



EFEITOS DO CAMPO ELÉTRICO CRISTALINO SOBRE AS PROPRIEDADES DO COMPOSTO $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$

MORAIS, Edson Silva¹; MERCENA, Samuel Gomes¹.

RESUMO

Este trabalho apresenta uma análise dos resultados derivados de simulações baseadas em um modelo de spin, a fim de elucidar os efeitos do campo elétrico cristalino (CEF) sobre as propriedades magnéticas do composto intermetálico contendo terras raras $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$. Isso inclui a determinação dos parâmetros de troca J e parâmetros de CEF. Esses compostos apresentam propriedades físicas bastante interessantes, no entanto, não são bem exploradas na literatura. As atividades foram realizadas no Laboratório de Pesquisa em Materiais para Aplicações em Dispositivos Eletrônicos (LABMADE), localizado na Universidade Federal do Norte do Tocantins (UFNT), campus de Araguaína – TO.

Palavras-chave: Simulações. Terras Raras. Campo Elétrico Cristalino.

I. INTRODUÇÃO/JUSTIFICATIVA

O estudo das propriedades físicas de compostos intermetálicos contendo elementos terras raras possibilita a compreensão de diferentes fenômenos físicos de grande interesse científico, uma vez que o entendimento dessas propriedades pode facilitar a sua utilização em diversas aplicações tecnológicas nas diferentes áreas do conhecimento, tais como engenharia e medicina, bem como a compreensão de fenômenos como supercondutividade e o efeito magnetocalórico, são alguns exemplos disso (MERCENA, 2020).

Em particular, o composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$ apresenta propriedades físicas interessantes. É pouco explorado e possui uma literatura relativamente recente e pouco extensa. Por esta razão, este trabalho visa à exploração das propriedades

¹ Bolsista do Programa de Iniciação Científica (PIBIC UFNT); Prof. Dr. do Curso de Licenciatura em Física, da Universidade Federal do Norte do Tocantins (UFNT), Centro de Ciências Integradas (CCI). E-mail: edson.silva1@mail.uft.edu.br; samuelg.mercena@uft.edu.br.

físicas dessa família de compostos a partir de investigações teóricas (simulações computacionais), uma vez que apresentam potenciais propriedades físicas para serem exploradas.

II. BASE TEÓRICA

O composto intermetálico $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$ pertence a uma família de materiais que possuem uma estrutura cristalina tetragonal com um arranjo atômico em camadas distribuídas ao longo do eixo c , tornando-o bidimensional. O desenvolvimento do trabalho se concentra na exploração das propriedades magnéticas, com ênfase nos efeitos do campo elétrico cristalino (CEF) (MYERS, 1999; ARAKI, 2003; GABRIEL, 2020).

Recentemente, medidas das propriedades magnéticas e de transporte eletrônico foram realizadas em monocristais da série de compostos TRAgSb_2 ($\text{TR} = \text{Y, La-Nd, Sm, Gd-Tm}$). Muitos deles exibem fortes efeitos anisotrópicos devido ao campo elétrico cristalino (CEF) que quebra a degeneração do múltiplo de energia do estado fundamental. Além disso, compostos da série bidimensional TRAgBi_2 ($\text{TR} = \text{La-Nd, Sm, Gd}$) também foram treinados, com a maioria deles mostrando ordenamento antiferromagnético em baixas temperaturas (MYERS, 1999; ARAKI, 2003; GABRIEL, 2020, PETROVIC, 2003).

Todos esses estudos destacam a importância dos efeitos do campo elétrico cristalino para a descrição das propriedades magnéticas desses compostos.

III. OBJETIVOS

- **Geral:** Estudar as propriedades estruturais e magnéticas do composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$, a partir de simulação de dados experimentais relacionados à caracterização magnética utilizando um modelo de spin.
- **Específicos:** - Investigar o comportamento magnético não usual do composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$;
- Explorar os efeitos de CEF sobre as propriedades magnéticas do composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$.

