

ESTUDO DA CONTRIBUIÇÃO MAGNETOELÁSTICA PARA AS
CONSTANTES ELÁSTICAS DO HOLMIO

SERGIO GAMA

ORIENTADOR

PROF. DR. DALTRO GARCIA PINATTI

TESE APRESENTADA AO
INSTITUTO DE FÍSICA "GLEB WATAGHIN"
PARA A OBTENÇÃO DO TÍTULO DE MESTRE
EM CIÊNCIAS.

JULHO, 1975

Ao

Prof. Dr. Mário Tourasse Teixeira

A G R A D E C I M E N T O S

Ao Prof. Dr. Daltro Garcia Pinatti pela sugestão do assunto de tese e pela orientação recebida.

Ao Prof. Dr. Paul Leighton Donoho pelas valiosas discussões e sugestões recebidas.

Ao Prof. Dr. Claudio Santos pela valiosa ajuda no dia a dia do laboratório.

Ao Billy M. Kale, também pela ajuda no dia a dia do laboratório.

Aos técnicos Carlos P. Pinelli e Eugênio F. Dainesi pela colaboração na parte técnica.

Ao CNPq, o apoio financeiro recebido.

A todos que, direta ou indiretamente, tornaram possível o término desse trabalho.

Em particular, à Luci, pela compreensão.

ÍNDICE

	PAG.
CAPÍTULO I - INTRODUÇÃO E OBJETIVO	1
Objetivo	1
Holmio - Comportamento Magnético	1
Métodos de Superposição de Ecos	4
CAPÍTULO II - AMOSTRA E APARATO EXPERIMENTAL	5
Amostra	5
Aparato Experimental - Ultrasom	5
Suporte de Amostra	9
Sistema Criogênico	11
Sistema Magnético	12
CAPÍTULO III - PROCEDIMENTO E APRESENTAÇÃO DOS DADOS	13
Procedimento	13
Dados Obtidos	15
CAPÍTULO IV - TEORIA	17
Introdução	17
Descrição da Hamiltoniana com o Tensor de Deformação Infinitesimal	17
Descrição da Hamiltoniana com o Tensor de Deformação Finita	23
Cálculo de ΔC_{22} e ΔC_{33}	24

Cálculo das Constantes Magnetoelásticas a par- tir da experiência	27
Cálculo da Magnetoestrição	29

CONCLUSÃO	34
-----------------	----

BIBLIOGRAFIA	36
--------------------	----

OBJETIVO

A finalidade do presente trabalho é estudar a contribuição magnetoelástica para as constantes elásticas C_{22} e C_{33} do elemento Holmio na fase paramagnética. Os resultados experimentais serão comparados com os resultados teóricos obtidos por Southern & Goodings⁽¹⁾ e a dependência com a temperatura de combinações das constantes magnetoelásticas será determinada dos dados experimentais. Calcularemos também as magnetoestrições de equilíbrio e compara-la-emos com dados experimentais de Rhyne & al⁽²⁾.

HOLMIO - COMPORTAMENTO MAGNÉTICO

As terras raras caracterizam-se por terem incompleta a camada 4f enquanto as camadas 5s e 5p estão completas e a camada 5d possui um elétron e a 6s dois. A configuração eletrônica do átomo neutro do elemento Holmio é $Pd\ 4f^{10}5s^25p^65d^16s^2$. Quando em forma cristalina, o átomo perde 3 elétrons para a banda de condução, ficando com a configuração $Pd\ 4f^{10}5s^25p^6$ (3). Os elétrons restantes, tendo raio médio maior que os elétrons 4f, tendem a blindar esses elétrons do exterior, principalmente do campo cristalino, o que quer dizer que a perturbação do campo cristalino é pequena, menor que a interação spin-órbita, ou seja, cada íon pode ser caracterizado por seus números quânticos L, S e J. Usando as regras de Hund, o estado fundamental do Holmio é 5I_8 , que corresponde a 10 magnetons de Bohr por íon. A magnetização de saturação experimental concorda bem com esse valor, dando $10,34 \pm 0,10$ magnetons de Bohr por íon⁽⁴⁾. Estudos de momentum magnético⁽⁴⁾ e de difração de neutrons⁽⁵⁾ estabeleceram que o metal é paramagnético acima de 1329K, e tem uma fase antiferromagnética espiral de 1329K até 209K. Os momentos são constrangidos ao plano basal por uma grande anisotropia axial. O ângulo entre spins em camadas

adjacentes varia linearmente com a temperatura de 500 a 1320K até 300 a 200K e permanece essencialmente constante abaixo de 200K⁽⁵⁾. A essa temperatura um aumento nos termos de quarta e sexta ordem da energia de anisotropia produz uma transição para um ferromagneto cônico de ângulo médio de 80°, medido do eixo c. Momenta alternados têm posições dentro e fora da superfície desse cone. Abaixo de 750K, o plano basal é anisotrópico com o eixo b como eixo de fácil magnetização.

Na região espiral, campos magnéticos acima de um valor crítico aplicados no plano basal produzem arranjo em leque cônico dos momenta magnéticos ao redor da direção do campo, e campos maiores produzem colapso total do estado periódico para alinhamento ferromagnético ao longo do campo. A temperaturas mais baixas, estados periódicos intermediários são estáveis em intervalos particulares do campo aplicado⁽⁵⁾.

Dados sobre a susceptibilidade paramagnética mostram comportamento descrito pela lei de Curie-Weiss com $\theta_{||} = 730\text{K}$ e $\theta_{\perp} = 880\text{K}$.

Para este trabalho, mais significativo é o fato de que os spins dos elétrons magnéticos podem interagir com deformações da rede cristalina. Exemplos desse efeito são a magnetoestrição gigante das terras raras, Holmio em particular, que chega a ser ordens de grandeza maior que a magnetoestrição dos metais do grupo do Ferro⁽²⁾, e o comportamento anômalo das constantes elásticas. No Holmio, a constante C_{33} apresenta um pico pronunciado na temperatura de Neel⁽⁶⁾, ao passo que C_{11} apresenta uma mudança de inclinação nessa temperatura⁽⁶⁾. Não se dispõe de dados sobre o comportamento dessas constantes próximo à temperatura de Curie, mas, por analogia com outras terras raras (ex. Dy, Tb), é de se esperar anomalias no comportamento das constantes elásticas do Holmio nessa temperatura também.

Medidas de difração de neutrons feitas por Koehler & al⁽⁵⁾ mostram que o Holmio conserva a estrutura hexago-

nal até temperaturas do hélio líquido. Suas constantes elásticas independentes são C_{22} , C_{33} , C_{44} , C_{12} , e C_{13} .

Nosso trabalho investiga outro aspecto das interações magnetelásticas, qual seja a dependência das constantes C_{22} e C_{33} na direção e magnitude do campo magnético aplicado, na região paramagnética do material. Ambas as constantes podem ser obtidas da relação $C = \rho v^2$, onde ρ é a densidade do material e v é a velocidade de propagação de uma onda acústica longitudinal propagando-se perpendicular ou paralelamente ao eixo c , respectivamente.

Southern & Goodings⁽¹⁾ propuzeram uma teoria para explicar a contribuição magnetoelástica para as constantes elásticas na qual, ao exigir que a hamiltoniana fôsse rotacionalmente invariante e usando o tensor de deformação finita, obtiveram termos quadráticos no tensor de deformação infinitesimal que provêem essas contribuições. As expressões obtidas por eles são da forma:

$$\Delta C_{22} = - \{A(3\cos^2\theta - 1) - B\sin^2\theta \cos 2\phi + C\} \sigma^2$$

$$\Delta C_{33} = - \{D(3\cos^2\theta - 1) + E\} \sigma^2$$

onde A , B , C , D e E são combinações de constantes de acoplamento magnetoelástico de um ion e de dois ions e $\sigma = \frac{\chi(T)H}{M_0}$ é a magnetização reduzida. $\chi(T)$ é a susceptibilidade direcional, e M_0 é a magnetização de saturação.

O valor das constantes acima é desconhecido, e um dos propósitos deste trabalho é sua determinação experimental. Supondo todas as demais quantidades na equação conhecidas, é preciso dispor de cinco equações independentes, para uma dada temperatura, para determinar essas constantes. Essas equações podem ser obtidas das cinco configurações experimentais: medimos ΔC_{33} para campo magnético ao longo dos eixos c e a ; medimos ΔC_{22} para campo magnético ao longo dos eixos a , b , c . Então, se para cada

temperatura, medimos o coeficiente angular $\Delta C/\sigma^2$, podemos obter os valores dessas constantes.

O procedimento usual para medir constantes elásticas é medir a velocidade de uma onda acústica e usar a relação $C = \rho v^2$ para determinar C . Não levando em conta a magnetoestrição, temos que $\frac{\Delta C}{\sigma^2} = \frac{C(T)}{\sigma^2} \frac{\Delta v(T)}{v}$. Como $C_{22}(T)$ e $C_{33}(T)$ são conhecidas,⁽⁶⁾ resta determinar $\Delta v/v$. Fazemo-lo pelo método de superposição de ecos⁽⁷⁾, que permite determinação bastante precisa dessa grandeza.

MÉTODO DE SUPERPOSIÇÃO DE ECOS

O método de superposição de ecos para o obtenção de velocidades e variações de velocidades das ondas elásticas corresponde a medir o tempo entre ecos originados de pulsos de RF acoplados à amostra por um transdutor piezoelétrico. Usualmente, longos pulsos de RF são aplicados ao transdutor e os ecos são observados pelo mesmo transdutor. Então o atraso de fase na ida e volta é o tempo entre um certo ciclo de um eco e o ciclo apropriado do próximo eco. Em geral, é necessário algum método envolvendo superposição ciclo por ciclo de um eco com outro eco sucessivo para medir esse tempo. Usamos o método de superposição de ecos desenvolvido por Papadakis⁽⁷⁾, que se caracteriza por ter a razão de repetição do gerador de RF suficientemente baixa para que todos os ecos de um pulso sejam amortecidos antes do novo pulso. A superposição é feita opticamente num osciloscópio, disparando o eixo x desse osciloscópio numa frequência igual ao recíproco do tempo de ida e volta entre o par de ecos sendo observado, ou a uma frequência múltipla desta. O par de ecos a ser observado é intensificado por sinais aplicados ao catodo do tubo CR0 (eixo z). Assim, o tempo de atraso entre quaisquer par de ecos pode ser medido separadamente. A precisão absoluta do método pode ser tão alta quanto duas partes em 10^4 e pode ter sensibilidade de duas partes em 10^6 .

AMOSTRA E APARATO EXPERIMENTAL

AMOSTRA

Foi usada uma amostra monocristalina de Holmio cortada dum cristal maior adquirido à Metals Research. O cristal foi crescido pelo método de zona flutuante aquecida por indução, e os cristais fornecidos tinham forma cilíndrica e dimensões de 20 a 30 mm de comprimento e 5 a 6 mm de diâmetro. A amostra usada foi cortada do cristal original pelo processo de faísca. Os eixos cristalinicos foram identificados através de diagramas de retro-reflexão de Laue, e faces perpendiculares aos eixos b e c foram cortadas e polidas também pelo processo de faísca. A orientação das faces relativas aos eixos foi monitorada por retro-reflexão de Laue, e o máximo desvio angular da posição correta é $\pm 1^\circ$. As faces foram determinadas serem paralelas dentro de $3'$ a $5'$ e, embora não tenha havido nenhuma determinação da curvatura da superfície, a experiência mostra que elas são satisfatoriamente planas para trabalhar com ultrassom.

APARATO EXPERIMENTAL

O aparato experimental constou da aparelhagem para produção e recepção de ultrassom, dos suportes de amostra, do sistema criogênico e do magneto para produção do campo magnético. Descreveremos superficialmente cada um desses itens:

1) Ultrassom.: Faremos primeiro uma descrição dos aparelhos que compõem o sistema de geração-recepção de ultrassom, e depois, um esquema de funcionamento. O sistema consiste dos seguintes aparelhos:

a) Oscilador Contínuo (gerador de funções): usamos o modelo FG 501 da Tektronix, que fornece formas de onda senoidal, triangular, pulsos e rampa, com baixa distorção, desde 0,001 Hz até 1 MHz. A característica importante para o nosso trabalho é a possibilidade

de controlar a frequência por voltagem (VCF). A frequência pode variar de um máximo de 1000:1 acima e abaixo da frequência escolhida.

b) Contador de Frequência: usamos o modelo DC-501 da Tektronix, capaz de medir frequências de 10 Hz a 100 MHz. A contagem é dada visualmente através de diodos emissores de luz. A resolução do aparelho, usando o intervalo de medida de 1 segundo, é de 1 Hz.

c) Fonte de Voltagem: É o modelo PS-501 da Tektronix, fornecendo tensão variável continuamente de 0 a 20 V DC, para o VCF do item a. A fonte tem os dois terminais flutuando, podendo-se aterrar qualquer deles.

Esses três aparelhos são acoplados e alimentados por um módulo especial, o modelo TM-503 da Tektronix.

d) Osciloscópio: Usamos o modelo 465 da Tektronix, com capacidade de realizar medidas precisas de altas frequências. Possui dois canais com sistema de deflexão vertical operando de DC a 100 MHz; o sistema horizontal de deflexão tem razão de varredura de 0,5 seg a 0,05 μ seg/div, com um ampliador que multiplica essa razão de varredura por 10, dando uma razão de varredura máxima de 5 nanoseg/div.

e) Transdutores: usamos cristais de quartzo cortados na direção X, de polimento fino, mas não óptico, fornecendo ondas longitudinais de 20 MHz. Os cristais tinham 1/8" de diâmetro e foram adquiridos de Valpey-Fischer Corp.

f) Divisor de Décadas e Gerador de Atrazo: é o modelo 122-A da Matec Inc. Tem duas funções básicas: - é a ponte de ligação entre o gerador de onda contínua (que está operando à frequência cujo período é igual ao tempo de ida e volta do som na amostra) e o gerador-receptor de ultrassom.

- fornece os disparos exigidos para intensificar a apresentação dos ecos superpostos no osciloscópio. Os seus divisores e amplificadores de entrada, que são pares de transistores NPN e PNP, produzem uma saída positiva

de toda frente de onda senoidal positiva, que é usada para disparar o primeiro divisor (que é o modelo Motorola MC 838P) e também o eixo x do osciloscópio. Os três divisores estão em série, obtendo-se sinais divididos por 10, 100, e 1000. Esta saída é usada para disparar o oscilador pulsado no item a seguir, e também o primeiro gerador de atraso. A saída dos geradores é amplificada para produzir ondas quadradas positivas e negativas para modularem o eixo z do osciloscópio. A unidade permite também o controle da largura desses pulsos. Os geradores de atraso são convencionais, podendo-se obter qualquer atraso entre 2 e 1000 μ seg.

g) Gerador-receptor de ultrasom: usamos o modelo 6000 da Matec Inc. Usado em conjunção com um plug-in de rádio frequência da mesma companhia, é um gerador-receptor de pulsos de RF feito especialmente para induzir ao transdutor formas de onda e prover amplificação aos ecos recebidos. A unidade caracteriza-se por permitir variar continuamente a largura e a amplitude do pulso, por ter banda larga e receptor de grande intervalo de linearidade dinâmica. Um oscilador interno (que é um transistor unijunção de relaxação) fornece uma fonte de pulsos variável de 5 a 500 pulsos por segundo. Essa fonte pode ser desacoplada do sistema através duma chave externa para permitir o acoplamento de uma fonte externa (no nosso caso, a fonte externa é fornecida pelo item anterior), operando de 0 a mais de 1000 pulsos por seg. O modulador, que ativa ou desativa o oscilador de RF no item a seguir, contém um conjunto de chaves transistoras PNP de alta voltagem operando entre -120 e 600 V DC. Um sinal onda quadrada positiva proveniente do gerador de largura ativa um amplificador NPN que leva o conjunto de transistores PNP em saturação para resultar uma onda quadrada positiva de 700 V através dum potenciômetro, que é usado como controle de amplitude. Esse pulso de alta voltagem é levado, no plug-in, à placa dum triodo oscilador através dum tubo modulador acoplado por transformador. Um amplificador de frequência intermediária (FI) de 60 MHz, de alto ganho, provê o meio

de amplificação altamente linearizado da unidade. Além do alto grau de linearização, o amplificador FI dá também uma frequência central muito estável e largura de banda constante sobre todo o alcance do controle de ganho do receptor.

h) Plug-in de Rádio Frequência: é o modelo 760V da Matec Inc. Ele fornece uma fonte pulsada de alto nível de RF (até 1kW com o modelo 6000 descrito acima) e um receptor sintonizável de alta sensibilidade cobrindo o intervalo de 10 a 90 MHz. O ganho total é de 110 dB e ele provê os ecos amplificados para medidas de velocidade ultrasônica. O plug-in foi feito para aceitar pulsos programáveis do aparelho em que é encaixado, permitindo operação com pulsos duplos ou pulsos múltiplos de RF, ou pulsos com longa duração (5 a 100 μ seg) e com razão de repetição de 100 pulsos/seg, que é a característica que nos interessa. A unidade torna possível observar os ecos de RF amplificados, por meio dum osciloscópio de banda larga, antes que eles sejam convertidos à frequência intermediária de 60 MHz do receptor superheteródino no item anterior. Aproximadamente 12 dB de amplificação é dada pelo pré-amplificador sintonizado e mais ou menos 20 dB de amplificação com o estágio RF de banda larga. Somente os ecos de RF que são trazidos à unidade passam por esse estágio de amplificação. Vários filtros passa-baixa são incorporados à unidade com o intuito de separar o sinal do oscilador local que está presente no receptor superheteródino de aparecer com os ecos amplificados. Um filtro passa-baixa foi permanentemente instalado na entrada do amplificador de banda larga, e foi regulado pela fábrica para atenuar severamente todos os sinais acima de 90 MHz. Dois outros filtros são fornecidos para instalação em série com o cabo coaxial que acopla os ecos de RF amplificados com o osciloscópio. Esse cabo coaxial deve ser terminado em 50 Ω para evitar reflexões que podem conduzir a medidas erradas em algumas frequências. Com esses filtros, o sinal do oscilador é reduzido ao nível do ruído, tipicamente da ordem de 2 mV.

