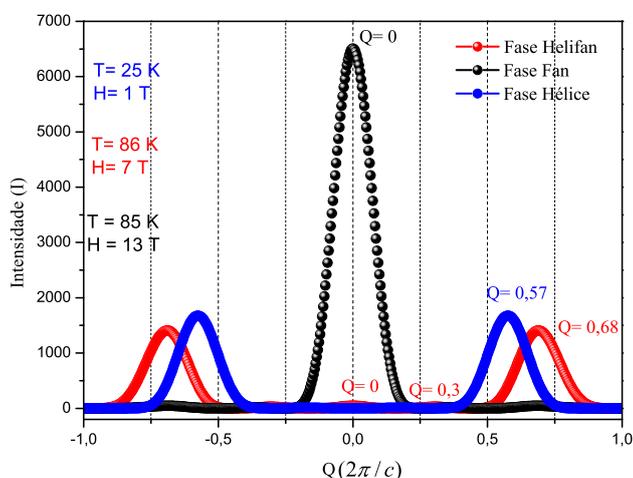


Figura 5.16: Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases magnéticas hélice, Helifan e Fan sobrepostos em um único gráfico

A fase ferromagnética surge em um campo de $17T$ e em uma temperatura de $85K$, no qual o pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$ como mostrado na figura(5.17). Nesta fase magnética todos os momentos magnéticos do plano do filme fino estão alinhados na direção do campo aplicado, no qual faz um ângulo de 30° com o eixo hexagonal, isto faz com que surja um pico de intensidade máxima do espalhamento magnético de nêutrons maior do que os picos das outras fases citadas fases citadas anteriormente (hélice, helifan e fan). Analizando o gráfico da fase ferromagnética observamos que é semelhante ao gráfico da fase fan, mas a diferença é notada quando se sobrepõem os dois gráficos e vemos que a intensidade do espalhamento magnético na fase ferromagnética é maior do que o espalhamento magnético na fase fan.

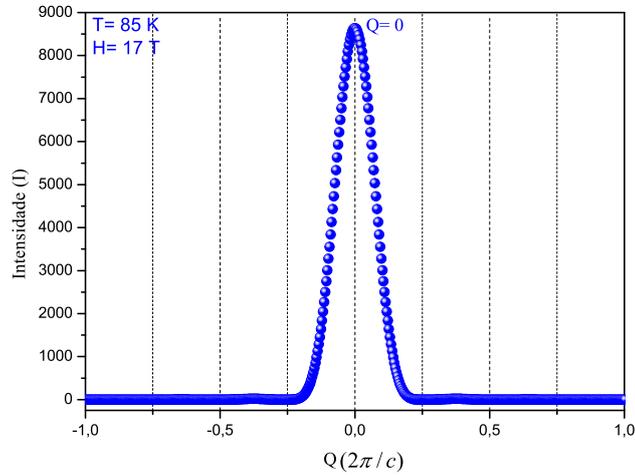


Figura 5.17: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase ferromagnética em um campo de $17T$ e uma temperatura de $85K$

Na figura (5.18) apresentamos o gráfico do espalhamento magnético de nêutrons de uma fase magnética chamada de spin-slip, que surge em um campo de $1T$ e em uma temperatura de $99K$. Nesta fase os momentos magnéticos do filme fino se alinham próximos as direções dos eixos fáceis da estrutura cristalina do Hólmio que é do tipo HCP (Hexagonal Compacta), esta fase também surge dentro da faixa de temperatura e de campo da fase hélice. Os momentos magnéticos desta fase formam dubletos e singletos ao longo do plano hexagonal do hólmio, esse tipo de fase magnética tem dois picos característicos que surgem com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0,75$.

Na figura (5.19) apresentamos os picos característicos de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons das fases magnéticas fan, spin-slip e ferromagnética. Na fase fan observamos um único pico característico que surge com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$, esse pico tem essa forma devido os momentos magnéticos estarem alinhados aproximadamente na direção do campo aplicado. Na fase spin-slip sugerem dois picos característicos com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de

