ISSN 0029-3865

CBPF-NF-020/90

UM MODELO MAGNÉTICO SIMPLES PARA INTERMETÁLICOS DE TERRAS-RARAS: APLICAÇÃO AO $PrA\ell_2$ †

por

P.J. von RANKE*, L. PALERMO+ and X.A. da SILVA[1]

[1]Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas - CBPF/CNPq
Rua Dr. Xavier Sigaud, 150
22290 - Rio de Janeiro, RJ - Brasil

*Universidade do Estado do Rio de Janeiro (UERJ)
Rua São Francisco Xavier, 524
20550 - Rio de Janeiro, RJ - Brasil

+Universidade Federal Fluminense (UFF)
Outeiro de São João Batista s/n
24020 - Niterói, RJ - Brasil

†Aceito para apresentação na 42ª Reunião Anual da SBPC (1990); também para publicação na revista da SBPC.

RESUMO

É bem estabelecido que a interação entre os spins dos íons de terras-raras e o efeito do campo cristalino nos elétrons 4f dos íons de terras-raras são fatores determinantes no comportamento magnético desses sistemas. Nesse trabalho adotamos uma descrição simplificada do campo cristalino, levando em conta somente os dois primeiros níveis de energia. Trabalhando com as funções de onda desses níveis construímos um Hamiltoniano modelo e dele deduzimos uma equação de estado magnético. Faz-se uma aplicação ao caso do $PrA\ell_2$, partindo de dados experimentais de magnetização versus temperatura tirados da literatura; também é feita uma análise dos parâmetros do modelo no comportamento magnético do sistema a $T = 0$ K e $T = T_c$.

Palavras-chave: Magnetismo; Campo cristalino; Intermetálicos de terras-raras; $PrA\ell_2$.

INTRODUÇÃO

Na análise das propriedades magnéticas de intermetálicos de terras-raras, é usual se adotar um modelo onde se leva em conta:

1. o papel dos ions vizinhos ao ion de terra-rara, em particular sobre os elétrons 4f, o chamado efeito do campo cristalino. A descrição deste campo na literatura, é feita geralmente através dos operadores de Stevens com a usual notação de Lea-Leask-Wolf[1];
2. a interação entre os momentos magnéticos das terras-raras (interação de troca tipo Heisenberg).

A execução desse programa pode, por exemplo, ser encontrado na literatura para o $PrA\ell_2$ [2]. Nesse trabalho vamos simplificar a descrição do campo cristalino, levando em conta apenas os dois níveis de energia mais baixo do multipleto fundamental, isto é, vamos truncar a descrição do campo cristalino. Com as funções de onda que podem ser geradas a partir desses dois primeiros níveis reescreveremos a interação de troca (na aproximação de campo molecular) sob forma de matriz. O procedimento é ilustrado no caso do $PrA\ell_2$, para o qual se faz uma análise das propriedades magnéticas a $T=0$ e $T=T_c$. Na seção 2, se explicita o Hamiltoniano modelo e as equações de estado magnético em função dos parâmetros do modelo. Finalmente, na seção 3, é feita uma estimativa desses parâmetros no caso do $PrA\ell_2$.

2 HAMILTONIANO MODELO E EQUAÇÃO MAGNÉTICA DE ESTADO

O estudo dos efeitos do campo cristalino em intermetálicos de terras-raras tem sido realizado sistematicamente por vários autores[3,5,6]. No nosso caso, estamos particularmente interessados em intermetálicos de terras-raras contendo Pr, com estrutura cúbica, onde os estados fundamental e primeiro excitado são respectivamente singleto Γ_1 e tripleto Γ_4. Os autovalores associados a esses estados são:

$$\Gamma_1 \rightarrow |e_o\rangle = 0{,}4564|4\rangle + 0{,}7638|0\rangle + 0{,}4564|-4\rangle \tag{1.a}$$

$$|e_1\rangle = 0{,}3536|3\rangle - 0{,}9354|-1\rangle \tag{1.b}$$

$$\Gamma_4 \rightarrow |e_2\rangle = 0{,}3536|-3\rangle - 0{,}9354|1\rangle \tag{1.c}$$

$$|e_3\rangle = 0{,}7071|4\rangle + 0{,}0000|0\rangle - 0{,}7071|-4\rangle \tag{1.d}$$

Se nos restringirmos a esses dois níveis de energia, o Hamiltoniano do campo cristalino na base das funções de onda acima descritas é dado por

$$H_{CEF} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 \\ 0 & \Delta & 0 & 0 \\ 0 & 0 & \Delta & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \Delta \end{pmatrix} \tag{2}$$

onde Δ é a diferença de energia entre os estados singleto e tripleto. O termo de interação de troca na aproximação de campo molecular juntamente com a interação do campo magnético externo tem a forma

$$H_{exch} = -g\mu_b \vec{h}_i \cdot \vec{J} \tag{3}$$

onde

$$\mu_b\vec{h}_i = J_o\langle g\vec{J}\rangle + \mu_b\vec{h}_o \quad \text{e} \quad J_o = \frac{J(g-1)^2}{g^2} \tag{4}$$

Vamos exprimir (3) na forma matricial usando-se a base associada ao campo cristalino truncado, obtendo-se

$$H_{exch} = -\mu_b h_i \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & \alpha_o \\ 0 & \beta_o & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -\beta_o & 0 \\ \alpha_o & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{5}$$

onde $\mu_b h_i$ é dado pela eq. (4)

$$\alpha_o = \langle e_o|gJ^z|e_3\rangle = \langle e_3|gJ^z|e_o\rangle \ , \ \beta_o = \langle e_1|gJ^z|e_1\rangle = -\langle e_2|gJ^z|e_2\rangle \tag{6}$$

