

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

ESTUDO DE TRANSIÇÕES DE FASE POR
IMPEDANCIOMETRIA

LUCAS ROYES SCHARDOSIM

Trabalho de conclusão de curso realizado sob orientação do Dr. Gilberto Luiz Ferreira Fraga e apresentado ao Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, em preenchimento parcial dos requisitos para obtenção do título de Bacharel em Física.

Porto Alegre, Novembro de 2009.

SUMÁRIO

RESUMO	3
1 INTRODUÇÃO	4
2 METODOLOGIA	5
2.1 Equipamento de Impedanciometria	5
2.1.1 Diagrama em blocos do Equipamento de Medida	6
2.2 Outros equipamentos utilizados	7
2.2.1 Máquina de eletroerosão.....	7
2.2.2 Máquina de sputtering.....	8
3 A IMPEDÂNCIA E A TEORIA ELETROMAGNÉTICA	8
3.1 Impedância	8
3.2 Ondas eletromagnéticas em condutores	9
3.3 Impedância em dispositivo com geometria cilíndrica	11
3.4 Expansão da impedância para baixas e altas frequências	15
4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS	17
4.1 Amostra Gd	17
4.1.1 Preparação da amostra	17
4.1.2 Resultados	18
4.2 Amostra Co₂NbSn	20
4.2.1 Preparação da amostra.....	20
4.2.2 Resultados.....	20
4.3 Amostra Ni₂Mn (Ga_{0.8}In_{0.2})	22
4.3.1 Preparação da amostra	22
4.3.2 Resultados.....	23
5 CONSIDERAÇÕES FINAIS	25
6 APÊNDICE	26
7 REFERÊNCIAS	28

RESUMO

Este trabalho tem como objetivo mostrar que a técnica de impedanciometria pode ser utilizada para determinar e caracterizar transições de fase. São analisados três sistemas distintos Gd, Co_2NbSn e $\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$ que através de medidas de impedância em função da temperatura, da frequência de corrente de sonda e do campo magnético externo aplicado evidenciam transições de ordem magnética e estrutural.

O texto divide-se em três capítulos principais. O primeiro denominado “Metodologia”, aborda os aspectos relacionados à técnica de medida e os equipamentos utilizados. O segundo, intitulado “A impedância e a teoria eletromagnética”, aborda a base teórica e mostra o comportamento da impedância em um meio condutor cilíndrico. No último, são apresentados os resultados experimentais e as análises desses resultados.

1 INTRODUÇÃO

A impedância como técnica experimental no estudo de propriedades magnéticas de compostos ferromagnéticos macios ganhou destaque em 1995 com o trabalho de Fernando Machado e co-autores [1]. Naquele trabalho os autores observaram uma grande variação da impedância em um fio de material amorfo a base de *Co* com a aplicação de campos magnéticos externos fracos. A utilização tecnológica deste efeito na confecção de sensores de campo magnético tornou esta área de pesquisa muito ativa nos últimos anos [2].

Por sua vez, a permeabilidade magnética pode variar de forma significativa com a temperatura quando o material se magnetiza ao passar por T_C (temperatura de Curie). Trabalhos publicados recentemente mostraram que a medida da impedância pode ser uma importante técnica experimental no estudo de transições de fases em compostos ferromagnéticos. A dependência da impedância com a temperatura pode ser empregada para caracterizar transições associadas com variações apreciáveis na permeabilidade magnética de compostos, tais como: transições ferromagnéticas em compostos Heusler [3,4], reordenamento de spins no Gadolínio [5], transições martensíticas na fase ferromagnética do composto *Ni₂MnGa* [5].