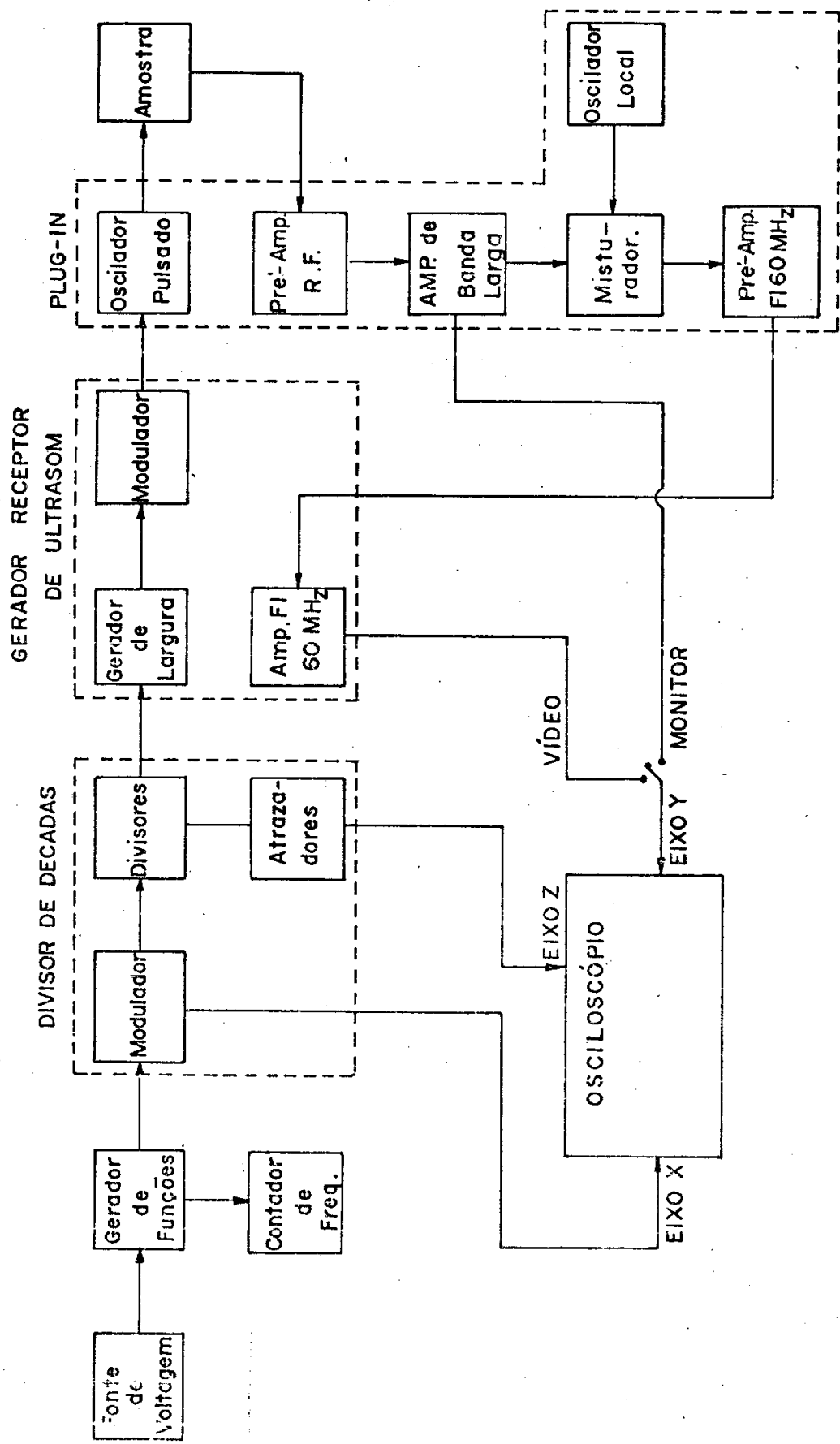


Fig. 1 – Diagrama do Sistema de Ultrasom.

Para explicar o funcionamento do equipamento de ultrassom, devemos nos reportar ao diagrama da figura 1. A função de onda gerada pelo oscilador (senoidal, por exemplo) é transformada em onda quadrada pelo modulador, que dispara simultaneamente os divisores e os atrasadores e o eixo x do osciloscópio. A onda dos atrasadores dispara o eixo z do osciloscópio. A onda dos divisores tem a frequência dividida pelo fator desejado, entra no gerador de largura onde é ampliada e transformada em onda da largura desejada, entra no modulador que a transforma em onda de rápido decaimento para controlar a grade do oscilador de RF. O sinal resultante, que é um pulso de RF de alta voltagem, é aplicado à amostra. Os ecos captados pelo transdutor são levados a um pré-amplificador de RF e depois ao segundo estágio de amplificação RF, o amplificador de banda larga. Esse amplificador provê uma saída, o monitor, que nos permite obter os ecos na tela do osciloscópio, e que nos permite realizar a superposição. A outra saída desse amplificador entra num diodo misturador, onde é somado à frequência de 60 Mhz. A saída do misturador entra no pré-amplificador de FI e depois, no amplificador FI de 60 MHz. A saída desse último estágio provê a saída video, que é usada preliminarmente para se obter uma medida aproximada da frequência em que os ecos vão se superpor. A saída do amplificador de banda larga e a saída do amplificador de FI são conectadas no eixo y do osciloscópio. Esse arranjo é o que nos permite superpor os ecos e determinar o tempo de atraso entre um eco e outro através da leitura da frequência do oscilador contínuo em que se verifica a superposição.

2) Suportes de Amostra: Usamos dois tipos de suporte de amostra, um para ondas se propagando perpendicularmente ao campo e outro para ondas se propagando paralelamente ao campo. O esquema do primeiro tipo é dado na figura 2. O sinal de RF chega ao suporte através do suporte central, transformado em

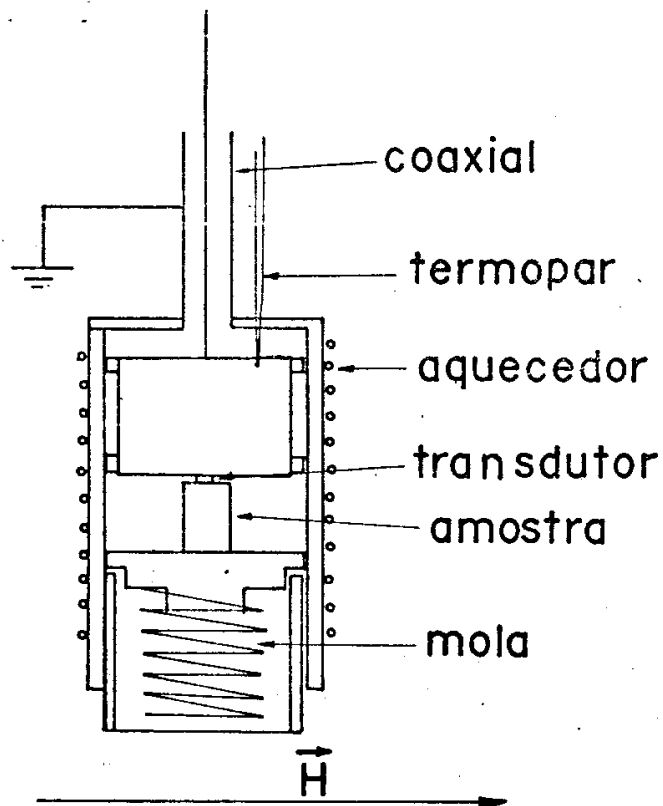


Fig. 2 - Suporte de Amostra p/ Campo
na Direção das Ondas .

cabo coaxial. A parte externa do suporte é aterrada. A parte inferior interna, que é a peça que pressiona a amostra, está em contacto com a carcaça e portanto, tal como a amostra, está aterrada. A peça interior superior é a que está conectada ao fio central, o que quer dizer que o capacitor que induz ao transdutor o sinal elétrico é formado por essa peça e a amostra. No exterior do suporte está enrolada uma resistência elétrica aquecedora e na peça interior superior é colocada a ponta de um termopar cobre-constantan para monitorar ou controlar a temperatura. A peça interior superior é eletricamente isolada da carcaça por anéis de teflon, o que ocasiona um certo isolamento térmico. O contacto térmico entre essa peça e a carcaça dá-se através de condução por gás e através da peça inferior, amostra e transdutor. É de se esperar que haja um pequeno gradiente térmico se se faz as medidas de velocidade sem se esperar o tempo suficiente para todo o sistema chegar ao equilíbrio, tempo que pode ser muito longo. Nas nossas medidas desse gradiente térmico, realizadas após o término das medidas de ultrasom, através da colocação de outro termopar na parte inferior interna, encontramos uma diferença de temperatura de 29K entre a parte inferior e a superior internas, a 2409K, após 20 minutos de estabilização. Foi observado que quanto menor o tempo de estabilização, maior a diferença na temperatura das duas peças. Por exemplo, a 1889K, com 8 minutos de estabilização, a diferença era de 49K. Como o tempo médio de estabilização de temperatura antes de cada medida foi de 30 minutos, achamos razoável tomar a temperatura lida na parte interna superior como a temperatura da amostra.

O esquema do segundo tipo de suporte de amostra é dado na figura 3. O sinal de RF chega através do suporte central transformado em cabo coaxial, com a parte superior do suporte, e portanto, a amostra, aterrada. A parte superior do suporte está eletricamente isolada da parte inferior por um pedaço de teflon.

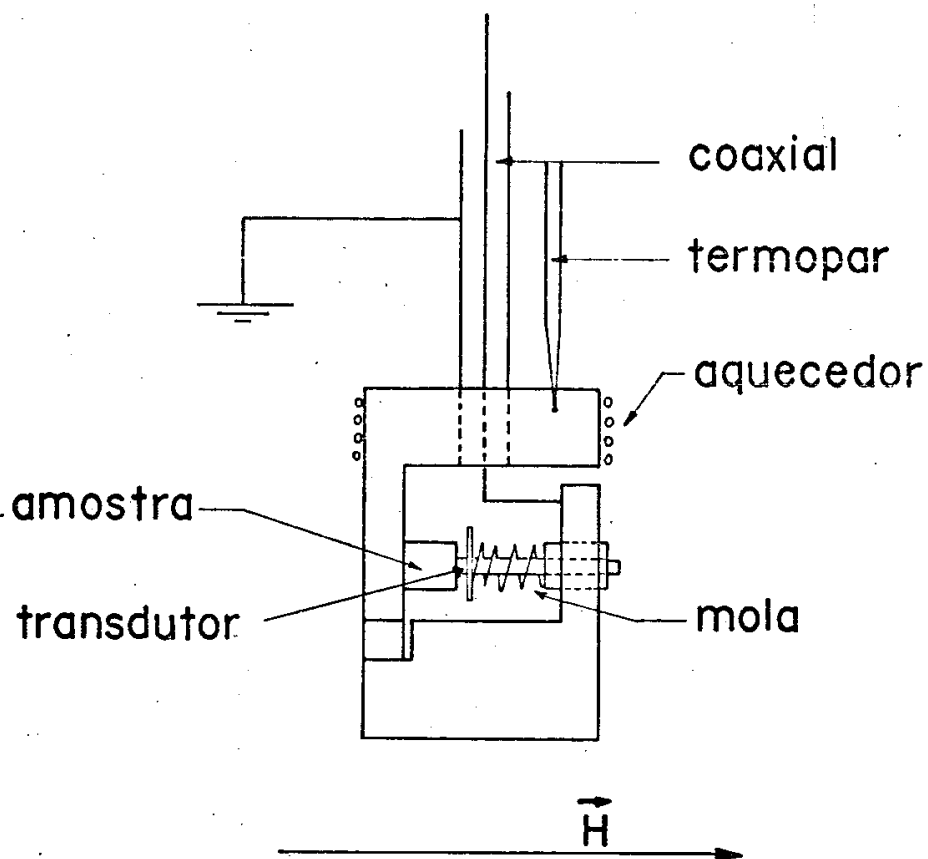


Fig.3 – Suporte de Amostra p/ Campo na Direção das Ondas .

O fio central está conectado à parte inferior do suporte. Na parede vertical desta parte está um parafuso que serve de guia para um pequeno pistão, cuja função é pressionar o transdutor e segurar a amostra, além de servir de segunda placa do capacitor que vai induzir ondas mecânicas no transdutor. Na parte superior está enrolada uma resistência aquecedora usada para aquecer o conjunto. Uma das pontas de um termopar de cobre-constantan é colocada nessa peça para monitorar ou controlar a temperatura. Como no suporte anterior, aqui também é de se esperar um gradiente de temperatura entre a parte superior e a inferior. Realizamos medidas desse gradiente após o término das medidas de ultrassom. Como exemplo, citamos que a 2190K, após 10 minutos de estabilização, a diferença de temperatura entre a parte superior e a inferior era 20K; a 1560K, após 20 minutos, a diferença era de 10K. Como o tempo médio de estabilização foi de 30 minutos, achamos razoável tomar a temperatura da amostra como sendo a da peça superior. É preciso dizer que esse segundo suporte, por ter muito menor massa que o anterior, era menos estável quanto à temperatura.

3) Sistema Criogênico: consistiu no sistema criogênico propriamente dito mais o equipamento usado para controlar a temperatura.

a) sistema criogênico: usamos um dewar de aço inoxidável construído no próprio laboratório. É um dewar do tipo temperatura variável usando o método de fluxo de gás. Uma descrição esquemática, correspondendo à figura 4, é a seguinte: o dewar possui três câmaras - a primeira, mais externa, é a que recebe nitrogênio líquido para resfriamento inicial do sistema e que funciona como blindagem térmica para a segunda câmara, que é a câmara de hélio líquido. Essa câmara recebeu nitrogênio líquido no nosso trabalho, pois só trabalhamos acima de 1300K. Nela existe uma válvula agulha que liga-a à terceira câmara, ou câmara de amostra. Todas essas câmaras estão isoladas entre si e do exterior por alto vácuo fornecido pela primeira estação de vácuo. A câmara de amostra foi

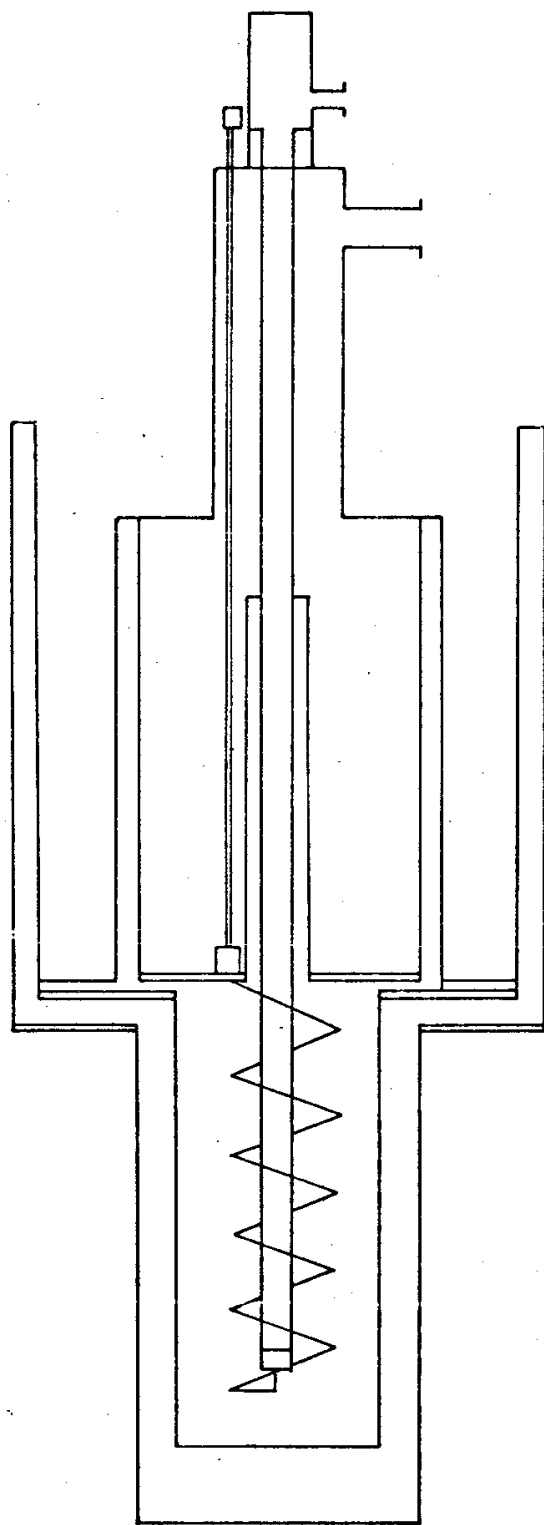


Fig.4-Dewar Controlador de Temperatura .

ligada à segunda estação de vácuo, pois trabalhamos com essa câmara parcialmente evacuada. No fundo dessa câmara, onde o tubo capilar proveniente da segunda câmara termina, há uma peça de cobre na qual é enrolada uma resistência aquecedora e cuja função é servir de difusora de calor, para vaporizar o nitrogênio líquido da segunda câmara já numa temperatura próxima à de trabalho; o nitrogênio líquido é forçado a passar pelo tubo capilar por diferença de pressão entre as duas câmaras.

b) Como não dispunhamos de um controlador de temperatura, tivemos que operar o sistema alimentando as resistências aquecedoras dos suportes de amostra usando uma fonte de corrente e voltagem da Philips, modelo PE-1512. Só fizemos uso do fluxo de gás esporadicamente, para resfriar mais rapidamente o suporte de amostra.

4) Sistema Magnético: usamos um magneto convencional da Varian, modelo V-39XX, alimentado pela fonte de potência modelo V-FR2703, que, com a separação dos polos permitida pelo rabo do dewar, alcançava campo de 20,8 kG. O campo foi medido por uma ponta de Hall fornecida pela fábrica.

PROCEDIMENTO E APRESENTAÇÃO DOS DADOS

a) Procedimento: A parte mais delicada da rotina de retirada de dados é o acoplamento transdutor amostra. Esse acoplamento foi feito inicialmente usando uma suspensão orgânica chamada Nonaq, que apresentou bons resultados a temperaturas altas, mas que a temperaturas próximas de 1300K deixou de funcionar algumas vezes. Foi tentado a seguir uma graxa hidrocarbonada da LaMont, que também apresentou falhas a baixas temperaturas. A alternativa encontrada foi usar araldite de secagem rápida, que se mostrou satisfatória durante toda a experiência. O procedimento de acoplar o transdutor era o seguinte: limpava-se a amostra e o transdutor com acetona e depois com álcool, preparava-se a araldite e colocava-se uma gotícula na superfície da amostra. Colocava-se então o transdutor e pressionava-se-o de modo a araldite molhar todo o transdutor, tomando-se o cuidado de dimensionar a quantidade de araldite de modo a não sobrar no lado do transdutor. Em seguida, testava-se a ligação; se o resultado fôsse satisfatório, deixava-se a amostra com um pequeno pêso em cima do transdutor até a secagem da araldite. Meia hora era tempo suficiente para isso. Se o resultado não fôsse satisfatório, limpava-se a amostra e transdutor com clorofórmio, que é um solvente de araldite, e se repetia o procedimento até conseguir um bom acoplamento. Feito isso, a amostra era colocada num dos suportes de amostra. Ambos os suportes demandavam o ajuste manual de suas peças de modo a se conseguir que as faces que pressionavam a amostra e transdutor fossem paralelas. Caso isso não ocorresse, o padrão de ecos apresentava forte modulação superposta ao padrão de decaimento exponencial normal. Acertado o acoplamento amostra-transdutor e o alinhamento das faces no suporte da amostra, era esse

conjunto colocado no dewar.