IV. METODOLOGIA

O desenvolvimento do trabalho consistiu em:

- **Aspectos experimentais:** Síntese e caracterização experimental das amostras, desenvolvida pelo Prof. Dr. Samuel Gomes de Mercena no Instituto de Física "Gleb Wataghin" (IFGW) da Unicamp e do Programa de Pós-Graduação em Física (PPGFI) da UFS.
- **Aspectos teóricos:** Simulações computacionais utilizando uma Hamiltoniana [4] que leva em consideração os parâmetros de troca J (parte magnética) e os parâmetros de campo elétrico cristalino (CEF).

$$H = H_{CEF} + \sum_{i,k} J_{i,k} \vec{J}_i \cdot \vec{J}_k - g\mu_B \vec{H}_0 \cdot \sum_i \vec{J}_i \quad (\text{eq. 3.38})$$

$$H_{CEF} = A_2^0 \hat{O}_2^0 + A_4^0 \hat{O}_4^0 + A_4^4 \hat{O}_4^4 + A_6^0 \hat{O}_6^0 + A_6^4 \hat{O}_6^4 \quad (\text{eq. 3.39})$$

V. RESULTADOS E DISCUSSÃO

A Figura 1 ilustra como a susceptibilidade magnética (χ) varia em relação à temperatura (T) para diferentes concentrações de dopante. Essa medição foi realizada sob um campo magnético de $H = 1$ kOe, tanto na direção paralela quanto na direção perpendicular ao eixo c . Acima de 150 K, podemos observar um comportamento característico do tipo Curie-Weiss, enquanto em faixas de temperaturas mais baixas, torna-se evidente a presença de um eixo de fácil magnetização. Além disso, é notável que haja uma inversão desse eixo de fácil magnetização conforme a concentração de dopante variada, uma característica que pode ser atribuída a um possível aumento na entropia devido à introdução do íon Sb. Essa observação sugere que o campo elétrico cristalino (CEF) pode estar desempenhando um papel importante nesse comportamento magnético.

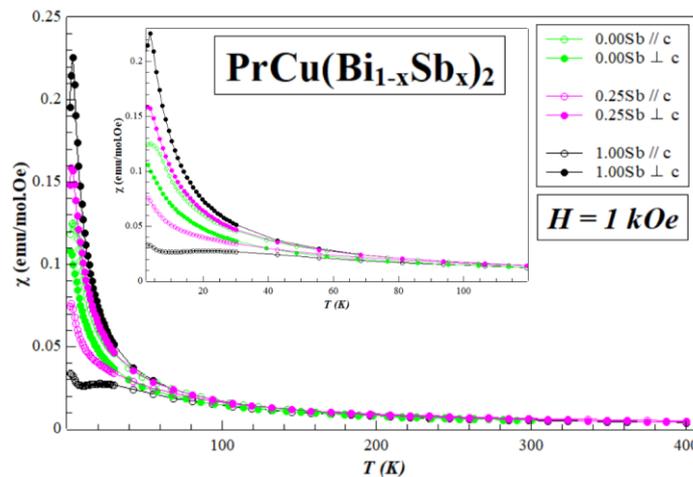


Figura 1: Susceptibilidade magnética χ em função da temperatura T para o composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$ para diferentes concentrações de Sb, medida com $H = 1$ kOe.

A Figura 2(a) exibe a susceptibilidade magnética (χ) policristalina em função da temperatura (T) em diferentes concentrações de dopante, medida com campo magnético de $H = 1 \text{ kOe}$. Enquanto a Figura 2(b) apresenta o ajuste de Curie-Weiss na região paramagnética do inverso da susceptibilidade policristalina, com curvas vermelhas sólidas representando esse ajuste em alta temperatura. A Tabela 1 contém os parâmetros Θ_{CW} e μ_{eff} calculadas a partir dessas configurações. Em todas as concentrações de dopante Sb, foi observada uma transição antiferromagnética do tipo T_N , e os valores de μ_{eff} calculados estão de acordo com os valores reportados na literatura para o íon de Pr^{3+} livre. Além disso, os valores de Θ_{CW} indicam uma interação antiferromagnética.