Podem-se listar algumas vantagens desta técnica com relação a outras técnicas convencionais, como susceptibilidade *ac*. A primeira delas é a ausência de campos desmagnetizantes, uma vez que as linhas de campo magnético produzidas pela corrente de sonda são fechadas (circunferenciais para amostras cilíndricas). Outra vantagem diz respeito aos campos magnéticos envolvidos, que por serem muito pequenos, da ordem de 10^{-2} *Oe* para correntes de *10mA*, permitem estudar efeitos dinâmicos com a amostra muito próxima de um estado magnético para campo nulo. Além disso, temos a possibilidade de estudar de forma simples a permeabilidade magnética transversa aplicando um campo magnético externo paralelo a corrente de sonda. Por fim, a simplicidade desta técnica experimental facilita o estudo de transições de fase por tratar-se de uma medida de transporte elétrico.

Neste trabalho são mostrados os resultados para três sistemas distintos. O primeiro é uma amostra de gadolínio (Gd), elemento terra rara. O segundo sistema é o composto Heusler *Co₂NbSn*. E o último também é um composto Heusler *Ni₂Mn(Ga_{0,8}In_{0,2})*.

2 METODOLOGIA

2.1 Equipamento de impedanciometria

O objetivo deste trabalho é mostrar que a medida de impedância pode ser uma técnica experimental útil no estudo de transições de fase. A técnica consiste em fazer passar uma corrente elétrica alternada ao longo da amostra e medir a diferença de potencial complexa V entre dois pontos na sua superfície. O equipamento utilizado permite medir a impedância em função da temperatura (78K até 320K), da frequência de corrente de sonda (0 até 250kHz) e do campo magnético externo aplicado (-500Oe até +500Oe).

As medidas foram feitas através do método de quatro pontos, dois para corrente e dois para a diferença de potencial. As amostras em geral, são paralelepípedos de $(1 \times 1 \times 10) \text{mm}^3$ e os contatos elétricos foram realizados com solda ponto visando a diminuição da resistência elétrica destes, exceto para caso do Gd, onde foi utilizada outra técnica.

Em relação aos equipamentos eletrônicos, temos: gerador de sinais, que envia a corrente elétrica senoidal para a amostra, a qual produz uma tensão complexa, lida pelo detector síncrono (“lock-in”); controlador de temperatura, que possui uma estabilidade térmica menor que 0,01K; fonte de corrente de $\pm 100\text{V}/1\text{A}$, responsável por alimentar a bobina geradora do campo magnético externo aplicado; amplificador de ganho 1:1, para desacoplar eletricamente o sistema; e dois multímetros, responsáveis por medir a corrente na amostra e a corrente enviada para a bobina. Além disso, há um criostato contendo nitrogênio líquido onde se encontra submerso uma câmara evacuada contendo o porta-amostra. Um computador controla o experimento e faz a aquisição de dados.

Salientamos que o “lock-in” detector síncrono, é capaz de discriminar as componentes real e imaginária da impedância. Isso é possível, pois através do gerador de sinais aplicamos uma referência para o “lock-in” e desta forma é possível obter o canal que está em fase (resistência) e o sinal que está defasado a 90° (reatância).

Todos os equipamentos de medidas são controlados pelo computador através de uma interface GPIB (“General Purpose Interface Bus”). O programa foi construído em linguagem QBasic, onde diversas sub-rotinas controlam a leitura e envio de comandos para os equipamentos.

Na figura 1, vemos: à esquerda o detector síncrono, o gerador de sinais, o controlador de temperatura, os multímetros e uma fonte de corrente. Ao centro: o criostato contendo nitrogênio líquido, a câmara evacuada, onde se encontra o porta amostra, e uma bobina para produção do campo magnético externo. À direita, o computador com a interface controladora GPIB.