A preparação do dewar tinha a seguinte rotina: evacuação da jaqueta de nitrogênio líquido pela primeira estação de vácuo, colocação de nitrogênio líquido na primeira e segunda câmaras e então deixava-se mais ou menos 24 horas para resfriamento do sistema. Atingida essa etapa, estávamos prontos para a retirada de dados. Escolhida uma temperatura de trabalho, a terceira câmara, a da amostra, era evacuada até 20 ou 30 cm de Hg. A razão para isso era evitar excessivas correntes de convecção. Então, através de uma fonte Philips, modelo PE-1512, passávamos uma corrente de alguns miliampêres na resistência aquecedora, simultaneamente observando a temperatura do suporte através do termopar com um multímetro da Keithley e um registrador Philips modelo PM-8100 em paralelo com o multímetro. Quando a temperatura chegava próxima à de trabalho, diminuamos a corrente de modo a diminuir a razão de aumento da temperatura. Se o decréscimo de corrente era muito, e a temperatura não só parava de aumentar, como começava a diminuir, aumentávamos um pouco a corrente de modo a corrigir essa tendência. Assim, tentávamos estabilizar manualmente a temperatura, utilizando-se do gráfico de temperatura que o registrador fornecia continuamente. O processo foi demorado no começo do trabalho, mas com a prática esse tempo diminuiu consideravelmente. Em condições normais, após atingir uma temperatura na vizinhança da temperatura desejada, era preciso esperar 30 a 40 minutos para atingir a estabilização, e durante toda a medida era preciso estar observando o gráfico para prevenir qualquer desvio considerável da temperatura desejada. Com esse processo, todavia, conseguimos colocar a temperatura a menos de 0,59K da temperatura desejada, e a estabilização era tal que os desvios máximos durante todo o tempo de medida foram da ordem de 0,19K.

Estabilizada a temperatura, mediamos a fre-

quência em que os ecos se superpunham, com campo magnético zero e depois, repetíamos a medida para outros valores de campo. Para cada temperatura, usávamos campos de 9.0 , 13.0 , 15.5 , 18.0 , e 20.0 kG, sequência que dá uma escala aproximadamente linear em H^2 . Variamos a temperatura de 1300K a 1900K. Como para algumas orientações de campo e onda as variações $\Delta f/f$ foram muito pequenas, não incluímos todas as temperaturas nos dados.

b) Dados Obtidos: Como precisávamos de 5 equações para determinar as constantes magnetoelásticas (ver próximo capítulo), precisávamos determinar as variações magnetoelásticas das constantes elásticas para cinco configurações diferentes de campo e propagação de ondas. As configurações que usamos foram:

- a) ondas no eixo b, campo no eixo a
- b) ondas no eixo b, campo no eixo b
- c) ondas no eixo b, campo no eixo c
- d) ondas no eixo c, campo no eixo b
- e) ondas no eixo c, campo no eixo c.

Como a velocidade v da onda está relacionada com a frequência medida pela relação $v = 2\ell f$, e $\Delta v/v = \Delta f/f$, medimos $\Delta f/f$ em função do campo magnético ao quadrado. Os dados iniciais são apresentados como gráficos de $\Delta f/f \times H^2$ nas figuras 5, 6, 7, 8 e 9. Durante a retirada de dados, evidenciou-se que as variações $\Delta f/f$ para ondas em b, campo no eixo a, eram menores que as variações $\Delta f/f$ para ondas em b, campo em c, embora se esperasse o contrário. Para retirar qualquer dúvida a respeito da rotulação dos eixos cristalinos, fizemos uma determinação de $\Delta f/f$, entre campo zero e campo de 20 kG, em função do ângulo entre a direção do campo e os eixos cristalinos. Obtivemos o gráfico 10, que confirma nossas primeiras medidas. Para o trabalho de análise dos dados, é preciso obter os $\Delta f/f$ em função da magnetização, ao invés de em função do campo aplicado. Na região paramagnética, o Holmio apresenta um comportamento que é descrito muito bem pela lei de Curie-

Weiss⁽⁴⁾ com $\Theta_{\parallel} = 739\text{K}$ e $\Theta_{\perp} = 889\text{K}$. Do trabalho acima⁽⁴⁾, podemos calcular que a constante C da lei de Curie-Weiss tem valor $C = 9,268 \cdot 10^{-2} \text{OK}$, da qual podemos obter uma tabela das susceptibilidades $\chi_{\parallel}$ e $\chi_{\perp}$ em função da temperatura (tabela 1). Com esses valores da susceptibilidade, e o valor da magnetização de saturação⁽⁴⁾, $M_0 = 350,2 \text{ emu/g}$, obtemos $\sigma_{\parallel}^2$ e $\sigma_{\perp}^2$ dados na tabela 2 em função do campo e da temperatura. Esses dados serão corrigidos para magnetoestrição, e analisados à luz da teoria de Southern & Goodings⁽¹⁾ no próximo capítulo.