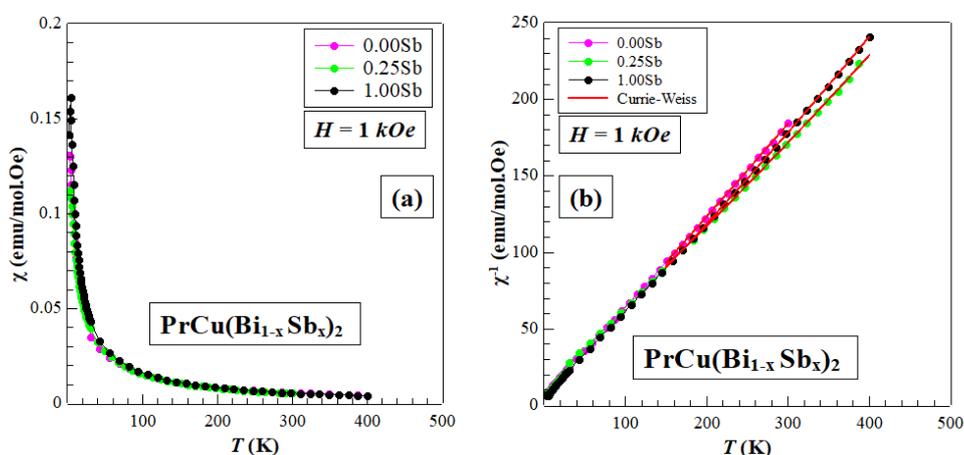


Figura 2: (a) susceptibilidade magnética χ em função da temperatura T , medidas com campo magnético $H = 1 \text{ kOe}$. (b) ajuste de Curie-Weiss, na região paramagnética do inverso da susceptibilidade.

Tabela 1: Parâmetros experimentais extraídos das medidas de magnetização: T_N , Θ_{CW} , μ_{eff} .

$\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$	T_N (K)	Θ_{CW} (K)	μ_{eff} (μ_B)
00	2,06	- 6,59	3,64
025	1,72	- 13,16	3,80
100	3,5	- 4,26	3,62

A Figura 3 mostra o ajuste da susceptibilidade magnética (χ) em relação à temperatura (T) para a concentração 0,00 de dopante Sb, com um campo magnético de $H = 1 \text{ kOe}$ aplicado nas direções paralela e perpendicular ao eixo c . Os dados experimentais estão em verde, enquanto a linha vermelha representa uma tentativa de ajuste usando uma Hamiltoniana de Campo Cristalino. O modelo descreve bem os dados apenas acima de 100 K (região paramagnética), mas não é adequado para região de baixa temperatura devido à anisotropia magnética, possivelmente devido

aos parâmetros de troca não estarem otimizados. Esse mesmo comportamento é apresentado na magnetização em relação ao campo magnético na Figura 4. Os parâmetros de ajuste extraídos da simulação estão na Tabela 2.

A Figura 4 mostra a magnetização (M) em relação ao campo magnético (H) para a amostra com concentração 0,00 de dopante Sb, a uma temperatura $T = 2$ K. Os pontos verdes abertos representam a magnetização medida na direção paralela ao eixo c , enquanto os pontos fechados representam a magnetização com campo aplicado perpendicularmente ao eixo c . As sólidas em vermelho referentes ao modelo de CEF não descrevem com boa qualidade os dados experimentais, indicando que os parâmetros de troca J podem não estar otimizados, embora os sinais estejam corretos, indicando um ordenamento antiferromagnético. Os parâmetros do Campo Cristalino (CEF) parecem estar próximos dos valores já relatados na literatura para composições relacionadas, reforçando a validade da metodologia empregada.