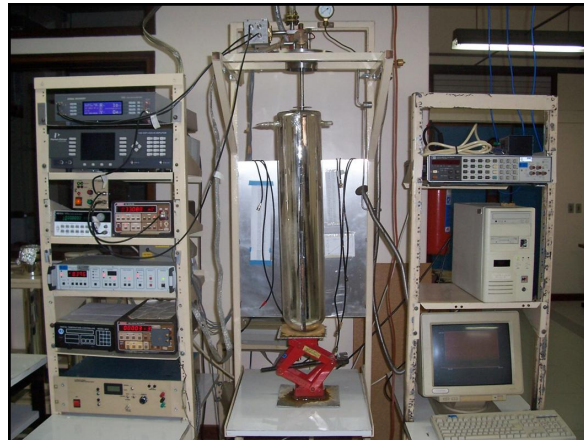


Figura 1 - Equipamento de Impedanciometria

2.1.1 Diagrama em blocos do Equipamento de Medida

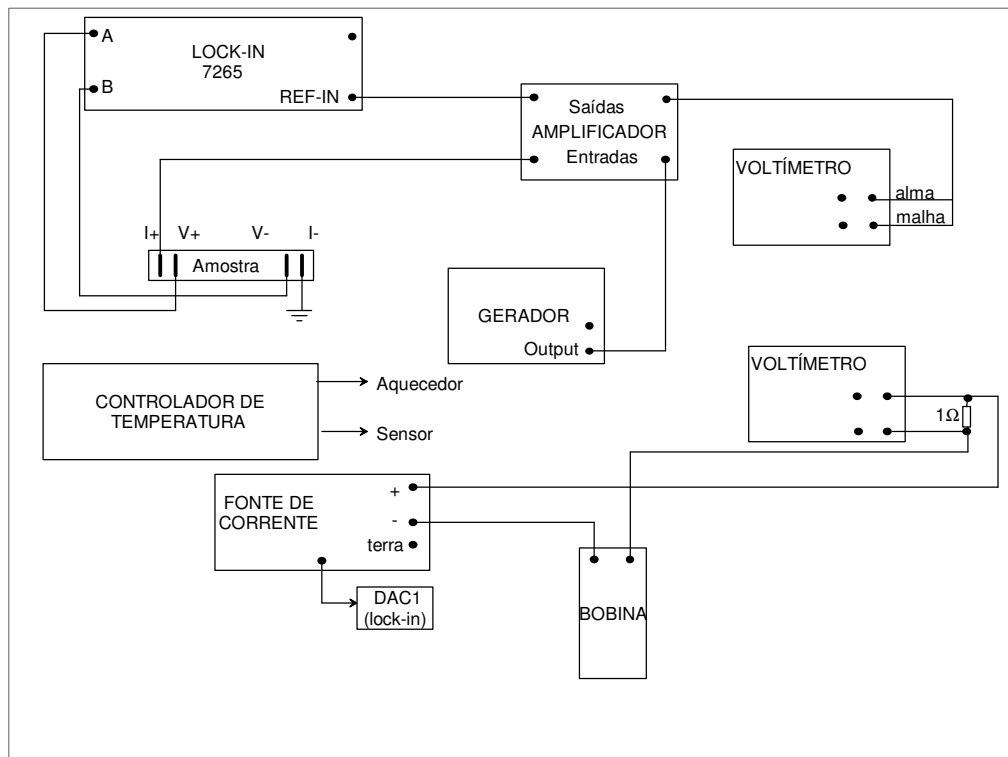


Figura 2: Diagrama em blocos do equipamento de impedanciometria

Na figura 2 vemos o diagrama em blocos do equipamento de impedanciometria. Assim, podemos analisá-lo a partir do gerador de sinais que envia uma corrente de sonda senoidal para a amostra através do amplificador. Na amostra, é gerada uma diferença de potencial complexa que é lida pelo "lock-in". Na região inferior da figura 2, temos o controlador de temperatura que através de um sensor CGR("Carbon Glass Resistor") mantém a temperatura desejada na amostra. Também, há uma fonte de corrente ligada à bobina geradora do campo magnético externo aplicado e dois voltímetros responsáveis por medir a corrente na amostra e na bobina.