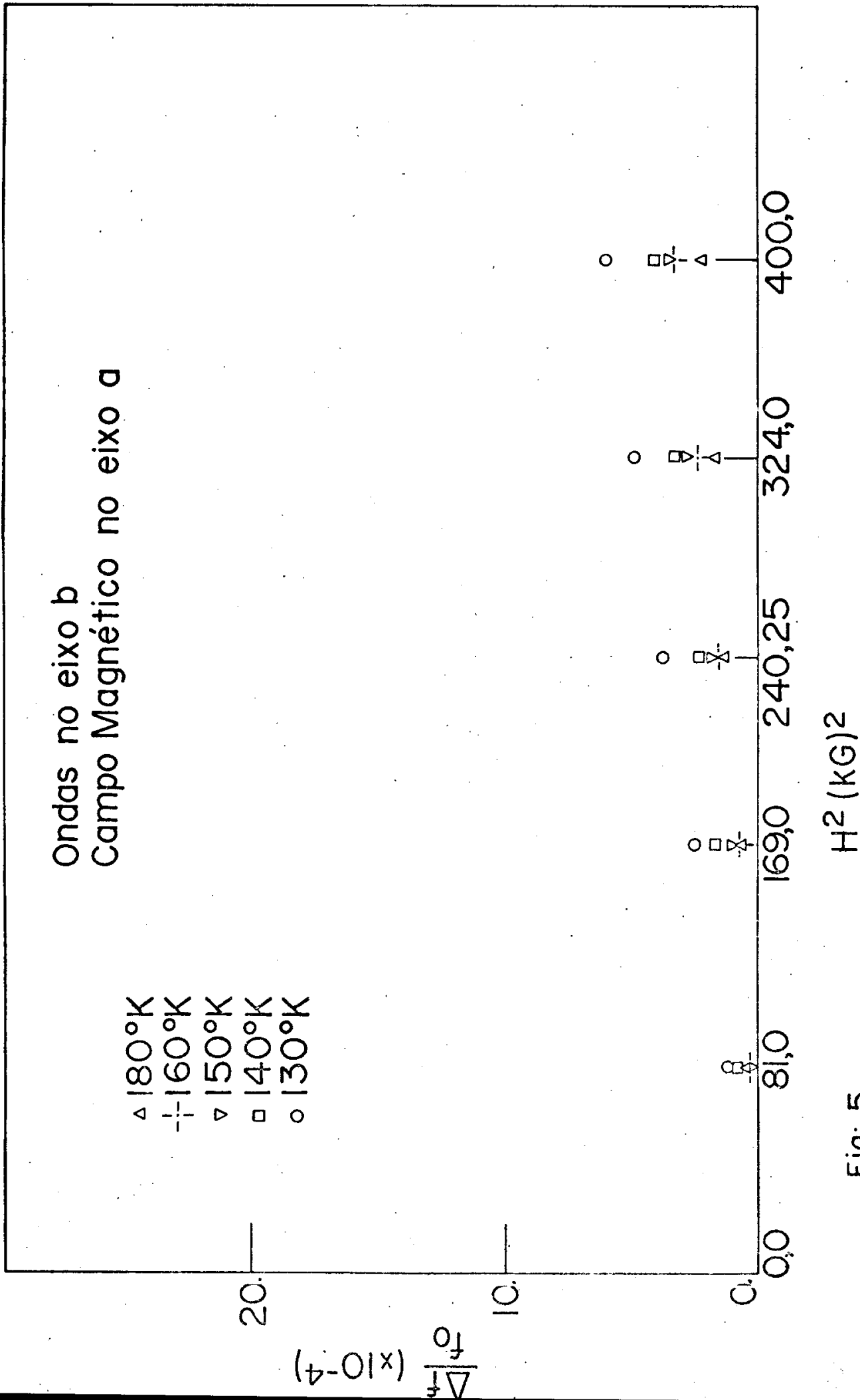


Fig: 5

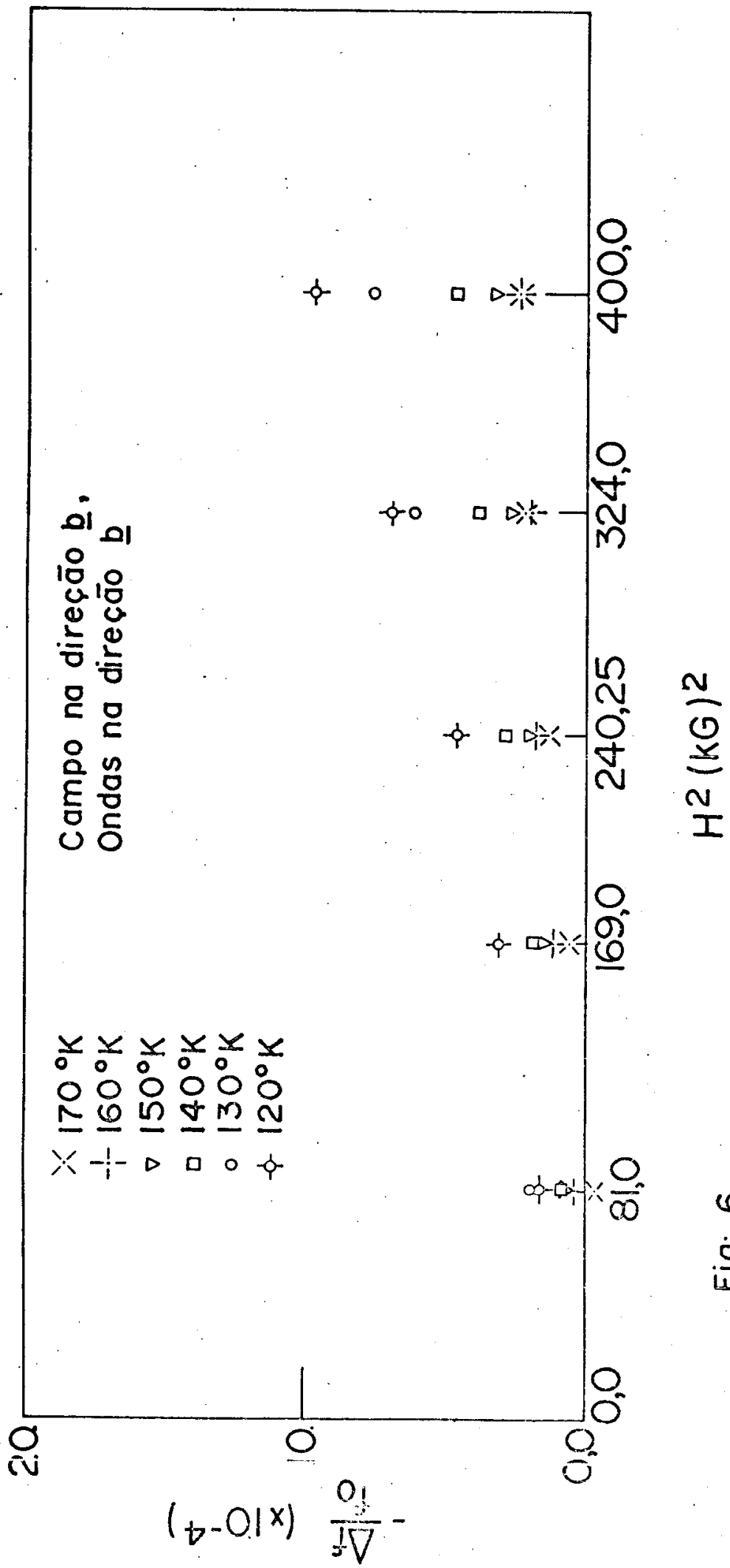


Fig: 6

Ondas no eixo b
Campo no eixo c

△ 180°K
+ 160°K
▽ 150°K
□ 140°K
○ 130°K

$\frac{\Delta f}{f_0} \times 10^{-4}$

81,0 169,0 240,25 324,0 400,0
 $H^2 \text{ (KG)}^2$

Fig: 7

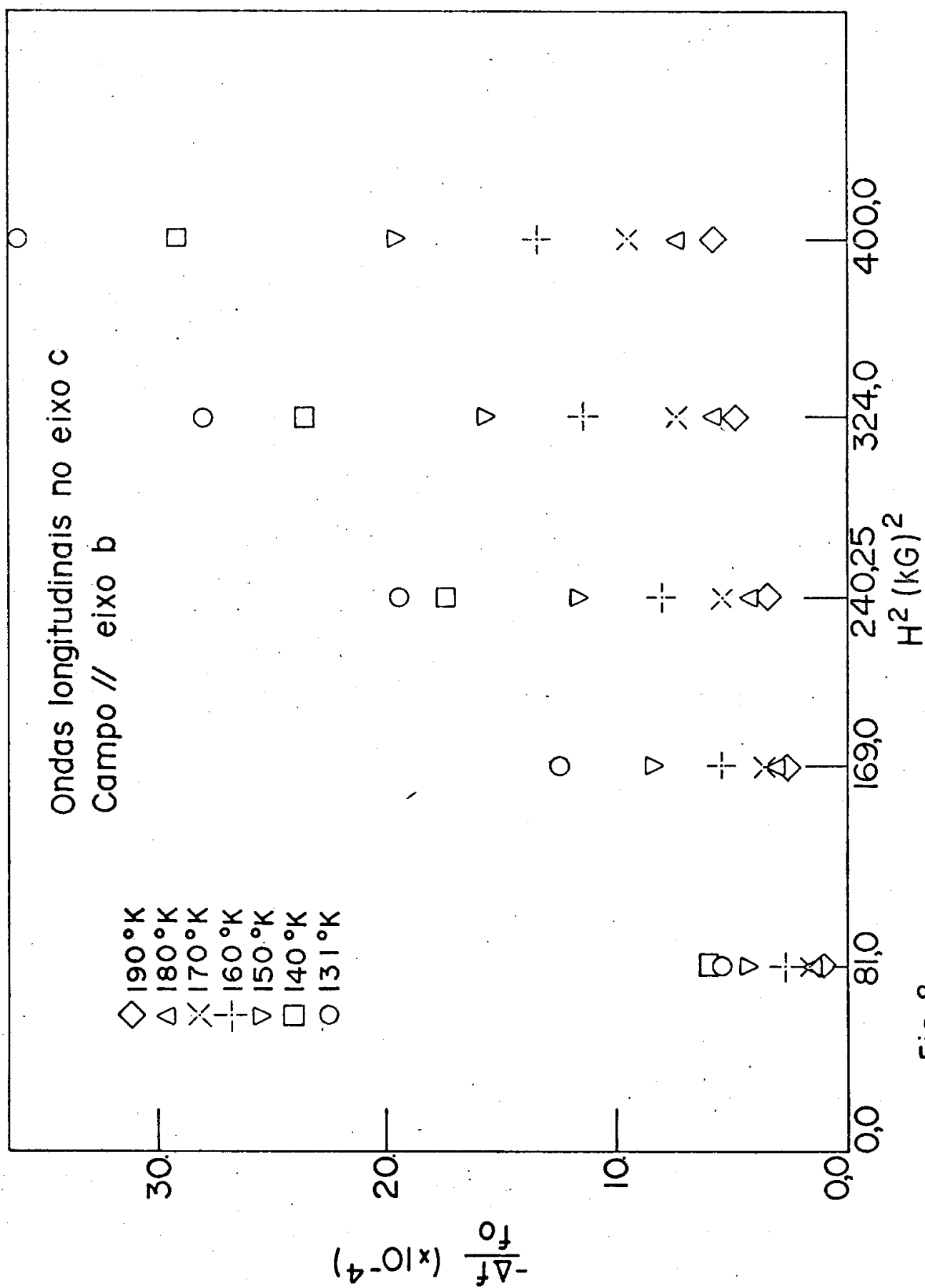


Fig: 8

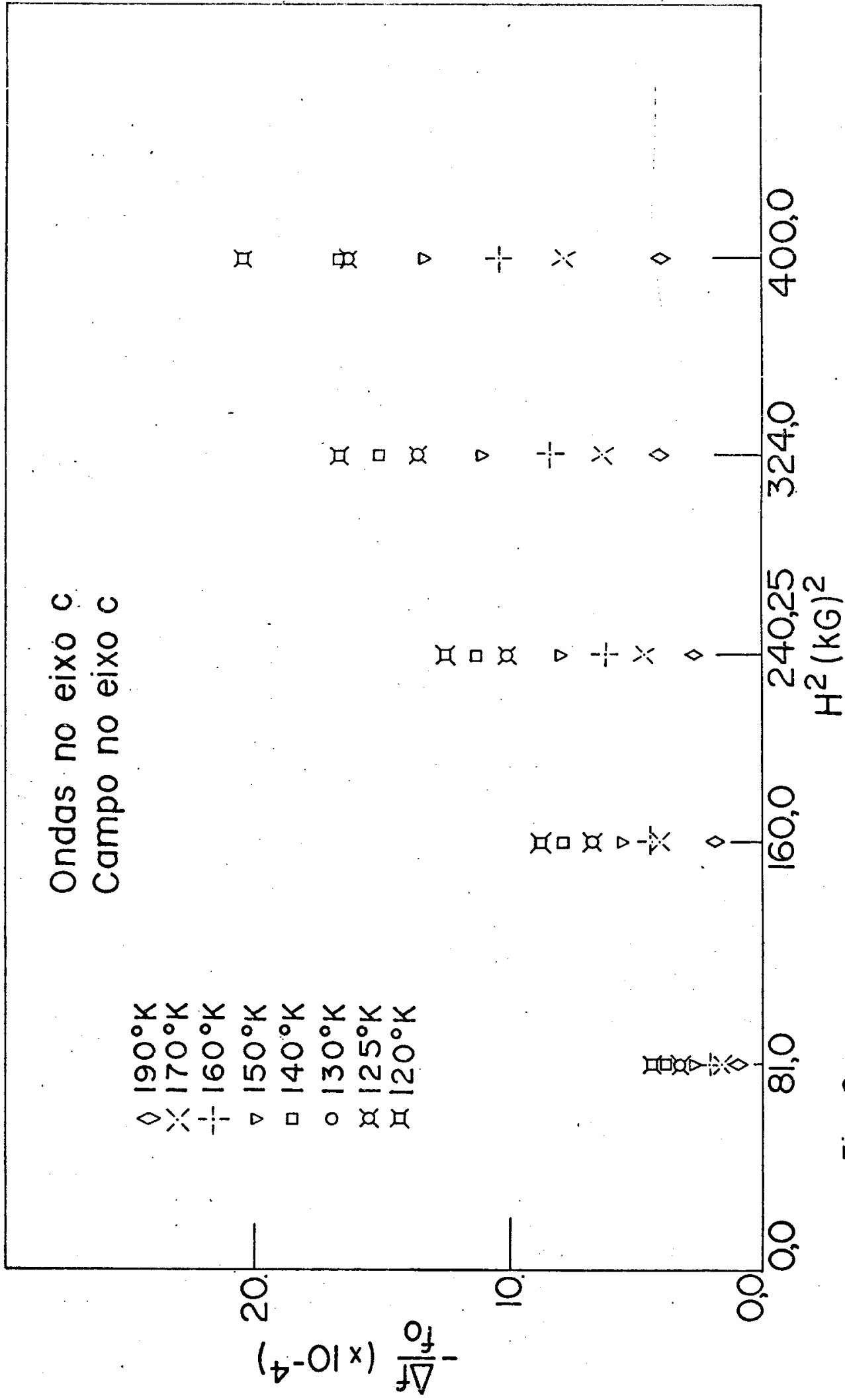


Fig: 9

Variação com o ângulo

Ondas no eixo b

T = 140 °K

H = 20 kG

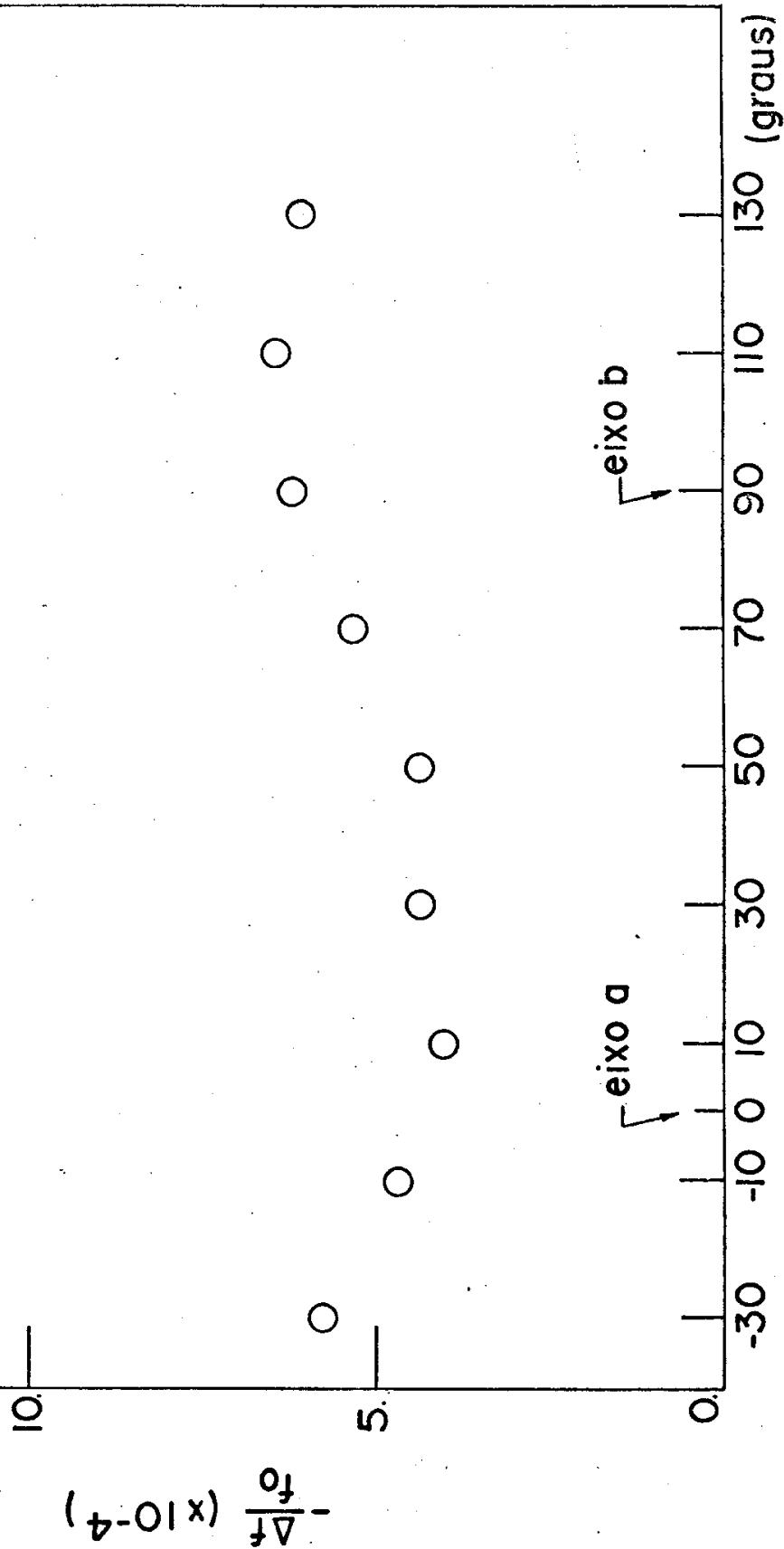


Fig: 10

TEORIAIntrodução:

Neste capítulo vamos desenvolver a teoria necessária para calcular as constantes magnetoelásticas a partir dos resultados experimentais já apresentados. Começaremos a análise com uma explicação da densidade de hamiltoniana (que chamaremos simplesmente hamiltoniana), derivada na aproximação de pequenas deformações; mostraremos que essa abordagem é inadequada ; seguindo Southern & Goodings⁽¹⁾, aplicaremos teoria de deformação finita à hamiltoniana, e então calcularemos ΔC_{22} e ΔC_{33} na região paramagnética. A partir das expressões obtidas, vamos calcular as constantes magnetoelásticas e discuti-las. A partir destas, vamos calcular as magnetoestrições e compará-las com os resultados experimentais de Rhyne & al⁽²⁾.

Descrição da hamiltoniana com o tensor de deformação infinitesimal

A hamiltoniana do sólido pode ser escrita:

$$H = H_e + H_m + H_{me}$$

onde

H_e = densidade de energia elástica

H_m = densidade de energia de interação magnética

H_{me} = densidade de energia de interação magnetoelástica

A energia elástica pode ser escrita:

$$H_e = \frac{1}{2} C_{\alpha\beta\gamma\delta} e_{\alpha\beta} e_{\gamma\delta} \quad (\alpha, \beta, \gamma, \delta = x, y, z)$$

e onde $e_{\alpha\beta} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_\alpha}{\partial x_\beta} + \frac{\partial u_\beta}{\partial x_\alpha} \right)$ é o tensor de deformação infinitesimal

mal. Podemos escrevê-lo mais convenientemente usando a notação da engenharia:

$H_e = \frac{1}{2} C_{ij} e_i e_j$. Usaremos as duas notações simultaneamente.

Se a única dependência quadrática no tensor de deformação aparece em H_e , então:

$C_{ij} = \frac{\partial^2 U}{\partial e_i \partial e_j}$, onde $U = \langle H_e \rangle = H_e$, pois H_e é uma expressão clássica. De modo geral, definimos a constante elástica efetiva $C_{ij}^* = \frac{\partial^2 U}{\partial e_i \partial e_j}$. Como estamos interessados somente em mudanças das constantes elásticas provocadas pelas interações magnetoelásticas, podemos escrever:

$$C_{ij} = C_{ij}^* - C_{ij} = \frac{\partial^2 U}{\partial e_i \partial e_j} = \frac{\partial^2}{\partial e_i \partial e_j} \langle H - H_e \rangle \quad (1)$$

de modo que somente as hamiltonianas magnética e magnetoelástica precisam ser consideradas.

A energia magnética consiste de três partes:

$$H_m = H_{ex} + H_{ze} + H_a,$$

onde:

$$H_{ex} = \text{térmo de troca}$$

$$H_{ze} = \text{interação Zeeman}$$

$$H_a = \text{anisotropia do campo cristalino}$$

Como os eletrons 4f são fortemente ligados aos ions, o término de troca direto é desprezível mesmo para ions vizinhos. Prevalece então o término de troca indireto, dado pelo mecanismo RKKY⁽⁸⁾, no qual a interação entre ions se dá através da polarização dos eletrons de condução próximos à superfície de Fermi pelos eletrons 4f. Usando o modelo de eletrons livres para os eletrons de condução, o término de troca toma a forma:

$$H_{ex} = \sum J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j$$

com J_{ij} uma função oscilatória (período $k/2$) da posição dos ions i e j .

O termo de Zeeman é o usual descrevendo a interação entre o campo aplicado e o momentum magnético do ion:

$$H_{ze} = g\mu_B \sum \vec{S}_i \cdot \vec{H} \quad (3)$$

A energia de anisotropia do campo cristalino é devida à interação eletrostática da distribuição de carga dos eletrons 4f de um ion particular com o campo cristalino devido aos outros ions da rede. O potencial elétrico próximo a um ion pode ser escrito como a soma das contribuições dos demais ions:

$$V = \sum e_i / |\vec{x} - \vec{x}_i|$$

Expandindo $|\vec{x} - \vec{x}_i|^{-1}$ em harmônicos esféricos, obtemos⁽⁹⁾:

$$V(r, \theta, \phi) = 4\pi \sum_i e_i \sum_{\ell} \sum_m \frac{r_{<}^{\ell}}{(2\ell + 1)r_{>}^{\ell+1}} Y_{\ell m}^*(\theta_i, \phi_i) Y_{\ell m}(\theta, \phi)$$

ou

$$V(r, \theta, \phi) = \sum B_{\ell m} r^{\ell} Y_{\ell m}(\theta, \phi), \quad B_{\ell m} = 4\pi \sum_i \frac{e_i Y_{\ell m}^*(\theta_i, \phi_i)}{(2\ell + 1)r_{>}^{\ell+1}}$$

A densidade de energia do campo cristalino pode ser escrita então:

$$U_{cr} = N \langle V(r, \theta, \phi) \rangle \quad \text{com } N = \text{número de ions/cm}^3$$

Como é difícil calcular as funções de onda e os valores esperados, usamos o método dos operadores de momentum angular equivalentes, como descrito por Kale⁽¹⁰⁾. Obtemos então a expressão para o campo cristalino:

$$V(r, \theta, \phi) = \langle r^2 \rangle \alpha_2 B_{20}^0 O_{20}(\vec{S}) + \langle r^4 \rangle \alpha_4 B_{40}^0 O_{40}(\vec{S}) + \langle r^6 \rangle \alpha_6 B_{60}^0 O_{60}(\vec{S}) + B_{66} O_{66}(\vec{S}) + O_{6-6}(\vec{S})$$

onde $\langle r^n \rangle$ é tomada usando apenas a parte radial da função de onda na aproximação de campo central, α_{ℓ} é constante de proporcionalidade entre os elementos de matriz de Y_{ℓ}^m e O_{ℓ}^m . Os O_{ℓ}^m são operadores tensoriais irredutíveis formados dos operadores de momentum angular S_x, S_y, S_z . Tomando o valor esperado de $V(r, \theta, \phi)$ entre as funções angulares $|LSJM_J\rangle$ e absorvendo todas as constantes nos B's, H_a é escrita:

$$H_a = \sum_i B_{20}^{00}(\vec{S}_i) + B_{40}^{00}(\vec{S}_i) + B_{60}^{00}(\vec{S}_i) + B_6^6 [0_{66}(\vec{S}_i) + 0_{6-6}(\vec{S}_i)] \quad (4)$$

onde a somatória é sobre todos os ions num volume unitário do sólido.

Como a hamiltoniana necessita ser invariante sob o grupo de simetria do cristal, é conveniente usar uma forma que facilite a aplicação de teoria de grupo à hamiltoniana. Assim, usamos funções do tensor de deformação e funções de spin que são isomorfas aos polinômios clássicos que formam base para representações irredutíveis dos grupos; por exemplo, as funções $e_{xx} + e_{yy} + e_{zz}$ e $S_x^2 + S_y^2 + S_z^2$ são isomorfas à função $x^2 + y^2 + z^2$. Como vamos identificar os elementos de matriz das funções de spin de um ion assim construídas com os elementos de matriz de operadores tensoriais irredutíveis através do teorema de Wigner-Eckart, usaremos a seguinte notação⁽¹¹⁾:

$e_i^{\Gamma,j} - \Gamma$ dá a representação irredutível da qual e_i é a i -ésima função base. j dá o valor de ℓ do operador tensorial que é multiplicado por essa função.

Para o grupo hexagonal, temos três representações irredutíveis, uma unidimensional que designaremos com α , e que é gerada por duas funções, e duas bidimensionais que serão designadas γ e ϵ ⁽¹¹⁾. Suas funções base são:

Polinômios Clássicos

Funções Isomorfas

$$1 \rightarrow Y_0^0$$

$$e^{\alpha,0} = e_{xx} + e_{yy} + e_{zz}$$

$$S^{\alpha,0} = S_x^2 + S_y^2 + S_z^2$$

$$\frac{3}{2}(3z^2 - 1) \rightarrow Y_2^0$$

$$e^{\alpha,2} = \frac{3}{2}(3e_{zz} - e^{\alpha,0})$$

$$S^{\alpha,2} = \frac{3}{2}(3S_z^2 - S^{\alpha,0})$$

$$x^2 - y^2 \rightarrow Y_2^2 + Y_2^{-2}$$

$$e_1^{\gamma,2} = e_{xx} - e_{yy}$$

$$S_1^{\gamma,2} = S_x^2 - S_y^2$$

$$xy \rightarrow Y_2^2 - Y_2^{-2}$$

$$e_2^{\gamma,2} = e_{xy} + e_{yx}$$

$$S_2^{\gamma,2} = S_x S_y + S_y S_x$$

$$yz \rightarrow Y_2^1 + Y_2^{-1}$$

$$e_1^{\epsilon,2} = e_{yz} + e_{zy}$$

$$S_1^{\epsilon,2} = S_y S_z + S_z S_y$$

$$xz \rightarrow Y_2^1 - Y_2^{-1}$$

$$e_2^{\epsilon,2} = e_{xz} + e_{zx}$$

$$S_2^{\epsilon,2} = S_x S_z + S_z S_x$$

Usando então essas funções, a hamiltoniana de

campo cristalino pode ser escrita:

$$H_a = \sum_{\Gamma} \sum_j B_j^{\Gamma} \sum_i S_i^{\Gamma,j}(f) \quad (5)$$

onde f designa o f -ésimo spin. Quando exigimos que a expressão acima seja invariante sob o grupo hexagonal e substituímos as funções $S_i^{\Gamma,j}(f)$ pelos operadores tensoriais correspondentes, obtemos a equação (4).

O termo de troca é escrito:

$$H_{ex} = \sum_{\Gamma} \sum_j D_j^{\Gamma} \sum_i S_i^{\Gamma,j}(f,g) \quad (6)$$

onde $S_i^{\Gamma,j}(f,g)$ é a função de spin de dois ions e f e g designam esses ions.

Energia Magnetoelástica - compõem-se de duas partes, H_{me}^I e H_{me}^{II} devido a interações de um ion e dois ions respectivamente. Fisicamente, a interação magnetoelástica de um ion é devida à modulação do campo cristalino pela deformação, pois esta, ao mudar a posição dos ions vizinhos ao ion que estamos considerando, altera o campo cristalino. Em primeira ordem, colocamos:

$$B_j^{\Gamma} \rightarrow B_j^{\Gamma} + \frac{\partial B_j^{\Gamma}}{\partial e_i^{\Gamma,j'}} e_i^{\Gamma,j'}$$

Substituindo a nova constante na equação para H_a , equação (5), encontramos:

$$H_a \rightarrow H_a + H_{me}^I$$

$$\text{com } H_{me} = \sum_{\Gamma} \sum_{jj'} B_{jj'}^{\Gamma} \sum_i e_i^{\Gamma,j,j'} S_i^{\Gamma,j,j'} \quad (7)$$

O acoplamento magnetoelástico de dois ions, H_{me}^{II} , é devido à modulação do termo de troca pela deformação - esta altera a distância entre os ions, alterando J_{ij} (ou D_j^{Γ}) e, portanto, a interação entre dois ions. Em primeira ordem, colocamos:

$$D_j^{\Gamma} \rightarrow D_j^{\Gamma} + \frac{\partial D_j^{\Gamma}}{\partial e_i^{\Gamma,j'}} e_i^{\Gamma,j'}$$

Substituindo a nova constante na equação de

H_{ex} , equação (6), obtemos:

$$H_{ex} \rightarrow H_{ex} + H_{me}^{II}$$

onde

$$H_{me}^{II} = \sum_{\Gamma} \sum_{jj'} \bar{D}_{jj'}^{\Gamma} \sum_i e_i^{\Gamma,j} S_i^{\Gamma,j'}(f,g) \quad (8)$$

Nas equações (7) e (8) as constantes $\bar{B}_{jj'}^{\Gamma}$ e $\bar{D}_{jj'}^{\Gamma}$ não dependem de i porque o produto $e_i^{\Gamma,j} S_i^{\Gamma,j'}$ deve ser invariante, e isso só se consegue se as funções fatores pertencem à mesma representação irredutível. Para a simetria hexagonal, a forma explícita dessas hamiltonianas é:

$$H_{me}^I = -\sum_f [\bar{B}_{02}^{\alpha} e^{\alpha,0} S^{\alpha,2}(f) + \bar{B}_{22}^{\alpha} e^{\alpha,2} S^{\alpha,2}(f) + \bar{B}_2^{\gamma} (e_1^{\gamma,2} S_1^{\gamma,2}(f) + e_2^{\gamma,2} S_2^{\gamma,2}(f)) + \bar{B}_2^{\epsilon} (e_1^{\epsilon,2} S_1^{\epsilon,2}(f) + e_2^{\epsilon,2} S_2^{\epsilon,2}(f))] \quad (9)$$

$$H_{me}^{II} = -\sum_{fg} [\bar{D}_{00}^{\alpha} e^{\alpha,0} S^{\alpha,0} + \bar{D}_{02}^{\alpha} e^{\alpha,0} S^{\alpha,2} + \bar{D}_{20}^{\alpha} e^{\alpha,2} S^{\alpha,0} + \bar{D}_{22}^{\alpha} e^{\alpha,2} S^{\alpha,2} + \bar{D}_2^{\gamma} (e_1^{\gamma,2} S_1^{\gamma,2} + e_2^{\gamma,2} S_2^{\gamma,2}) + \bar{D}_2^{\epsilon} (e_1^{\epsilon,2} S_1^{\epsilon,2} + e_2^{\epsilon,2} S_2^{\epsilon,2})] \quad (10)$$

Em termos dos operadores tensoriais, a equação (9) torna-se:

$$H_{me}^I = -\sum_f [\bar{B}_{02}^{\alpha} e^{\alpha,0} O_{20}(f) + \bar{B}_{22}^{\alpha} e^{\alpha,2} O_{20}(f) + \bar{B}_2^{\gamma} (e_1^{\gamma,2} O_{22}^{+}(f) + e_2^{\gamma,2} O_{22}^{-}(f)) + \bar{B}_2^{\epsilon} (ie_1^{\epsilon,2} O_{21}^{+}(f) - ie_2^{\epsilon,2} O_{21}^{-}(f))] \quad (11)$$

Obtemos os operadores acima das seguintes relações (12):

$$O_{\ell m} = (-1)^{\ell} S_{+}^{\ell} \quad e \quad [S_{+}, O_{\ell m}] = \sqrt{S(S+1) - m(m+1)} O_{\ell m+1}$$

$$e \quad O_{\ell m}^{+} = \frac{(-1)^m O_{\ell m+0} O_{\ell -m}}{2}, \quad O_{\ell m}^{-} = \frac{(-1)^m O_{\ell m-0} O_{\ell -m}}{2i}$$

Notemos que na expressão de H_{me}^I não entra termos contendo a função $S^{\alpha,0}$, que é, para um ion, uma mera constante. No entanto, o análogo dessa função para dois ions não é uma constante, e portanto, consta da expressão para H_{me}^{II} . Notemos também que na expressão para H_{me}^I aparecem termos contendo O_{21} , que não aparecem na expressão para H_a , e que indicam que a deformação abaixa a simetria do cristal. Nas expansões acima, não incluímos acoplamento com operadores $O_{\ell m}$ com $\ell > 2$ porque, na

região paramagnética que nos interessa, as médias térmicas desses operadores são muito pequenas.