Levando em conta as relações (1) α_o e β_o valem respectivamente 2,05 e 0,4 para $g = 0,8$. Nesse trabalho, levando em conta o truncamento estes serão parâmetros livres. O nosso Hamiltoniano modelo é dado então por

$$H = H_{CEF} + H_{exch} \tag{7}$$

A partir de (7) obtemos os seguintes autovalores de energia:

$$E_o = \frac{\Delta}{2} - \frac{\sqrt{\Delta^2+4\alpha^2}}{2} \ ; \ E_1 = \Delta-\gamma \ ; \ E_2 = \Delta+\gamma \ ; \ E_3 = \frac{\Delta}{2} + \frac{\sqrt{\Delta^2+4\alpha^2}}{2} \tag{8}$$

e os respectivos momentos magnéticos $M_j = -\partial E_j/\partial h_i$ ($j=0,1,2$, e 3), onde $\alpha = \alpha_o\mu_b h_i$ e $\gamma = \beta_o\mu_b h_i$. Introduzindo os autovalores acima des critos na função de Boltzmann, obtém-se a expressão da magnetização espontânea contra temperatura dada por

$$\frac{M}{\mu_b} = \langle gJ^z \rangle = \frac{2\alpha_o^2 J_o \langle gJ^z \rangle}{PQ} \operatorname{sen} \frac{\beta}{2} Q + \beta_o e^{-\beta\Delta/2} \frac{\operatorname{senh} \beta\beta_o J_o \langle gJ^z \rangle}{P} \tag{9}$$

onde $\beta = 1/KT$, $Q = [\Delta^2 + 4\alpha_o^2 J_o \langle gJ^z \rangle^2]^{1/2}$ e $P = \cosh \frac{\beta}{2} Q + e^{-\beta\Delta/2} \cosh \beta\beta_o J_o \langle gJ^z \rangle$. Para $T = 0$ a eq. (9) se reduz a

$$\langle gJ^z \rangle = \frac{\sqrt{4\alpha_o^4 J_o^2 - \Delta^2}}{2\alpha_o J_o} \tag{10}$$

Para $T = T_c$ ($\langle gJ^z \rangle \to 0$) a eq. (9) resulta em

$$1 - \eta \left[\frac{\operatorname{senh} \Delta/2KT_c}{\cosh \Delta/2KT_c + e^{-\Delta/2KT_c}} \right] = 0 \tag{11}$$

onde η é o critério de ordem magnética dado por

$$\eta = 2\alpha_o^2 J_o / \Delta \tag{12}$$

Para $\eta < 1$, o sistema é paramagnético, para $\eta = 1$ obtemos o valor crítico da troca e finalmente se $\eta > 1$ o sistema apresenta ordem magnética. Usando-se este conjunto de equações vamos na próxima seção estimar o valor de alguns parâmetros do $PrA\ell_2$.

3 ESTIMATIVA DE PARÂMETROS PARA O $PrA\ell_2$ E COMENTÁRIOS

Medidas magnéticas do $PrA\ell_2$ tem sido feitas com regularidade ultimamente por vários autores, usando-se diferentes técnicas. Purwins et al.[6] mediu alguns pontos de magnetização espontânea contra temperatura do $PrA\ell_2$ na direção de fácil magnetização, entre eles $T_c = 33K$ e $2,88\mu_b$ a 4,2K. O valor de Δ que utilizaremos neste trabalho (3,30 meV), deve-se a Frauenheim et al.[2]. Substituindo-se estes valores simultaneamente nas eqs. (10) e (11) obtemos: $\alpha_o = 3,08$ e $J_o = 0,49$ meV. Usando mais um ponto da curva experimental de magnetização espontânea contra temperatura[6] (por exemplo $1,6\mu_b$ a 30K) obtém-se através da eq. (9), $\beta_o = 0,6$. Colocando-se os parâmetros adequados na eq. (12) obtemos $\eta = 2,28$. Este valor nos mostra que o $PrA\ell_2$ apresenta uma ordem magnética, onde o valor da troca é bem maior do que o seu valor crítico (0,17 meV). Uma das vantagens do método de truncamento é a simplificação do modelo, o que permite obter relações simples, por exemplo as equações (10) e (11), que permitem uma compreensão do papel dos parâmetros (Δ, J_o, α_o) no comportamento magnético (T_c e $\langle gJ^z \rangle$) do sistema.

REFERÊNCIAS

1. K.R. Lea, M.J. Leask e W.P. Wolf. The Raising of Angular Momentum Degeneracy of f-Electron Terms by Cubic Crystal Field. J. Phys. Chem. Solids, vol. 23, p. 1381-1405 (1962).

2. Th. Frauenheim, W. Matz e G. Feller. Crystal Field Effects in $PrA\ell_2$. Solid State Communications, vol. 29, p. 805-809 (1979).

3. W.E. Wallace. Rare Earth Intermetallics. Pergamon Press, cap. 3, p. 13-29 (1976).

4. P. Fulde e M. Loewenhaupt. Advances in Physics, vol. 34, nº 5, p. 589-661 (1986).

5. H.R. Kirchmayr. Physics of Magnetic Materials. Congresso de Jadwis de 1984, vol. III, World Scientific, Singapore, p. 626-659 (1985).

6. H.G. Purwins, E. Walker, B. Barbara, M.F. Rossignal e P. Bak. Magnetization, Magnetocrystalline anisotropy and the crystalline electric field in (rare earth) $A\ell_2$ compounds. J. Phys. C: Solid State Phys., vol. 7, p. 3573-3582 (1974).