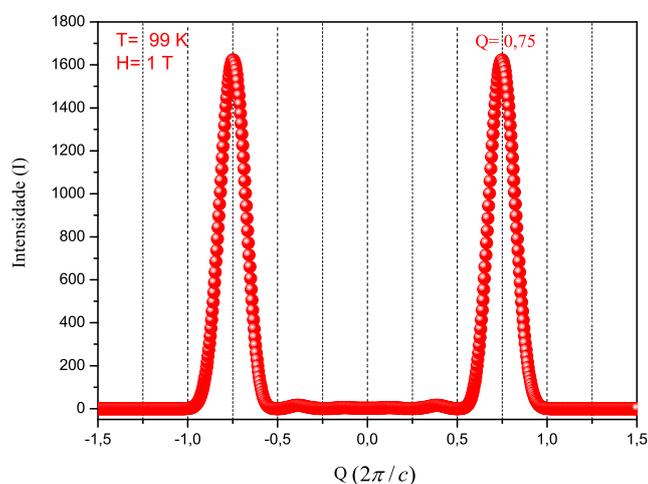


Figura 5.18: Gráfico do espalhamento magnético de nêutrons para identificar a fase spin-slip em um campo de $1T$ e uma temperatura de $99K$

$Q = 0,75$, nesta fase os momentos magnéticos estão alinhados de forma diferente em relação a direção do campo aplicado. Na fase ferromagnética temos também um pico característico que surge no mesmo ponto do pico da fase fan, com o vetor de onda (\vec{Q}) em torno de $Q = 0$.

Analizando o gráfico da figura (5.19), vemos que o pico de intensidade máxima de espalhamento magnético de nêutrons da fase ferromagnética é semelhante ao pico da fase fan, mas a diferença é notada quando comparamos as intensidades de espalhamento magnético, pois na fase ferromagnética a intensidade de espalhamento é maior que a intensidade de espalhamento da fase fan, sendo também maior que a intensidade de espalhamento da fase spin-slip. Com esses resultados de simulação numérica de espalhamento magnético de nêutrons podemos concluir que este é uma boa ferramenta para identificar fases magnéticas de filmes finos de hólmio (Ho).

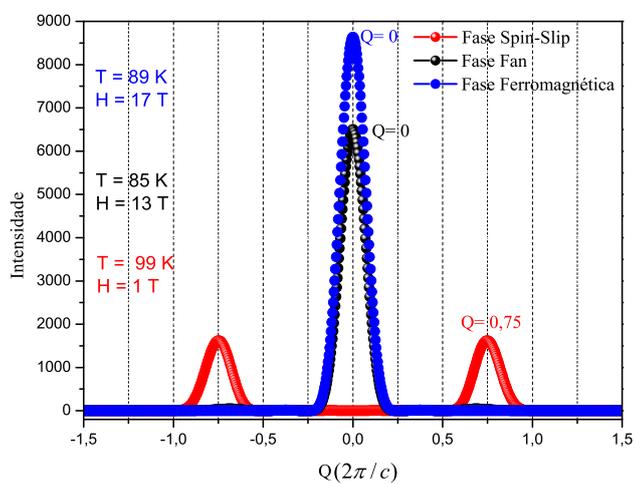


Figura 5.19: Gráfico das intensidades dos espalhamentos magnéticos das fases Ferromagnética, Fan e spin-slip sobrepostos em um único gráfico

Capítulo 6

Considerações Finais e Perspectivas

6.1 Considerações Finais

Verificamos neste trabalho a poderosa técnica experimental que é o espalhamento magnético de nêutrons na identificação de estruturas magnéticas do elemento hólmio (Ho), através das posições e intensidades dos picos que caracterizam o espalhamento, para uma determinada estrutura magnética.

Determinamos os diferentes perfis de espalhamento magnético para as fases Hélice, Helifan, Fan, Spin-slip e Ferromagnética, em filmes finos e no volume, os quais se mostraram bem distintos. Dessa forma, esta técnica vem a se somar a outras medidas tais como: magnetização, susceptibilidade e calor específico, na caracterização de materiais magnéticos. Diante dos resultados obtidos da simulação numérica de espalhamento magnético de nêutrons em filmes finos e no volume de hólmio (Ho), podemos concluir que esta técnica é uma ótima ferramenta na identificação de fases magnéticas do hólmio (ho).

6.2 Perspectivas

Pretendemos fazer um estudo mais detalhado, através da simulação de Espalhamento de Nêutrons, das diferentes estruturas magnéticas de outros elementos terras raras no volume, em filmes e superredes. Associado a esta técnica, também realizaremos simulações para determinar o espectro de energia das Ondas de Spin, para estas diferentes estruturas magnéticas, construindo dessa forma um cenário teórico completo para caracterizar diferentes estruturas magnéticas.