Esses são os termos que compõem nossa hamiltoniana. O esquema a ser seguido é considerar como hamiltoniana não perturbada H_0 a soma de H_{ex} com H_{ze} e tratarmos H_{me}^I e H_{me}^{II} como perturbações. Calcula-se então as médias térmicas dessas perturbações e acrescenta-se-as à energia livre obtida de H_0 para obter a energia livre do sistema. Acontece, porém, que todos os termos são lineares na deformação, de modo que não há contribuição para as constantes elásticas dessa hamiltoniana. Na secção seguinte, estudamos a abordagem de Southern & Goodings⁽¹⁾, usando o tensor de deformação finita, que provê termos quadráticos na deformação.

Descrição da hamiltoniana com o tensor de deformação finita

A discussão anterior não se preocupou em tornar a hamiltoniana invariante sob rotações quaisquer do sistema campo magnético-sistema de spins. Isto quer dizer que não há conservação de momentum angular total. No entanto, uma descrição correta das propriedades físicas que dependem do acoplamento entre spins e rede em cristais magneticamente ordenados requer que a hamiltoniana seja invariante sob rotações rígidas dos sistemas magnético e elástico. Esta condição pode ser satisfeita construindo a hamiltoniana a partir de quantidades invariantes. As mais convenientes para uma teoria microscópica são as usadas por Brown⁽¹³⁾ e por Melcher⁽¹⁴⁾, pois preservam as relações de comutação do momentum angular, e que são:

$$S_{ij}^* = R_{jl} S_{il} \quad , \quad H_j^* = R_{jl} H_l \quad , \quad E_{ij} = \frac{1}{2} \left(\frac{\partial u_i}{\partial x_j} + \frac{\partial u_j}{\partial x_i} \right) + \frac{1}{2} \frac{\partial u_l}{\partial x_i} \frac{\partial u_l}{\partial x_j}$$

onde $\vec{S}_i$ é o momentum angular do i-ésimo ion e R_{ij} é um tensor ortogonal que descreve uma rotação finita do meio elástico. A importância de exigir invariância rotacional foi demonstrada

por Eastman⁽¹⁵⁾, ao medir as constantes magnetoelásticas de YIG, e por Melcher⁽¹⁶⁾, ao medir as constantes elásticas de MnF_2 na fase antiferromagnética, que encontraram que seus resultados eram inconsistentes com a teoria de pequenas deformações, mas consistentes com a de deformações finitas. Como é mais conveniente trabalhar com as grandezas $\tilde{S}$ ao invés de $\tilde{S}^*$, fazemos a aproximação:

$$R_{ij} = 1 + \omega_{ij}, \text{ com } \omega_{ij} = \frac{\partial u_i}{\partial x_j} - \frac{\partial u_j}{\partial x_i}$$

que resulta na hamiltoniana anterior (com E_{ij} no lugar de e_{ij}), mais termos lineares em ω_{ij} . Estes termos apresentam interesse para deformações transversais. Para ondas longitudinais, com as quais trabalhamos, $\omega_{ij} = 0$, o que significa que estes termos não nos interessam. O que importa é que a deformação finita E_{ii} pode ser aproximada por $E_{ii} = e_{ii} + e_{ii}^2/2$. Como queremos ΔC_{22} e ΔC_{33} , somente os termos em E_{yy} e E_{zz} devem ser mantidos. Usaremos então as hamiltonianas:

$$H_{me}^I = - \sum_f [B_{02}^\alpha (E_{yy} + E_{zz}) S^{\alpha,2} + \frac{\sqrt{3}}{2} B_{22}^\alpha (2E_{zz} - E_{yy}) S^{\alpha,2} - B_{2yy}^\gamma S_l^{\gamma,2}]$$

$$H_{me}^{II} = - \sum_{fg} [(E_{yy} + E_{zz}) D_{00}^\alpha S^{\alpha,0} + D_{02}^\alpha S^{\alpha,2}) + \frac{\sqrt{3}}{2} (2E_{zz} - E_{yy}) (D_{20}^\alpha S^{\alpha,0} + D_{22}^\alpha S^{\alpha,2}) - D_{2yy}^\gamma S_l^{\gamma,2}]$$

Substituição de $E_{ii} = e_{ii} + e_{ii}^2/2$ resulta nos seguintes termos quadráticos:

$$H_{me}^I = - \sum_f [B_{02}^\alpha (\frac{e_{yy}^2 + e_{zz}^2}{2}) S^{\alpha,2} + \frac{\sqrt{3}}{2} B_{22}^\alpha (e_{zz}^2 - \frac{e_{yy}^2}{2}) S^{\alpha,2} - \frac{B_{2yy}^\gamma e_{yy}^2 S_l^{\gamma,2}}{2}] \quad (12)$$

$$H_{me}^{II} = - \sum_{fg} [\frac{1}{2} (e_{zz}^2 + e_{yy}^2) (D_{00}^\alpha S^{\alpha,0} + D_{02}^\alpha S^{\alpha,2}) + \frac{3}{2} (e_{zz}^2 - \frac{e_{yy}^2}{2}) (D_{20}^\alpha S^{\alpha,0} + D_{22}^\alpha S^{\alpha,2}) - \frac{D_{2yy}^\gamma e_{yy}^2 S_l^{\gamma,2}}{2}] \quad (13)$$

É com essas hamiltonianas que trabalharemos.

Cálculo de ΔC_{22} e ΔC_{33} :

É necessário calcular a média térmica de $H =$

$H_{me}^I + H_{me}^{II}$, $\langle H \rangle = U$, nas auto funções de H_0 , o que significa

tirar as médias térmicas dos operadores de spin. Callen & Callen⁽¹¹⁾ usaram o isomorfismo entre esses operadores de spin e combinações lineares de operadores tensoriais irredutíveis para calcular as médias térmicas. Então para contribuição de um íon, temos:

$$S_i^{\Gamma,j} = \sum_j a_{i\Gamma}^{lj} \langle O_{lj} \rangle$$

onde O_{lj} é operador tensorial. Reexpressindo os operadores tensoriais num sistema girado (ξ, η, ζ) de modo que ζ coincida com a direção $\vec{\alpha}$ da magnetização, temos:

$$O_{lj} = \sum_{j'} \langle Y_{lj'} | Y_{lj} \rangle \tilde{O}_{lj'}$$

onde $\tilde{O}_{lj}$ denota o operador no sistema girado. O isomorfismo com os harmônicos esféricos permite identificar $\langle Y_{lj'} | Y_{lj} \rangle$. Tomando o valor médio de ambos os lados, com as autofunções do operador não perturbado, que tem simetria azimutal em torno de $\vec{\alpha}$, ficamos somente com o termo $m' = 0$, ou seja,

$$\langle O_{lj} \rangle = \langle Y_{l0} | Y_{lj} \rangle \langle O_{l0} \rangle, \text{ com } \langle Y_{l0} | Y_{lj} \rangle = Y_{lj}(\vec{\alpha})$$

Quer dizer,

$$\langle S_i^{\Gamma,j} \rangle = \langle \tilde{O}_{l0} \rangle \sum_j a_{i\Gamma}^{lj} Y_{lj}(\vec{\alpha}) \text{ ou } \langle S_i^{\Gamma,j} \rangle = \langle O_{l0} \rangle K_i^{\Gamma,j}(\vec{\alpha})$$

onde $K_i^{\Gamma,j}$ é a mesma função de $\alpha_x, \alpha_y, \alpha_z$ que $S_i^{\Gamma,j}$ é de S_x, S_y, S_z .

Num trabalho anterior, Callen & Callen mostraram que:

$$\tilde{O}_{l0} = I_{l+1/2}(L(\sigma)) \text{ onde } I_{l+1/2}(x) = \frac{I_{l+1/2}(x)}{I_{1/2}(x)}$$

e onde $I_{l+1/2}$ é a função de Bessel modificada de ordem semi-inteira, $L(x)$ é a função de Langevin, e $\sigma =$ magnetização reduzida, M/M_0 . Então os termos de spin ficam:

$$\langle S^{\alpha,0} \rangle = S(S+1) \langle \tilde{O}_{00} \rangle = S(S+1) \quad (14)$$

$$\langle S^{\alpha,2} \rangle = \sqrt{\frac{3}{2}} \langle 3S_z^2 - S(S+1) \rangle = \frac{3}{2} S(S+1) I_{5/2}(L(\sigma)) \frac{(3\cos^2\theta - 1)}{2} \quad (15)$$

$$\langle S_1^{\Gamma,2} \rangle = \langle S_x^2 - S_y^2 \rangle = \sqrt{\frac{3}{8}} \sqrt{\frac{2}{3}} S(2S+1) I_{5/2}(L(\sigma)) \sin^2\theta \cos 2\phi. \quad (16)$$

Para o cálculo do termo de dois ions, usamos a aproximação do campo molecular, colocando:

$$\sum_{fg} D_{00}^{\alpha} S^{\alpha,0}(f,g) = \sum_{fg} D_{00}^{\alpha} (S_x^f S_x^g + S_y^f S_y^g + S_z^f S_z^g) = \sum_f S_x^f \left(D_{00}^{\alpha} S_x^g + \dots \right) =$$

$$= \sum_f G_{00}^{\alpha} \vec{S}^f \cdot \vec{\sigma}$$

$$\sum_{fg} D_{00}^{\alpha} S^{\alpha,2}(f,g) = \sum_{fg} D_{02}^{\alpha} (3S_z^f S_z^g - \vec{S}^f \cdot \vec{S}^g) = \sum_f \frac{\sqrt{3}}{2} G_{02}^{\alpha} (3S_z^f \sigma_z - \vec{S}^f \cdot \vec{\sigma})$$

e analogamente para os demais termos.

A magnetização reduzida σ é obtida na região paramagnética da solução da equação $\sigma = L(x)$ com $x = Sg\mu_B H/kT$. Para campos usados no laboratório e as temperaturas na região paramagnética, x é pequeno, de modo que podemos expandir $L(x)$ em torno de $x = 0$. Em primeira ordem $L(x) = x/3$, ou seja, $L^{-1}(x) = 3\sigma$. Expandimos então $I_{\ell+1/2}(3\sigma)$ em série de Taylor, retendo o primeira termo, pois σ é pequena na região paramagnética. Então,

$$I_{\ell+1/2}(3\sigma) \approx \frac{3^{\ell} \sigma^{\ell}}{(2\ell+1)}$$

Essa equação permite justificar porque não se considera termos na hamiltoniana com $\ell > 2$. Na região paramagnética, σ é pequena, de modo que a contribuição de $O_{\ell j}$, com $\ell > 2$, é proporcional a σ^{ℓ} , e pode ser desprezada. Temos então $I_{5/2} = \frac{3\sigma^2}{5}$. O termo de um ion fica:

$$U_{me}^I = -N \left\{ [B_{02}^{\alpha} (e_{yy}^2 + e_{zz}^2)/2 + B_{22}^{\alpha} (e_{zz}^2 - \frac{e_{yy}^2}{2})] \frac{3}{2} S(2S-1) \frac{3\sigma^2}{5} (3\cos^2\theta - 1)/2 \right.$$

$$\left. - B_{22}^{\alpha} \frac{e_{yy}^2}{2} \frac{\sqrt{3}}{8} \frac{\sqrt{2}}{3} S(2S-1) \frac{3\sigma^2}{5} \sin^2\theta \cos 2\phi \right\} \quad (17)$$

Colocando $\vec{S}_f = S\vec{\sigma}$, os operadores de dois ions ficam:

$$\sum_{fg} D_{00}^{\alpha} S^{\alpha,0}(f,g) = N G_{00}^{\alpha} S \sigma^2$$

$$\sum_{fg} D_{02}^{\alpha} S^{\alpha,2}(f,g) = N G_{02}^{\alpha} S (3\cos^2\theta - 1) \sigma^2$$

$$\sum_{fg} D_{22}^{\gamma} S_1^{\gamma,2}(f,g) = N G_2^{\gamma} S \sin^2\theta \cos 2\phi \sigma^2$$

ou seja, o termo de dois ions fica:

$$U_{me}^{II} = -N\left\{\frac{1}{2}(e_{yy}^2 + e_{zz}^2)(G_{00}^\alpha + G_{02}^\alpha(3\cos^2\theta - 1))S\sigma^2 + (e_{zz}^2 - \frac{e_{yy}^2}{2})(G_{20}^\alpha + G_{22}^\alpha(3\cos^2\theta - 1))S\sigma^2 - G_{22}^\gamma \frac{e_{yy}^2}{2} S\sigma^2 \sin^2\theta \cos 2\phi\right\}$$

$$\text{Temos então: } \Delta C_{22} = \frac{\partial^2}{\partial^2 e_{yy}} (U_{me}^I + U_{me}^{II})$$

$$\Delta C_{22} = -N\left\{(B_{02}^\alpha - B_{22}^\alpha)\frac{9}{20}S(2S - 1)(3\cos^2\theta - 1) - B_{22}^\gamma S(2S - 1)\sin^2\theta \cos 2\phi + (G_{00}^\alpha - G_{20}^\alpha)S + (G_{02}^\alpha + G_{22}^\alpha)(3\cos^2\theta - 1)S - G_{22}^\gamma S \sin^2\theta \cos 2\phi\right\}\sigma^2 \quad (18)$$

$$\Delta C_{33} = -N\left\{(B_{02}^\alpha + 2B_{22}^\alpha)\frac{9}{20}S(2S - 1)(3\cos^2\theta - 1) + (G_{00}^\alpha + 2G_{22}^\alpha)S + (G_{02}^\alpha + 2G_{22}^\alpha)S(3\cos^2\theta - 1)\right\}\sigma^2 \quad (19)$$

Para as diversas orientações de campo e propagação de ondas, essas equações resultam:

$$a) \text{ ondas em b, campo em a } \Delta C_{22} = (-A - B + C)\sigma^2 \quad (20)$$

$$b) \text{ ondas em b, campo em b } \Delta C_{22} = (-A + B + C)\sigma^2 \quad (21)$$

$$c) \text{ ondas em b, campo em c } \Delta C_{22} = (2A + C)\sigma^2 \quad (22)$$

$$d) \text{ ondas em c, campo em b } \Delta C_{33} = (-D + E)\sigma^2 \quad (23)$$

$$e) \text{ ondas em c, campo em c } \Delta C_{33} = (2D + E)\sigma^2 \quad (24)$$

onde

$$A = -N\left\{(B_{02}^\alpha - B_{22}^\alpha)\frac{9}{10}S(2S - 1) + (G_{00}^\alpha - G_{20}^\alpha)\right\}$$

$$B = -N\left\{(B_{20}^\gamma + B_{22}^\gamma)\frac{3}{10}S(2S - 1) + G_{22}^\gamma S\right\}$$

$$C = -N(G_{00}^\alpha - G_{20}^\alpha)S$$

$$D = -N\left\{(B_{02}^\alpha + 2B_{22}^\alpha)\frac{9}{10}S(2S - 1) + (G_{02}^\alpha + 2G_{22}^\alpha)S\right\}$$

$$E = -N(G_{00}^\alpha + 2G_{20}^\alpha)S$$

Cálculo das constantes magnetoelásticas a partir da experiência

Na experiência, obtivemos valores de $\Delta f/f$ em função do campo aplicado H . No entanto, para computar ΔC_{ii} é necessário levar em conta a variação das constantes elásticas devido à magnetoestrição. Usando as relações $C_{ii} = \rho v^2$ e $v = 2lf$, podemos escrever:

$$\Delta C_{ii} = C_{ii} \left(\frac{\Delta \rho}{\rho} + \frac{2\Delta v}{v} \right) = C_{ii} \left(\frac{\Delta \rho}{\rho} + \frac{2\Delta \ell}{\ell} + \frac{2\Delta f}{f} \right)$$

Para uma dada massa,

$$\rho = \frac{M}{V} \rightarrow \frac{\Delta \rho}{\rho} = - \frac{\Delta V}{V} \rightarrow \frac{\Delta \rho}{\rho} = - \frac{\Delta \ell_a}{\ell_a} - \frac{\Delta \ell_b}{\ell_b} - \frac{\Delta \ell_c}{\ell_c}$$

onde a, b e c denotam os eixos cristalinos. Temos então:

$$\Delta C_{ii}(x) = C_{ii} \left(\frac{2\Delta f}{f} + \frac{2\Delta \ell_x}{\ell_x} - \frac{\Delta \ell_a}{\ell_a} - \frac{\Delta \ell_b}{\ell_b} - \frac{\Delta \ell_c}{\ell_c} \right)$$

onde x denota o eixo de propagação da onda.