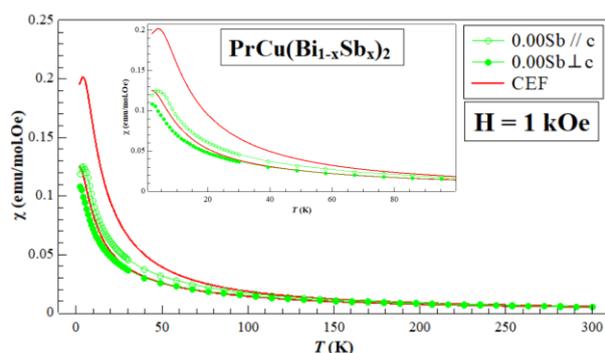


Figura 3: Susceptibilidade magnética χ em função da temperatura T para o composto $\text{PrCu}(\text{Bi}_{1-x}\text{Sb}_x)_2$ em concentração 00 de para o ion Sb, medida com $H = 1$ kOe. As linhas em vermelho correspondem ao Campo Elétrico Cristalino.

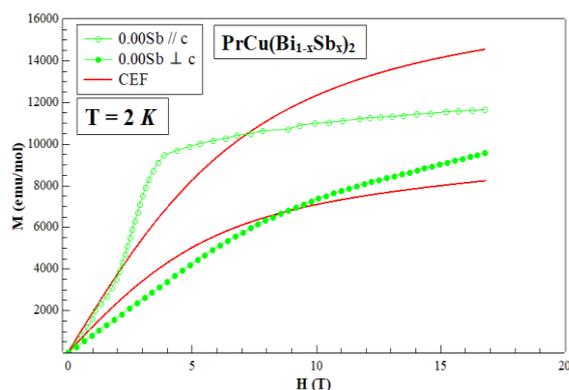


Figura 4: Magnetização em função do Campo Magnético aplicado nas direções paralela e perpendicular ao eixo c .

Tabela 2: Parâmetros de Campo Cristalino e de Troca extraídos dos ajustes de CEF.

Parâmetros de Campo Cristalino (CEF)		Parâmetros de Troca (J)	
B20	$1,33 \times 10^{-1}$	J₁	$-1,49 \times 10^{-3}$
B40	$-6,26 \times 10^{-4}$	J₂	$-1,10 \times 10^{-2}$
B44	$-2,49 \times 10^{-2}$	J₃	$1,47 \times 10^{-2}$
B60	$4,28 \times 10^{-5}$	J₄	$-3,40 \times 10^{-3}$
B64	$-3,28 \times 10^{-4}$		

A figura 5 apresenta os níveis de energia do estado fundamental da Terra Rara (TR) Pr^{3+} . Esse é um resultado preliminar relevante que mostra a presença de um singleto de energia no estado fundamental com o primeiro excitado próximo de 20 K que determinam o magnetismo nesse estado. Para a verificação da veracidade e a segurança desse comportamento, são necessárias medidas termodinâmicas tal qual Calor Específico em função da Temperatura para a realização de simulações mais detalhadas ou Espalhamento de nêutrons ou absorção de Raios-X.