Bibliografia

- [1] W.C.KOEHLER et al. *Phys. Rev.*, v. 151, p. 414, 1966.
- [2] RODRIGUES, L. J. F. *Diagrama de Fases Magnéticas de Filmes Finos de Hólmio*. Dissertação (Mestrado), Mossoró-RN, Maio 2010.
- [3] OLIVEIRA, K. A. M. de. *Estudo do Espalhamento em Imagens Neutronográficas Bidimensionais*. Dissertação (Mestrado), Rio de Janeiro, Janeiro 2006.
- [4] J.L.FÉRON; G.HUY; R.PAUTHENET. *Les Elements des Terres Rares II*, v. 17, p. 180, 1970.
- [5] LIMA, C. T. dos S. *Tela Conversora Nacional de Gadolínio Para Neutronografia*. Dissertação (Mestrado), Rio de Janeiro.
- [6] J.A.SIMPSON et al. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, v. 140-144, p. 751–752, 1995.
- [7] FUENTE, C. la et al. *J. Phys. Condens. Matter*, v. 11, p. 65296541, 1999.
- [8] P.P.SWADDLING et al. *Phys. Rev. B*, v. 53, p. 6488, 1996.
- [9] KITTEL, C. *Introdução à Física do Estado Sólido*. Universidade da Califórnia, Berkeley: Editora Campus.
- [10] MELLO, V. D. de. *Propriedades Magnéticas de Filmes Finos de Disprósio*. Tese (Doutorado) — UFRN, Natal-RN, Fevereiro 1997.
- [11] ELLIOTT, R. *Magnetic Properties of Rare Earth Metals*. Department of Theoretical Physics of University of Oxford: Plenum Publishing Company Ltd, 1972.
- [12] JENSEN, J.; MACKINTOSH, A. R. *Rare Earth Magnetism Structures and Excitations*. H.C. Orsted Institute of University of Copenhagen: Clarendon Press.Oxford.

- [13] W.ASHCROFT, N.; MERMIN, N. D. *Solid State Physics*. Fort Worth Philadelphia San Diego: Saunders College Publishing.
- [14] ANOUK, A. *The Eletonic Structute of Rare-Earth Metals and Alloys: The Magnetic Heavy Rare-Earths*. London: Academic Press, 1977. ISBN 0-12-18815-4.
- [15] E.R.CALLEN; H.B.CALLEN. *J.Phys.Chem.Solids*, v. 27, p. 1271, 1966.
- [16] MACHADO, K. D. *Teoria do Eletromagnetismo*. Paraná: Ponta Grossa: Editora UEPG.
- [17] R.A.COWLEY et al. *J.Phys.: Condens. Matter*, v. 10, p. 2115, 1998.
- [18] M.A.RUDERMAN; C.KITTEL. *Phys.Rev.*, v. 96, p. 99, 1954.
- [19] T.KASUYA. *Prog.Theor.Phys*, v. 16, p. 45, 1956.
- [20] K.YOSIDA. *Phys.Rev.*, v. 106, p. 893, 1957.
- [21] SALGADO, A. paula. *Avaliação da Resposta Dos Monitores de Área Para Nêutrons em Campo de Radiação Gerado Por Um Acelerador Clínico de 15MV*. Dissertação (Mestrado), Rio de Janeiro.
- [22] C.F.MAJKRZAK. *Physical Review B*, v. 221, p. 342–356, 1996.
- [23] O.HALPERN; M.JOHNSON, J. *Physical Review*, v. 52, p. 52, 1937.
- [24] C.STASSIS; H.WDECKMAN. *Physical Review B*, v. 12, p. 1887, 1975.
- [25] D.A.JEHAN et al. *Physical Review B*, v. 48, p. 5596, 1993.
- [26] G.P.FELCHER et al. *Phys. Rev. B*, v. 13, p. 3034, 1976.
- [27] M.J.PECHAN; C.STASIS. *J. Appl. Phys.*, v. 55, p. 1900, 1984.
- [28] R.A.COWLEY; J.JENSEN. *Journal of Physics: Condensed Matter*, v. 4, p. 9673, 1992.
- [29] D.A.JEHAN et al. *Europhys. Lett.*, v. 17, p. 553, 1992.
- [30] D.A.JEHAN et al. *Phys. Rev. B*, v. 48, p. 5594, 1993.
- [31] LEGVOLD, S. *Rare Earth Metals and Alloys*. Department of Physics Iowa State University Ames: North-Holland, 1980. (IA 50011, v. 1).
- [32] KOEHLER, W. et al. *Phys. Rev.*, v. 158, p. 450, 1967.

- [33] J.JENSEN. *Phys. Rev. B*, v. 54, p. 4021, 1996.
- [34] D.GIBBS et al. *Phys. Rev. Lett.*, v. 61, p. 1241, 1988.