As variações relativas de comprimento, $\frac{\Delta \ell_i}{\ell_i}$, dependem da orientação do campo magnético. No entanto, como mostrado por Rhyne & al⁽²⁾, a magnetoestrição do holmio é praticamente independente do campo magnético na região paramagnética, a não ser para o eixo c, que apresenta uma dependência apreciável. Faremos correções somente para esse eixo, supondo que a dependência da magnetoestrição seja quadrática com o campo. Esta é uma hipótese razoável, pois a dependência da magnetoestrição no campo é a mesma dependência das constantes elásticas. Colocamos então

$$\frac{\Delta \ell}{\ell} = k \sigma^2$$

É de se esperar que a constante k seja diferente quando o campo está orientado segundo o eixo c que quando está no plano basal. Como, porém, não dispomos de dados suficientes, usamos os resultados de Rhyne & al⁽²⁾ de $\frac{\Delta \ell}{\ell}$ para campo ao longo de b para calcularmos k, e usaremos esse valor da constante para o campo ao longo de c. As correções são dadas na tabela 1. Usando então os valores de $\frac{\Delta C}{C}$ corrigidos, construímos os gráficos $\frac{\Delta C}{C} \times \sigma^2$. As inclinações desses gráficos, computadas a partir das retas ajustadas pelo método dos mínimos quadrados (tabela 2), dão-nos $\frac{\Delta C}{C} / \sigma^2$, o que significa que podemos determinar as constantes A, B, C, D e E das equações 20, 21, 22, 23, e 24 montando cinco equações nessas incógnitas para cada temperatura. Chamando, para uma dada temperatura, de x, y, z, t e u as inclinações pa-

$\frac{\Delta C}{C} (10^{-4})$ H (10^3 G)	130 °K	135	140	150	160	170	180	190
0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0	0,0
9,0	0,41	0,31	0,25	0,19	0,12	0,06	0,07	0,06
13,0	0,8	0,64	0,53	0,39	0,24	0,13	0,15	0,13
15,5	1,20	0,91	0,75	0,56	0,35	0,19	0,21	0,19
18,0	1,62	1,22	1,01	0,75	0,47	0,25	0,29	0,25
20,0	2,00	1,51	1,24	0,93	0,58	0,31	0,36	0,31

Tabela 1 - Correções magneto estritivas do eixo c

Inclinação Ori- entação	130 °K	135	140	150	160	170	180	190
b, a	7,75 10^{-2}		1,95 10^{-2}	1,03 10^{-1}	1,29 10^{-1}		1,31 10^{-1}	
b, b	9,40 10^{-1}		9,23 10^{-1}	8,89 10^{-2}	9,06 10^{-1}	1,31 10^{-1}		
b, c	2,58 10^{-1}		2,27 10^{-1}	2,03 10^{-1}	1,87 10^{-1}		1,13 10^{-1}	
c, b	4,49		5,49 10^{-1}	5,18 10^{-1}	4,93 10^{-1}	4,47 10^{-1}	4,23 10^{-1}	4,19 10^{-1}
c, c		5,39 10^{-1}	5,71 10^{-1}	5,38 10^{-1}	5,41 10^{-1}	4,98 10^{-1}		3,80 10^{-1}

Tabela 2 - Inclinações $\Delta C/C/\sigma^2$ em função da temperatura
(b, a significam ondas em b, campo em a).

ra as orientações de campo e propagação de ondas das equações 20, 21, 22, 23 e 24 respectivamente, temos as equações:

$$-A - B + C = C_{22}x$$

$$-A + B + C = C_{22}y$$

$$2A + C = C_{22}z$$

$$-D + E = C_{33}t$$

$$2D + E = C_{33}u$$

A solução desse sistema é:

$$A = C_{22} \frac{(2z - x - y)}{6}$$

$$B = C_{22} \frac{(y - x)}{2}$$

$$C = C_{22} \frac{(x + y + z)}{3}$$

$$D = C_{33} \frac{(u - t)}{3}$$

$$E = C_{33} \frac{(2t + u)}{3}$$

Para realizar os cálculos que dão os resultados da tabela 3, usamos os valores de $\chi_{//}$, $\chi_{\perp}$ e M_0 dados por Strandburg & al⁽⁴⁾ e os valores das constantes elásticas C_{22} e C_{33} dados por Salama & al⁽⁶⁾. Essas constantes são apresentadas em função da temperatura nos gráficos 1 e 2.

Cálculo das magnetoestrições:

Como mostrado por Donoho⁽¹²⁾, as expressões para ΔC_{22} e ΔC_{33} podem ser escritas em termos das combinações de constantes elásticas e das magnetoestrições de equilíbrio da seguinte maneira:

$$\Delta C_{22} = -(c_1^\alpha + \frac{c_{12}^\alpha}{3})\bar{e}_1^\alpha - (c_{12}^\alpha - \frac{c_2^\alpha}{3})\bar{e}_2^\alpha - c^\gamma \bar{e}_1^\gamma \quad (25)$$

$$\Delta C_{33} = -(c_1^\alpha + \frac{2c_{12}^\alpha}{3})\bar{e}_1^\alpha - (c_{12}^\alpha - \frac{2c_2^\alpha}{3})\bar{e}_2^\alpha \quad (26)$$

onde:

$$c_1^\alpha = \frac{2c_{11} + c_{33} + 2c_{12} + 4c_{13}}{9}, \quad c_2^\alpha = \frac{c_{11} + c_{12} + 2c_{33} - 4c_{13}}{18}$$

$$c_{12}^\alpha = \frac{c_{33} + c_{13} - c_{11} - c_{12}}{9}, \quad c^\gamma = c_{66} = \frac{c_{11} - c_{12}}{2}$$

$$\bar{e}_1^\alpha = e_1^{\alpha,0} + e_2^{\alpha,2} \left(\frac{3\cos^2}{2} - 1 \right), \quad \bar{e}_2^\alpha = e_2^{\alpha,0} + e_2^{\alpha,2} \left(\frac{3\cos^2}{2} - 1 \right)$$

$$\bar{e}_1^\gamma = e^\gamma \sin^2 \theta \cos 2\phi$$

Os $e_i^{\alpha,2}$ são definidos por⁽¹²⁾:

$$e_1^{\alpha,0} = \frac{NJ\sigma^2 (G_{00}^\alpha c_2^\alpha - G_{20}^\alpha c_{12}^\alpha)}{D}, \quad e_2^{\alpha,0} = \frac{NJ\sigma^2 (G_{20}^\alpha c_1^\alpha - G_{00}^\alpha c_{12}^\alpha)}{D}$$

T °K	A $\left(\frac{\text{dy}}{\text{cm}^2}\right)$	B $\left(\frac{\text{dy}}{\text{cm}^2}\right)$	C $\left(\frac{\text{dy}}{\text{cm}^2}\right)$	D $\left(\frac{\text{dy}}{\text{cm}^2}\right)$	E $\left(\frac{\text{dy}}{\text{cm}^2}\right)$
130	0,456 10^{11}	6,55 10^9	1,136 10^{11}		
140	0,372 10^{11}	5,062 10^9	1,052 10^{11}	5,932 10^9	4,500 10^{11}
150	0,281 10^{11}	- 5,562 10^9	1,038 10^{11}	5,407 10^9	4,255 10^{11}
160	0,229 10^{11}	- 15,129 10^9	1,094 10^{11}	12,992 10^9	4,133 10^{11}
170				13,804 10^9	3,768 10^{11}
180					
190				- 10,543 10^9	3,293 10^{11}

Tabela 3-constantas magneto elásticas em função de temperatura

T °K	130	140	150	160	170
$\Delta C_{22}(b-a)$	7,963	7,890	7,866	7,842	7,818
σ^2	10^8	10^8	10^8	10^8	10^8

Tabela 4 $\frac{\Delta C_{22}(b-a)}{\sigma^2}$ $C^r \chi_{,2}^{(0)} \frac{3}{5}$ em função da temperatura

T °K	p (10^{11}) (d/cm ²)	q (10^{11}) (dy/cm ²)	r (10^{11}) (dy/cm ²)	s (10^{11}) (dy/cm ²)	b (10^{11}) (dy ² /cm ²)
140	- 4,182	0,387	- 3,456	- 0,638	- 9,013
150	- 4,176	0,383	- 3,456	- 0,644	- 9,029
160	- 4,170	0,380	- 3,454	- 0,647	- 9,024

Tabela 5 - p,q,r,s ed em função da temperatura

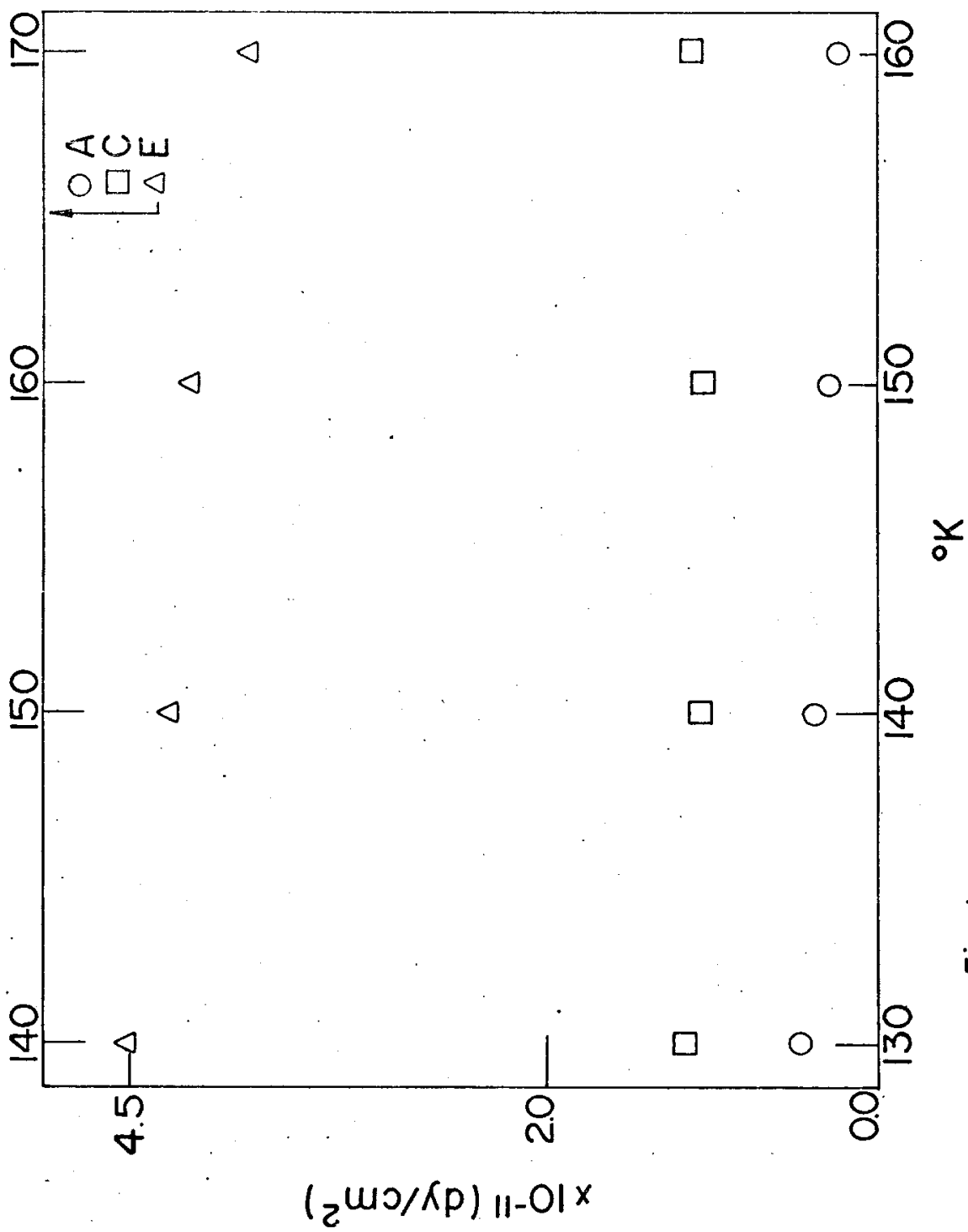


Fig: 1

Constantes Magnetoelásticas do Ho

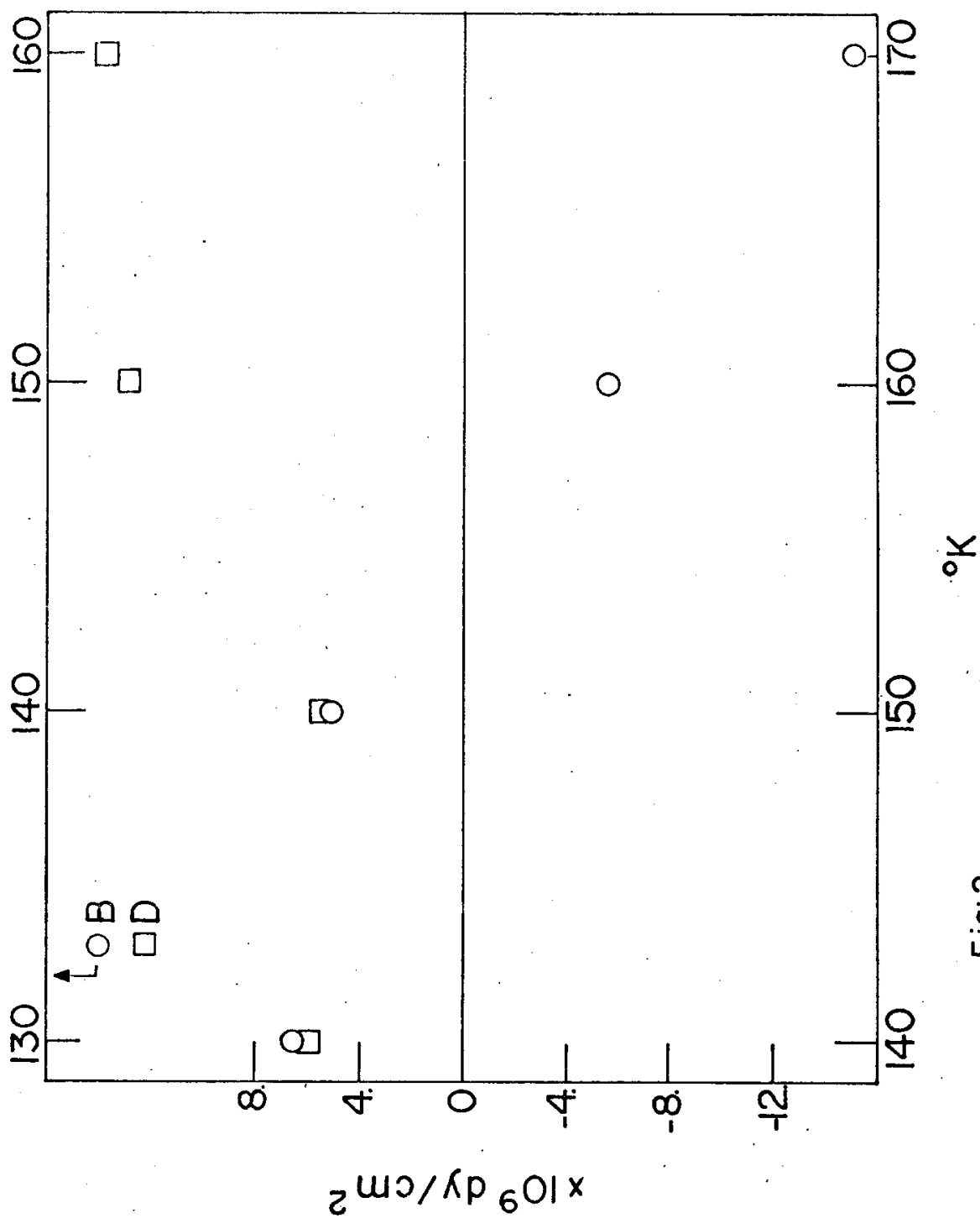


Fig:2 Constantes Magneto elásticas do Ho

$$e_1^{\alpha,2} = N\{I(\sigma) \frac{B_{02}^{\alpha} c_2^{\alpha} - B_{22}^{\alpha} c_{12}^{\alpha}}{D} + J\sigma^2 \frac{G_{02}^{\alpha} c_2^{\alpha} - G_{22}^{\alpha} c_{12}^{\alpha}}{D}\}$$

$$e_2^{\alpha,2} = N\{I(\sigma) \frac{B_{22}^{\alpha} c_1^{\alpha} - B_{02}^{\alpha} c_{12}^{\alpha}}{D} + J\sigma^2 \frac{G_{22}^{\alpha} c_1^{\alpha} - G_{02}^{\alpha} c_{12}^{\alpha}}{D}\}$$

$$e^{\gamma,2} = N\{I(\sigma) \frac{3}{8} B_2 + J\sigma^2 G_2\}, \quad I(\sigma) = \sqrt{\frac{2}{3}} S(2S-1) \bar{I}_{5/2}(L^{-1}(\sigma))$$

$$D = c_1^{\alpha} c_2^{\alpha} - (c_{12}^{\alpha})^2$$

Se calcularmos ΔC_{22} para quando o campo está ao longo do eixo a e depois ao longo do eixo b, e fazemos a diferença encontramos:

$$\Delta C_{22}(b - a) = \Delta C_{22}(b) - \Delta C_{22}(a) = 2c^{\gamma} e^{\gamma,2} = 2c^{\gamma} \lambda^{\gamma,2}$$

onde $\lambda^{\gamma,2}$ é o parâmetro de magnetoestrição mais fácil de ser medido. Callen & Callen⁽¹¹⁾ preveem que a variação desse parâmetro com a temperatura é dada por:

$$\lambda^{\gamma,2}(T) = \lambda^{\gamma,2}(0) \bar{I}_{3/2}(L^{-1}(\sigma))$$

que na região paramagnética torna-se:

$$\lambda^{\gamma,2}(T) = \lambda^{\gamma,2}(0) \frac{3\sigma^2}{5}$$

Usando as constantes elásticas obtidas por Salama & al⁽⁶⁾, o valor de $\lambda^{\gamma,2}(0)$ estimado por Rhyne & al⁽²⁾ e os valores já calculados de σ^2 , obtemos a tabela 4, que mostra que esse parâmetro varia muito pouco com a temperatura. Por outro lado, podemos calcular essa mesma grandeza a partir dos dados experimentais. Das equações 20 e 21 vem:

$$\Delta C_{22}(b - a) = 2B$$

Ora, do gráfico 2 das constantes magnetoelásticas vemos que B varia fortemente com a temperatura, não se comportando como previsto pela teoria. Para comparação, colocamos $\Delta C_{22}(b-a)$ teórico e experimental juntos no gráfico 3.