2.2 Outros equipamentos utilizados

2.2.1 Máquina de eletroerosão



Figura 3. - Máquina de eletroerosão à fio

Na figura 3, vemos máquina de eletroerosão que possui os seguintes componentes: painel de comando, braço hidráulico, mesa e a cuba. Foi utilizada para cortar as amostras deste trabalho. Este é um método de usinagem que envolve descargas elétricas entre um anodo e um catodo imersos em um fluido dielétrico.

2.2.2 Máquina de “sputtering”



Figura 4 - Máquina de Sputtering

Na figura 4, temos a máquina de sputtering que é composta por vários equipamentos: Bomba de vácuo rotativa, difusora, fonte de alta tensão, sensor de médio vácuo Penning e sensor de alto vácuo Pirani. Utilizada para confeccionar os terminais elétricos na amostra de Gd. Neste caso, foi necessário confeccionar uma pequena máscara que deixou exposta apenas as regiões onde foram colados os contatos. Após, foi realizado o “sputtering”, no qual uma fina camada de prata foi depositada nas posições expostas da amostra. Então, remove-se a máscara e os contatos de fio de cobre são colados utilizando-se de cola prata.

3 A IMPEDÂNCIA E A TEORIA ELETROMAGNÉTICA

3.1 Impedância

Para compreender melhor o que é impedância, é necessário entender um circuito elétrico composto por três dispositivos discretos: resistor, capacitor, indutor e uma fonte conforme a figura 5:

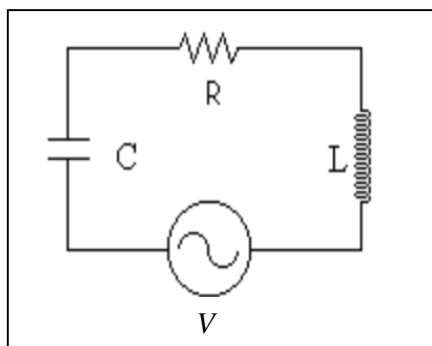


Figura 5: Circuito RLC onde R representa a resistência; L, a indutância; C, a capacitância; e V, a fonte de tensão alternada

Onde a taxa de energia transferida pela fonte é:

$$VI = RI^2 + \frac{d}{dt} \left(\frac{LI^2}{2} \right) + \frac{d}{dt} \left(\frac{q^2}{2C} \right) \quad (3.1.1)$$

Onde:

RI^2 é a energia dissipada por efeito Joule no resistor,
 $LI^2/2$ é a energia no indutor,
 $q^2/2C$ é a energia armazenada no capacitor.

Supondo que na equação 3.1.1 V e I são harmônicos monocromáticos $I = I_0 e^{-i\omega t}$ e substituindo, obtém-se:

$V = [R - i(\chi_L + \chi_C)]I$. Onde $\chi_L = \omega L$ e $\chi_C = \frac{1}{\omega C}$ são as reatâncias indutiva e capacitiva respectivamente. Defini-se a impedância como sendo, $Z = \frac{V}{I} = R + iX$, onde:

$$|Z| = \sqrt{R^2 + (\chi_L + \chi_C)^2} \quad \text{e o ângulo entre a corrente e a força eletromotriz é;}$$

$$\phi = \tan^{-1} \left(\frac{\chi_L - \chi_C}{R} \right)$$

A componente real R está em fase com a corrente elétrica e a componente imaginária X defasada de 90° .