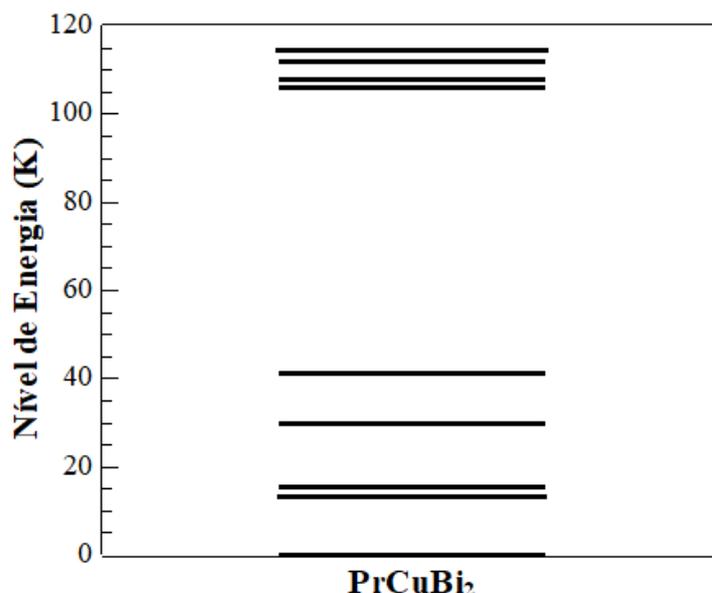


Figura 5: Diagrama de níveis de energia para o sistema PrCuBi_2 . Separação dos níveis de energia do multipletto do estado fundamental devido ao campo elétrico cristalino.

VI. CONCLUSÃO/CONSIDERAÇÕES FINAIS

Com base nos resultados e nas análises realizadas, foi possível chegar a algumas conclusões: 1- Os parâmetros de troca não forneceram uma descrição mais precisa da parte magnética em baixas temperaturas, em parte, devido à necessidade de otimização dos conjuntos de parâmetros. 2- Os parâmetros de CEF estão em conformidade com as informações relatadas na literatura, o que aumenta a confiabilidade da metodologia empregada neste estudo. Assim, é fundamental continuar com as investigações para melhor compreender as propriedades desses materiais magnéticos e suas possíveis contribuições para a inovação tecnológica.

VII. REFERÊNCIAS

- [1] K. D. MYERS, S. L. BUD'KO, I. R. FISHER, Z. ISLAM, H. KLEINKE, A. H. LACERDA, P. C. Canfield, Systematic Study Of Anisotropic Transport And Magnetic Properties Of $R\text{AgSb}_2$ ($R = \text{Y, La-Nd, Sm, Gd-Tm}$), Journal Of Magnetism And Magnetic Materials, 205, 27-52 (1999).
- [2] S. ARAKI, N. METOKI, A. GALATANU, E. YAMAMOTO, A. THAMIZHAVEL AND Y. ONUKI, Crystalstructure, Magnetic Ordering, And Magnetic Excitation In The 4f-Localized Ferromagnet CeAgSb_2 , Physical Review B 68, 024408 (2003).
- [3] G. S. FREITAS, M. M. PIVA, R. GROSS, C. B. R. JESUS, J. C. SOUZA, D. S. CHRISTTOVAM, N. F. OLIVEIRA JR., J. B. LEÃO, C. ADRIANO, J. W. LYNN AND P. G. PAGLIUSO, Tuning the crystalline electric field and magnetic anisotropy along the $\text{CeCuBi}_{2-x}\text{Sb}_x$ series, Physical Review B 102, 155129 (2020).
- [4] MERCENA, Samuel G. Magnetismo e efeitos de campo elétrico cristalino em materiais intermetálicos contendo elementos terras raras. 2020. 163f. Tese (Doutorado) - Programa de Pós-Graduação em Física, Universidade Federal de Sergipe, São Cristóvão, Sergipe, 2020.
- [5] M. M. PIVA, R. TARTAGLIA, G. S. FREITAS, J. C. SOUZA, D. S. CHRISTOVA, S. M. THOMAS, J. B. LEÃO, W. RATCLIFF, J. W. LYNN, C. LANE, J. X. ZHU, J. D. THOMPSON, P. F. S. ROSA, C. ADRIANO, E. GRANADO AND P. G. PAGLIUSO, Eletronic And Magnetic Properties Of Stoichiometric CeAuBi_2 , Physical Review B 101, 214431 (2020).
- [6] C. PETROVIC, S. L. BUD'KO, J. D. STRAND, P. C. CANFIELD, Anisotropic Properties Of Rare Earth Silver Dibismites, Journal Of Magnetism And Magnetic Materials 261, 210-221 (2003).

VIII. AGRADECIMENTOS

O presente trabalho foi realizado com o apoio financeiro da PROPESQ/UFNT, Edital n° 011/2022.