$e^{\gamma,2}$ é a única deformação que foi medida até o momento para o holmio⁽²⁾, e é, assim, a única susceptível de comparação com a teoria. No entanto, a partir das equa-

$$\frac{\Delta C_{22}(b) - \Delta C_{22}(a)}{\sigma^2} \left\{ \begin{array}{l} \text{2B experimental} \\ C_{22} \left(1 - \frac{C_{12}}{C_{22}} \right) a^{0.2} \end{array} \right\} \sigma^{(0)}$$



Fig: 3

ções 25 e 26 podemos calcular as várias combinações de deformações em termos das variações das constantes elásticas, e expressando essas últimas em termos das constantes magnetoelásticas A, B, C, D e E e de $\sigma_{||}^2$ e $\sigma_{\perp}^2$, podemos obter valores numéricos para essas combinações. Temos:

$$\Delta C_{22}(a) = p(e_1^{\alpha,0} - \frac{e_1^{\alpha,2}}{2}) + q(e_2^{\alpha,0} - \frac{e_2^{\alpha,2}}{2}) - c^{\gamma}e^{\gamma,2} \quad (27)$$

$$\Delta C_{22}(b) = p(e_1^{\alpha,0} - \frac{e_1^{\alpha,2}}{2}) + q(e_2^{\alpha,0} - \frac{e_2^{\alpha,2}}{2}) + c^{\gamma}e^{\gamma,2} \quad (28)$$

$$\Delta C_{22}(c) = p(e_1^{\alpha,0} + e_1^{\alpha,2}) + q(e_2^{\alpha,0} + e_2^{\alpha,2}) \quad (29)$$

$$\Delta C_{33}(b) = r(e_1^{\alpha,0} - e_1^{\alpha,2}) + s(e_2^{\alpha,0} + e_2^{\alpha,2}) \quad (30)$$

$$\Delta C_{33}(c) = r(e_1^{\alpha,0} + e_1^{\alpha,2}) + s(e_2^{\alpha,0} + e_2^{\alpha,2}) \quad (31)$$

onde

$$p = -(c_1^{\alpha} - \frac{c_{12}^{\alpha}}{3}) \quad , \quad q = -(c_{12}^{\alpha} - \frac{c_2^{\alpha}}{3})$$

$$r = -(c_1^{\alpha} + \frac{c_2^{\alpha}}{3}) \quad , \quad s = -(c_{12}^{\alpha} + \frac{2c_2^{\alpha}}{3})$$

e $\Delta C(x)$ designa a variação das constantes elásticas quando o campo magnético está no eixo x.

$$\text{Subtraindo 30 de 31, vem } \Delta C_{33}(c-b) = \frac{3}{2}(re_1^{\alpha,2} + se_2^{\alpha,2})$$

$$\text{Subtraindo 27 de 28, vem } \Delta C_{22}(a-b) = \frac{3}{2}(pe_1^{\alpha,2} + qe_2^{\alpha,2}) - c^{\gamma}e^{\gamma,2}$$

que é um sistema nas incógnitas $e_1^{\alpha,2}$ e $e_2^{\alpha,2}$, cuja solução é:

$$e_2^{\alpha,2} = \frac{3}{2} \frac{r(\Delta C_{22}(a-c) - c^{\gamma}e^{\gamma,2}) - p\Delta C_{33}(c-b)}{d}$$

$$e_1^{\alpha,2} = \frac{3}{2} \frac{q\Delta C_{33}(c-b) - s(\Delta C_{22}(a-c) - c^{\gamma}e^{\gamma,2})}{d}$$

$$\text{onde } d = (\frac{3}{2})^2(rq - sp).$$

Usando que das equações 20,21, 22, 23 e 24

$$\Delta C_{22}(a-c) = -(3A + B)\sigma^2 \quad , \quad \Delta C_{33}(c-b) = 3D\sigma^2, \quad c^{\gamma}e^{\gamma,2} = B$$

obtemos:

$$e_1^{\alpha,2} = \frac{3}{2} \left(\frac{3qD\sigma_{||}^2 + s(3A + 2B)\sigma_{\perp}^2}{d} \right) \quad (32)$$

$$e_2^{\alpha,2} = -\frac{3}{2} \left(\frac{r(3A + 2B)\sigma_{\perp}^2 + 3pD\sigma_{||}^2}{d} \right) \quad (33)$$

Multiplicando 27 por 2 e somando com 29, vem:

$$2\Delta C_{22}(a) + \Delta C_{22}(c) = 3(pe_1^{\alpha,0} + qe_2^{\alpha,0}) + 2c^\gamma e^{\gamma,2}$$

Multiplicando 30 por 2 e somando com 31, vem:

$$2\Delta C_{33}(b) + \Delta C_{33}(c) = 3(re_1^{\alpha,0} + se_2^{\alpha,0})$$

que é um sistema cuja solução é:

$$e_1^{\alpha,0} = \frac{3}{4} \left(\frac{qE\sigma^2 + s(4B - 3C)\sigma^2}{d} \right) \quad (34)$$

$$e_2^{\alpha,0} = -\frac{3}{4} \left(\frac{pE\sigma^2 + r(4B - 3C)\sigma^2}{d} \right) \quad (35)$$

Em termos das constantes elásticas, p, q, r e s podem ser escritos:

$$p = -\frac{7(C_{11} + C_{12}) + 2C_{33} + 11C_{13}}{27}, \quad q = -\frac{4C_{33} + 10C_{13} - 7(C_{11} + C_{12})}{54}$$

$$r = -\frac{4(C_{11} + C_{12}) + 5C_{33} + 4C_{12}}{27}, \quad s = -\frac{10C_{33} - 2C_{13} - 4(C_{11} + C_{12})}{54}$$

Podemos determiná-los a partir das constantes elásticas determinadas por Salama & al⁽⁶⁾, e seus valores são dados na tabela.

5. Usando então esses valores de p, q, r e s, calculamos os diversos $e_i^{\Gamma j}$ cujos valores, em função da temperatura e do campo magnético são dados na tabela 6. A partir desses dados podemos calcular $\delta\ell/\ell$. É preciso obter as expressões das deformações cartesianas em termos das combinações invariantes sob o grupo hexagonal. As expressões usadas são somente as que contem as deformações longitudinais:

$$e_{xx} = \frac{e^{\alpha,1}}{3} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e^{\alpha,2}}{6} + \frac{e_1^\gamma}{2}, \quad e_{yy} = \frac{e^{\alpha,1}}{3} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e^{\alpha,2}}{6} - \frac{e_1^\gamma}{2}$$

$$e_{zz} = \frac{e^{\alpha,1}}{3} + \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e^{\alpha,2}}{3}$$

$$\text{Sabemos que}^{(11)}: \frac{\delta\ell}{\ell} = \bar{e}_{xx}\beta_x^2 + \bar{e}_{yy}\beta_y^2 + \bar{e}_{zz}\beta_z^2$$

onde $\bar{e}_{ij}$ é o valor da deformação de equilíbrio à temperatura e campo dados, e β_i designa o cosseno diretor da direção em que medimos $\frac{\delta\ell}{\ell}$. Com as expressões acima, temos:

9,0kG

T(°K)	α_{10} e_1	α_{10} e_2	α_{12} e_1	α_{12} e_2	$e_{1,2}$
140	-9,004 10^{-4}	-4,031 10^{-3}	2,565 10^{-4}	-1,624 10^{-3}	2,020 10^{-5}
150	-6,347 10^{-4}	-2,917 10^{-3}	1,058 10^{-4}	-0,728 10^{-3}	-1,566 10^{-5}
160	-4,862 10^{-4}	-2,188 10^{-3}	0,268 10^{-4}	-0,447 10^{-3}	-3,166 10^{-5}

13,0kG

140	-1,878 10^{-3}	-8,413 10^{-3}	5,332 10^{-4}	-3,389 10^{-3}	-4,211 10^{-5}
150	-1,324 10^{-3}	6,093 10^{-3}	2,206 10^{-4}	-1,521 10^{-3}	-3,267 10^{-5}
160	-1,015 10^{-3}	-4,567 10^{-3}	0,558 10^{-4}	0,926 10^{-3}	-6,603 10^{-5}

15,5kG

140	-2,671 10^{-3}	-11,960 10^{-3}	7,609 10^{-4}	-4,820 10^{-3}	5,987 10^{-5}
150	-1,883 10^{-3}	-8,661 10^{-3}	3,136 10^{-4}	-2,160 10^{-3}	-4,643 10^{-5}
160	-1,443 10^{-3}	-6,492 10^{-3}	0,793 10^{-4}	-1,315 10^{-3}	-9,390 10^{-5}

18,0kG

140	-3,602 10^{-3}	-16,124 10^{-3}	10,262 10^{-4}	-6,497 10^{-3}	8,072 10^{-5}
150	-2,538 10^{-3}	-11,679 10^{-3}	4,230 10^{-4}	-2,913 10^{-3}	-6,262 10^{-5}
160	-1,945 10^{-3}	-8,750 10^{-3}	1,069 10^{-4}	-1,773 10^{-3}	-12,663 10^{-5}

20,00kG

140	-4,447 10^{-3}	-19,905 10^{-3}	12,669 10^{-4}	-8,022 10^{-3}	9,968 10^{-5}
150	-3,134 10^{-3}	-14,418 10^{-3}	5,222 10^{-4}	-3,596 10^{-3}	-7,733 10^{-5}
160	-2,402 10^{-3}	-10,811 10^{-3}	1,818 10^{-4}	-2,190 10^{-3}	-15,633 10^{-5}

Tabela 6 : e_{ij} em função do campo e temperatura.

$$\frac{\delta \ell}{\ell} = \left(\frac{\bar{e}^{\alpha,1}}{3} - \frac{2}{3} \frac{\bar{e}^{\alpha,2}}{6} + \bar{e}_1^{\gamma} \right) \beta_x^2 + \left(\frac{\bar{e}^{\alpha,1}}{3} - \frac{2}{3} \frac{\bar{e}^{\alpha,2}}{6} - \bar{e}_1^{\gamma} \right) \beta_y^2 + \\ + \left(\frac{\bar{e}^{\alpha,1}}{3} - \frac{2}{3} \frac{\bar{e}^{\alpha,2}}{3} \right) \beta_z^2$$

Se medimos $\frac{\delta \ell}{\ell}$ na direção c, $\beta_x = \beta_y = 0$ e $\beta_z = 1$, ou seja:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(c) = \frac{\bar{e}^{\alpha,1}}{3} + \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{\bar{e}^{\alpha,2}}{3}$$

que em termos dos $e_i^{\Gamma j}$ torna-se:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(c) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,0}) + \frac{1}{6}(e_1^{\alpha,2} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,2})(3\cos^2\theta - 1)$$

Analogamente, ao longo do eixo b, temos:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(b) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,0}}{2}) + \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,2} - \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,2}/2)(3\cos^2\theta - 1) - \\ - \frac{1}{2} e^{\gamma,2} \sin^2\theta \cos 2\phi$$

Escrevendo essas equações explicitamente para cada orientação do campo magnético, temos:

a) ondas em b, campo em a:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(b,a) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,0}}{2}) - \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,2} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,2}}{2}) - \frac{e^{\gamma,2}}{2}$$

b) ondas em b, campo em b:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(b,b) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,0}}{2}) - \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,2} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,2}}{2}) + \frac{e^{\gamma,2}}{2}$$

c) ondas em b, campo em c:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(b,c) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,0}}{2}) + \frac{2}{3}(e_1^{\alpha,2} - \sqrt{\frac{2}{3}} \frac{e_2^{\alpha,2}}{2})$$

d) ondas em c, campo em b:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(c,b) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,0}) - \frac{1}{6}(e_1^{\alpha,2} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,2})$$

e) ondas em c, campo em c:

$$\frac{\delta \ell}{\ell}(c,c) = \frac{1}{3}(e_1^{\alpha,0} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,0}) + \frac{1}{6}(e_1^{\alpha,2} + \sqrt{\frac{2}{3}} e_2^{\alpha,2})$$

A partir destas expressões podemos calcular os $\frac{\delta \ell}{\ell}$ e comparar com os dados de Rhyne & al⁽²⁾. Obtemos a tabela 7.

9,0 kg

T (°K)	$\frac{\delta l}{l}(b,a)$	$\frac{\delta l}{l}(b,b)$	$\frac{\delta l}{l}(b,c)$	$\frac{\delta l}{l}(c,b)$	$\frac{\delta l}{l}(c,c)$
140	$-4,150 \cdot 10^{-5}$	$-1,100 \cdot 10^{-5}$	$5,917 \cdot 10^{-4}$	$-1,219 \cdot 10^{-3}$	$-1,753 \cdot 10^{-3}$
150	$-3,130 \cdot 10^{-5}$	$-6,250 \cdot 10^{-5}$	$2,217 \cdot 10^{-4}$	$-0,944 \cdot 10^{-3}$	$-1,127 \cdot 10^{-3}$
160	$9,750 \cdot 10^{-5}$	$3,430 \cdot 10^{-5}$	$2,055 \cdot 10^{-4}$	$-0,702 \cdot 10^{-3}$	$-0,871 \cdot 10^{-3}$

13,0 kg

140	$-1,625 \cdot 10^{-4}$	$-7,829 \cdot 10^{-5}$	$11,574 \cdot 10^{-4}$	$-2,543 \cdot 10^{-3}$	$-3,661 \cdot 10^{-3}$
150	$1400 \cdot 10^{-4}$	$7,463 \cdot 10^{-5}$	$6,683 \cdot 10^{-4}$	$-1,930 \cdot 10^{-3}$	$-2,440 \cdot 10^{-3}$
160	$2,046 \cdot 10^{-4}$	$7,257 \cdot 10^{-5}$	$4,278 \cdot 10^{-4}$	$-1,465 \cdot 10^{-3}$	$-1,814 \cdot 10^{-3}$

15,5 kg

140	$-2,323 \cdot 10^{-4}$	$-1,125 \cdot 10^{-4}$	$16,468 \cdot 10^{-4}$	$-3,616 \cdot 10^{-3}$	$-5,203 \cdot 10^{-3}$
150	$1,988 \cdot 10^{-4}$	$1,060 \cdot 10^{-4}$	$9,494 \cdot 10^{-4}$	$-2,744 \cdot 10^{-3}$	$-3,468 \cdot 10^{-3}$
160	$2,909 \cdot 10^{-4}$	$1,031 \cdot 10^{-4}$	$6,078 \cdot 10^{-4}$	$-2,122 \cdot 10^{-3}$	$-2,501 \cdot 10^{-3}$

18,0 kg

140	$-3,134 \cdot 10^{-4}$	$-1,520 \cdot 10^{-4}$	$22,197 \cdot 10^{-4}$	$-4,877 \cdot 10^{-3}$	$-7,016 \cdot 10^{-3}$
150	$2,682 \cdot 10^{-4}$	$1,430 \cdot 10^{-4}$	$12,804 \cdot 10^{-4}$	$-3,700 \cdot 10^{-3}$	$-4,677 \cdot 10^{-3}$
160	$3,921 \cdot 10^{-4}$	$1,389 \cdot 10^{-4}$	$8,193 \cdot 10^{-4}$	$-2,807 \cdot 10^{-3}$	$-3,477 \cdot 10^{-3}$

20,0 kg

140	$-3,873 \cdot 10^{-4}$	$-1,879 \cdot 10^{-4}$	$27,404 \cdot 10^{-4}$	$-6,020 \cdot 10^{-3}$	$-8,661 \cdot 10^{-3}$
150	$-3,313 \cdot 10^{-4}$	$1,767 \cdot 10^{-4}$	$15,808 \cdot 10^{-4}$	$-4,567 \cdot 10^{-3}$	$-5,774 \cdot 10^{-3}$
160	$4,682 \cdot 10^{-4}$	$1,556 \cdot 10^{-4}$	$10,291 \cdot 10^{-4}$	$-3,476 \cdot 10^{-3}$	$-4,278 \cdot 10^{-3}$

Tabela 7: $\frac{\delta l}{l}(x,y)$ em função do campo e temperatura

Os dados de Rhyne & al⁽²⁾ indicam sem sombra de dúvida que as magnetoestrições medidas na região paramagnética são pelo menos uma ordem de grandeza menores que as estimadas através das constantes magnetoelásticas obtidas usando a teoria de Southern & Goodings⁽¹⁾. Não se dispõe de dados sobre $\frac{\delta \ell}{\ell}(c,c)$ e $\frac{\delta \ell}{\ell}(b,c)$. No entanto, Rhyne & al⁽²⁾ encontraram que a diferença em $\frac{\delta \ell}{\ell}(b,b)$ para campo zero e campo de 30 kG acima de 1300K é zero, dentro do erro experimental, enquanto nossas estimativas prevem magnetoestrições da ordem de $1,8 \cdot 10^{-4}$ a 1400K e campo de 20kG. Rhyne & al⁽²⁾ encontraram também que a magnetoestrição do eixo c com campo paralelo ao eixo b, a 1400K e 30 kG é $2,8 \cdot 10^{-4}$. Nossas estimativas dão, para campo de 20 kG, o valor de $6,02 \cdot 10^{-3}$, aproximadamente 30 vezes maior que o anterior. Também os valores de $\frac{\delta \ell}{\ell}(c,c)$, calculado anteriormente usando a relação $\frac{\delta \ell}{\ell} = k(T)\sigma^2$ e os estimados usando as constantes magnetoelásticas diferem bastante. Por exemplo, a 1400K e 20 kG, nossas estimativas dão $8,6 \cdot 10^{-3}$, enquanto que a interpolação anterior dá $1,24 \cdot 10^{-4}$, que é aproximadamente 70 vezes menor. Para comparação, colocamos juntos $\frac{\delta \ell}{\ell}(c,c)$ estimado e interpolado no gráfico 4.

Os gráficos 5, 6, 7 e 8 mostram os diversos $\frac{\delta \ell}{\ell}$ em função do campo magnético.

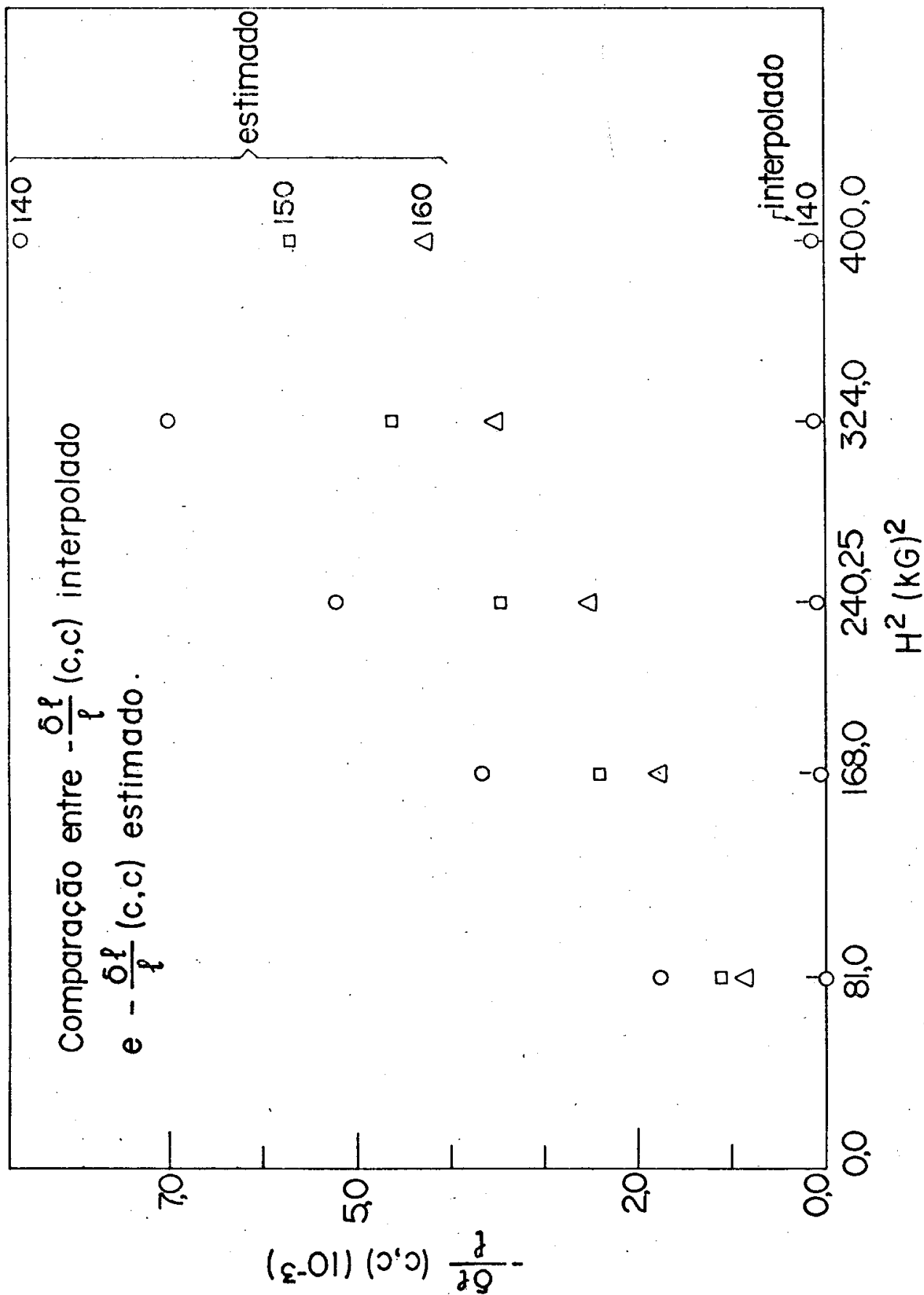
Conclusão:

Em face das discrepâncias entre teoria e experiência, a saber:

- a) as constantes magnetoelásticas calculadas dos dados mostram dependência na temperatura, particularmente a constante B, enquanto que a teoria prevê independência em relação à temperatura,
- b) as magnetoestrições calculadas usando as constantes magnetoelásticas e as expressões da contribuição magnetoelástica para as constantes elásticas são muito maiores que as medidas por

Rhyne & al⁽²⁾, particularmente $\frac{\delta \ell}{\ell}(c,c)$ e $\frac{\delta \ell}{\ell}(b,b)$.

podemos concluir que a teoria proposta por Southern & Goodings⁽¹⁾ não é satisfatória. A abordagem desses autores deve ser considerada como uma aproximação de primeira ordem, que os dados acima, e os obtidos por Kale⁽¹⁰⁾, mostram ser uma aproximação insuficiente. É provável que, levada até segunda ordem, essa abordagem ofereça resultados mais realísticos.