3.2 Ondas eletromagnéticas em condutores

No sistema internacional de unidades, as equações de Maxwell dizem [6]:

$$\nabla \cdot \vec{D} = \rho_f$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}$$

$$\nabla \times \vec{H} = \vec{J}_f + \frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$$

Onde,

\vec{E} : Campo elétrico

\vec{B} : Indução magnética

\vec{D} : Deslocamento elétrico

\vec{H} : Campo magnético

\vec{J}_f : Densidade de corrente elétrica livre

Aplicando as equações de Maxwell para um condutor não carregado e desconsiderando a corrente de deslocamento $\frac{\partial \vec{D}}{\partial t}$ frente à densidade de corrente livre \vec{J}_f , temos:

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \vec{D} &= 0 \\ \nabla \cdot \vec{B} &= 0 \\ \nabla \times \vec{E} &= -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{H} &= \vec{J}_f\end{aligned}$$

Assim, a permeabilidade magnética μ , a permissividade elétrica ϵ e a condutividade elétrica σ são grandezas escalares que possuem as seguintes relações com o campo elétrico, campo magnético e densidade de corrente em uma aproximação linear, isotrópica e homogênea:

$$\begin{aligned}\vec{D} &= \epsilon \vec{E} \\ \vec{B} &= \mu \vec{H} \\ \vec{J}_f &= \sigma \vec{E}\end{aligned}$$

Agora, reescrevendo as equações de Maxwell em função dessas grandezas escalares, temos:

$$\begin{aligned}\nabla \cdot \vec{E} &= 0 \\ \nabla \cdot \vec{H} &= 0 \\ \nabla \times \vec{E} &= -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \\ \nabla \times \vec{H} &= \sigma \vec{E}\end{aligned}$$

Utilizando a identidade vetorial $\nabla \times \nabla \times \vec{A} = \nabla(\nabla \cdot \vec{A}) - \nabla^2 \vec{A}$ e aplicando-a nas duas últimas equações, temos:

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial}{\partial t} (\nabla \times \vec{H}) = -\mu \frac{\partial}{\partial t} (\sigma \vec{E})$$

$$\nabla \times \nabla \times \vec{E} = \nabla(\nabla \cdot \vec{E}) - \nabla^2 \vec{E} = -\sigma \mu \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}$$

$$\boxed{\nabla^2 \vec{E} = \sigma \mu \frac{\partial \vec{E}}{\partial t}} \quad (3.2.1)$$

E de forma análoga para o campo magnético,

$$\boxed{\nabla^2 \vec{H} = \sigma\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}} \quad (3.2.2)$$

3.3 Impedância em dispositivo com geometria cilíndrica

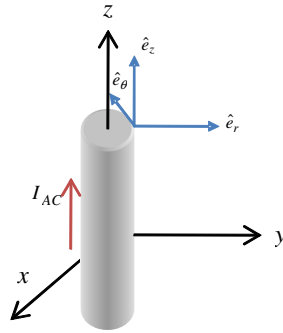


Figura 6 - Sistema de coordenada para o cálculo da impedância em uma geometria cilíndrica.

Supondo que a solução temporal das equações 3.2.1 e 3.2.2 seja um harmônico simples,

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_s(\vec{r})e^{-i\omega t} \quad (3.3.1)$$

$$\vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{H}_s(\vec{r})e^{-i\omega t} \quad (3.3.2)$$

Substituindo respectivamente nas equações 3.2.1 e 3.2.2, ficamos:

$$\nabla^2 \vec{E}_s + i\omega\sigma\mu \vec{E}_s = 0$$

$$\nabla^2 \vec{H}_s + i\omega\sigma\mu \vec{H}_s = 0$$

Assumindo $k^2 = -i\omega\sigma\mu$ e escrevendo desta forma, $k = \pm(1+i)\sqrt{\frac{\mu\sigma\omega}{2}}$ podemos definir o comprimento de penetração δ da seguinte forma:

$$\delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}}$$

Então,

$$\nabla^2 \vec{E}_s + k^2 \vec{E}_s = 0 \quad (3.3.3)$$

$$\nabla^2 \vec{H}_s + k^2 \vec{H}_s = 0 \quad (3.3.4)$$

Neste caso, torna-se necessário escrever o Laplaciano ∇^2 em coordenadas cilíndricas, vejamos:

$$\nabla^2 = \left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right)$$

Substituindo o laplaciano na equação 3.3.3 e realizando uma troca de variável $u = k.r$, temos:

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial r^2} + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} \right) \vec{E}_s + k^2 \vec{E}_s = 0$$

$$\frac{\partial u}{\partial r} = k, \quad \frac{\partial E_s}{\partial r} = \frac{\partial E_s}{\partial u} \frac{\partial u}{\partial r} = k \frac{\partial E_s}{\partial u}, \quad \frac{\partial^2 E_s}{\partial r^2} = k^2 \frac{\partial^2 E_s}{\partial u^2}$$

$$\frac{k^2}{u} \frac{\partial E_s}{\partial u} + k^2 \frac{\partial^2 E_s}{\partial u^2} + k^2 E_s = 0 \quad \times \frac{u^2}{k^2}$$

$$u \frac{\partial E_s}{\partial u} + u^2 \frac{\partial^2 E_s}{\partial u^2} + u^2 E_s = 0 \quad (3.3.5)$$

Agora, comparando a equação acima com a equação diferencial de Bessel [7]:

$$x \frac{\partial y}{\partial x} + x^2 \frac{\partial^2 y}{\partial x^2} + (x^2 - n^2) y = 0, \quad n \geq 0$$

Verificamos que a equação 3.3.5 é um caso particular da equação de Bessel para $n=0$ que possui como solução as funções de Bessel J_n .

Desta forma, a solução espacial para o campo elétrico fica:

$E_s = A J_0(u)$, onde A é uma constante arbitrária. Com isso, a solução total pode-se ser escrita da seguinte forma:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = A J_0(kr) e^{-i\omega t} \hat{e}_z$$

Aplicando a equação $\nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t}$, podemos escrever uma relação para o campo magnético.

$$\nabla \times \vec{E} = \begin{bmatrix} \hat{e}_r & \hat{e}_\theta & \hat{e}_z \\ \frac{\partial}{\partial x} & \frac{\partial}{\partial y} & \frac{\partial}{\partial z} \\ 0 & 0 & E_s \end{bmatrix} e^{-i\alpha r} = -\frac{\partial E_s}{\partial r} \hat{e}_\theta e^{-i\alpha r} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} = -\mu(-i\omega \vec{H}_s e^{-i\alpha r})$$

E usando a equação 3.3.2 para fazer a derivada temporal, temos:

$$\frac{\partial E_s}{\partial r} \hat{e}_\theta e^{-i\alpha r} = \mu(-i\omega \vec{H}_s e^{-i\alpha r})$$

$$\frac{iA \hat{e}_\theta}{\mu\omega} \frac{\partial J_0(kr)}{\partial r} = \vec{H}_s$$

Usando a forma de recorrência das funções de Bessel $\frac{d}{dx}[x^{-n} J_n(x)] = -x^{-n} J_{n+1}(x)$

encontramos a equação para o campo magnético:

$$\vec{H}_s = -\frac{iAk}{\mu\omega} J_1(kr) \hat{e}_\theta$$

Então, podemos escrever as equações espaciais do campo elétrico e magnético:

$$\begin{array}{l} E_s = AJ_0(kr) \\ H_s = -\frac{iAk}{\mu\omega} J_1(kr) \end{array}$$

Já a impedância é definida como:

$$Z = \frac{V}{I}$$

Onde se pode escrever o potencial elétrico $V = E_s \cdot l$ e l é o comprimento do fio e I é a corrente elétrica que passa pelo condutor. Já esta, pode ser expressa através da lei de Ampère:

$$\int \vec{H}_s \cdot \vec{dl} = I \quad \text{tem-se que} \quad I = 2\pi a H_s \quad \text{onde } a \text{ é o raio da seção circular do condutor.}$$