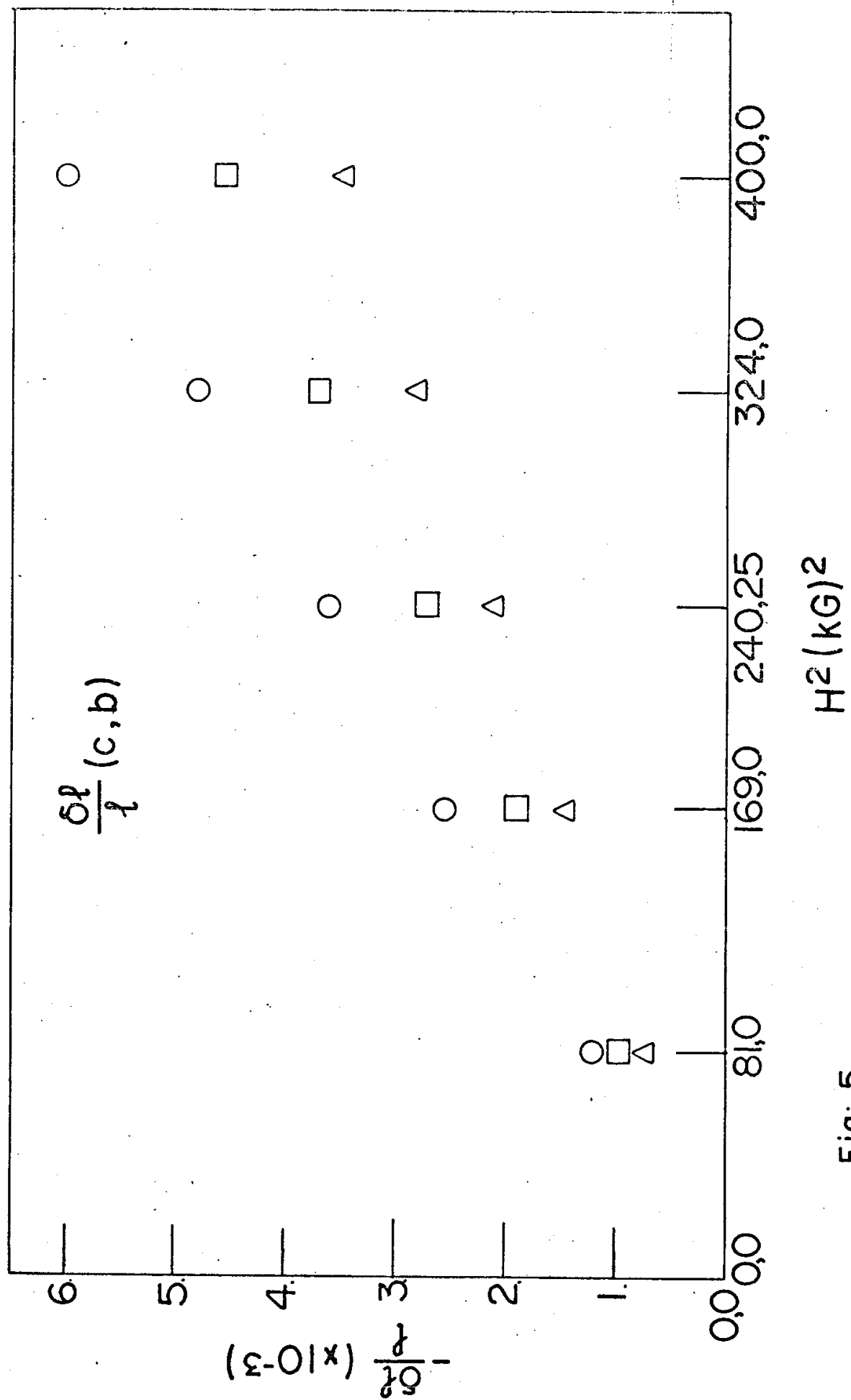


Fig: 5

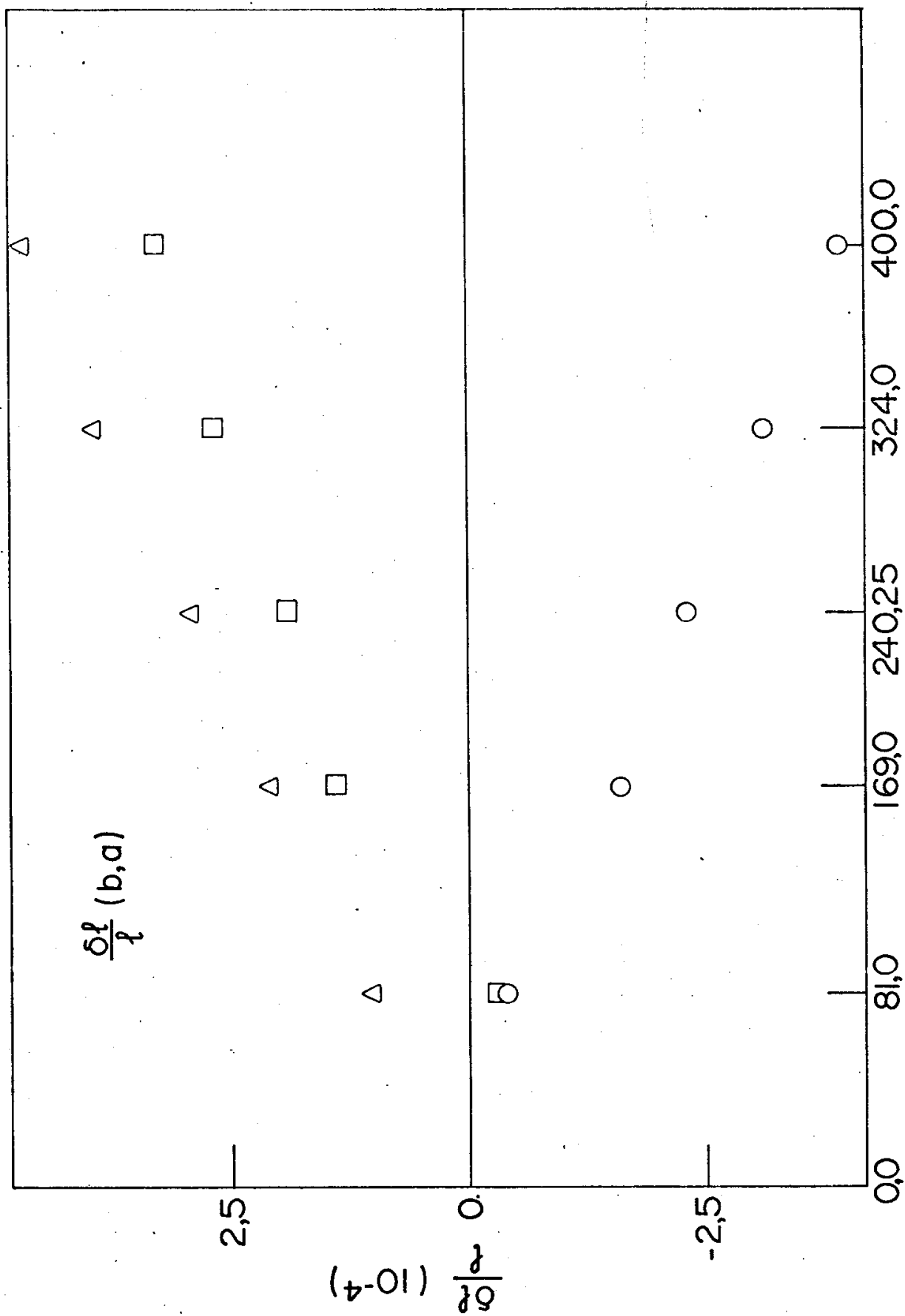


Fig:6

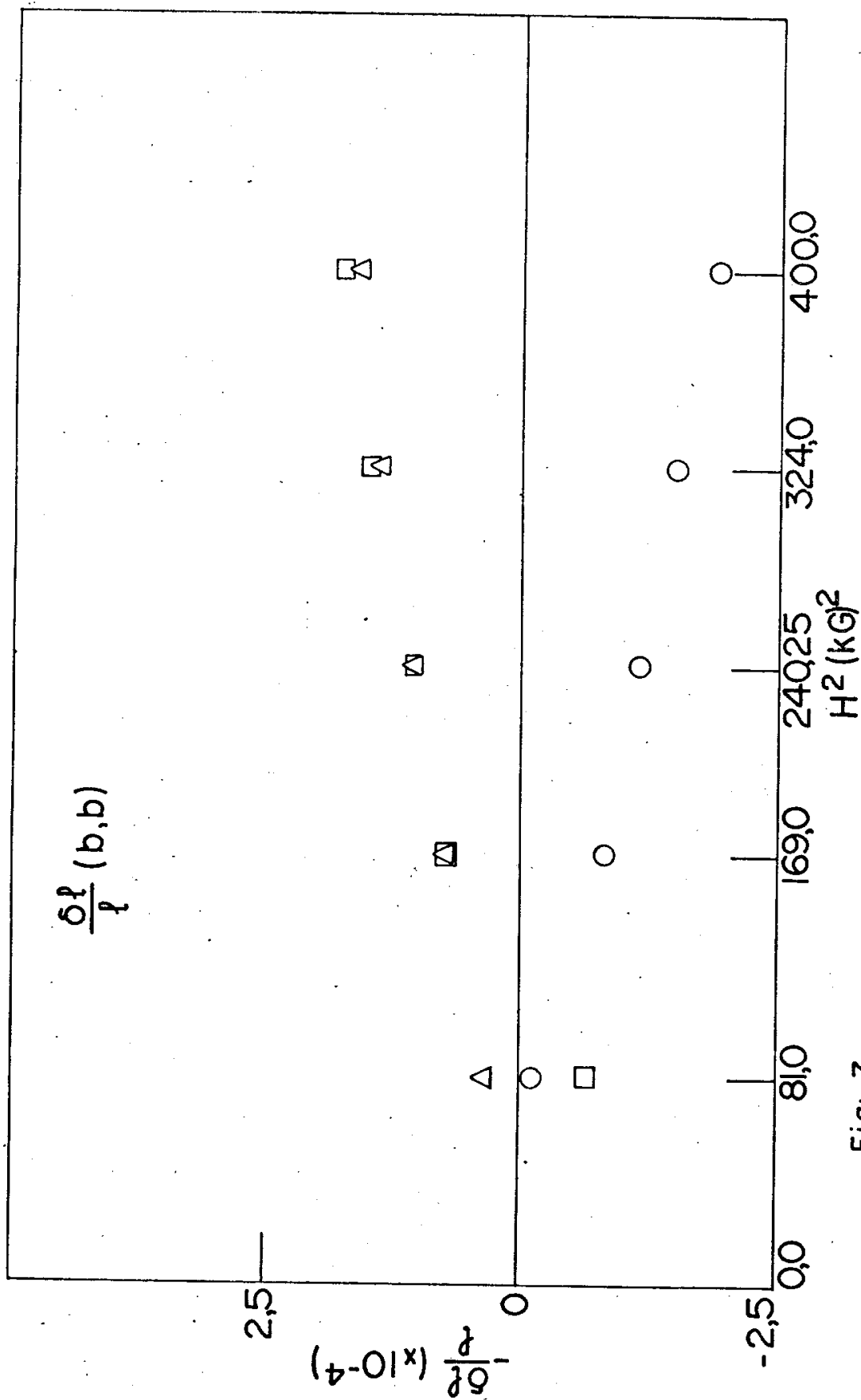


Fig: 7

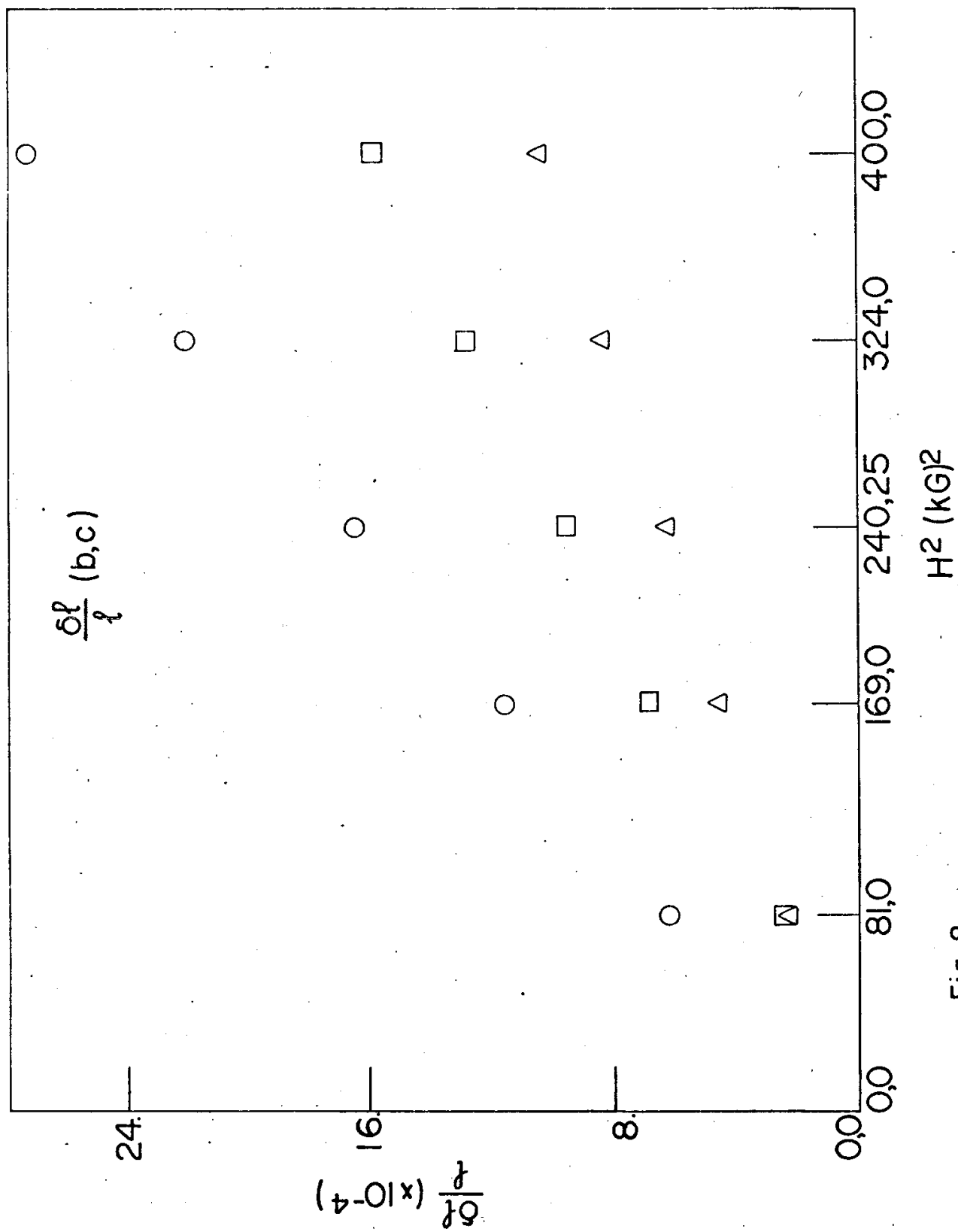


Fig: 8

B I B L I O G R A F I A

- 1) Southern & Goodings - Phy. Rev. 7 , 534, (1973).
- 2) Rhyne, Legvold & Rodine - Phy. Rev. 154, 266, (1967).
- 3) P. H. Martin - Magnetism in Solids, MIT Press, Camb. Mass.
- 4) Strandburg, Legvold & Spedding - Phy. Rev., 127, 2046, (1967).
- 5) Koehler, Cable, Wollan & Wilkinson - J. Phy. Soc. Japan, 17
Suppl. B-3, 32 (1962).
- 6) Salama, Brotzen & Donoho - J. Appl. Phy. 44, 180 (1973).
- 7) Papadakis - J. Acoust. Soc. Am. 1045,(1967).
- 8) K. N. R. Taylor & M. I. Darby - Physics of Rare-Earth Solids,
Chapman & Hall, London (1972).
- 9) J. D. Jackson - Classical Eletrodynamics, New York, John
Wiley & Sons (1962).
- 10) B. M. Kale - Tese de Mestrado - Magnetoelastic Coupling
in Paramagnetic Dysprosium, Rice University, (1974).
- 11) E. Callen & H. B. Callen - Phy. Rev. 139, A455 (1965).
- 12) P. L. Donoho - Dynamic Magnetoelastic Properties os Rare-
Earth Materials - resumo apresentado à NSF (USA).
- 13) W. F. Brown - J. Appl. Phy. 36, 994 (1965).
- 14) R. L. Melcher - Phy. Rev. Letters, 28, 1965 (1972).
- 15) D. E. Eastman - Phys. Rev. 148, 530, (1966).
- 16) R. L. Melcher - Phy. Rev. Letters, 25, 1201, (1970).
- 17) E. Callen & H. B. Callen - J. Phy. Chem. Solids. 16, 310,
(1960).