Assim, $Z = \frac{V}{I} = \frac{AJ_0 l}{-2\pi a \frac{iAk}{\mu\omega} J_1} = \frac{i\mu\omega J_0}{2\pi ak J_1} = \frac{i\mu\omega ka}{2\pi a^2 k^2} \frac{J_0}{J_1}$ e substituindo $k^2 = -i\omega\sigma\mu$

$$Z = \frac{1}{2} \frac{l}{a^2 \pi \sigma} ka \frac{J_0}{J_1}$$

$$Z = \frac{1}{2} R_{DC} ka \frac{J_0(ka)}{J_1(ka)}$$

Onde $R_{DC} = \frac{1}{a^2 \pi \sigma}$ é a resistência elétrica para frequência nula.

(3.3.6)

Lembrando que $k = \frac{1+i}{\delta}$ e a impedância Z pode ser escrito com uma componente real (resistência) mais uma componente imaginária (reatância) $Z = R + iX$.

A expressão (3.3.6) é a impedância de um fio cilíndrico retilíneo “infinito” ($l \gg a$) deduzido por Landau [8].

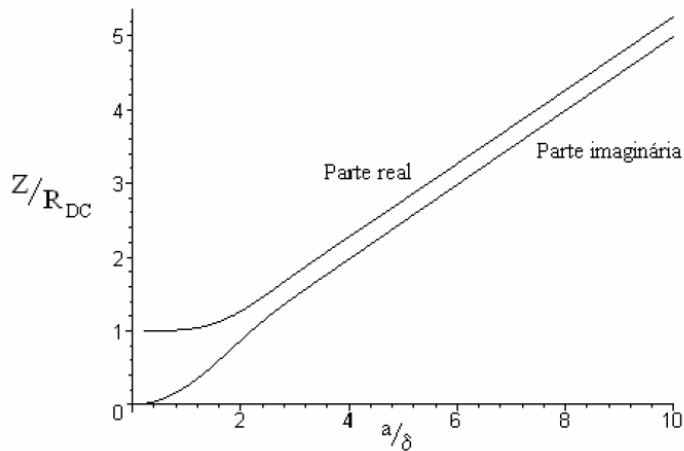


Figura 7 – Curva Universal

Na figura 7, temos a curva universal deduzida pela primeira vez por Landau onde mostra o efeito pele (“skin effect”) que consiste na expulsão da corrente elétrica para a superfície do condutor. Consequentemente há uma diminuição da área efetiva do material e com isso, ocorre o aumento da resistência elétrica no regime de altas frequências.

3.4 Expansão da impedância para baixas e altas frequências

Para analisar o comportamento da impedância em função da frequência, podemos expandir a sua função em dois regimes distintos. Assim, expandiremos a própria função de Bessel nesses limites. Vejamos:

$$J_n(x) = \sum_0^{\infty} \frac{(-1)^k (x/2)^{n+2k}}{k! \Gamma(n+k+1)} \quad \text{Funções de Bessel de ordem } n$$

No caso particular de $n=0, 1$:

$$J_0(x) = 1 - \frac{x^2}{2^2} + \frac{x^4}{2^2 \cdot 4^2} - \frac{x^6}{2^2 \cdot 4^2 \cdot 6^2} + \frac{x^8}{2^2 \cdot 4^2 \cdot 6^2 \cdot 8^2} - \dots$$

$$J_1(x) = \frac{x}{2} - \frac{x^3}{2^2 \cdot 4} + \frac{x^5}{2^2 \cdot 4^2 \cdot 6} - \frac{x^7}{2^2 \cdot 4^2 \cdot 6^2 \cdot 8} + \frac{x^9}{2^2 \cdot 4^2 \cdot 6^2 \cdot 8^2 \cdot 10} + \dots$$

Então, para baixas frequências, temos:

$$\text{Relembrando, } k = \frac{1+i}{\delta} \quad \delta = \sqrt{\frac{2}{\mu\sigma\omega}} \quad J_n(x) = J_n(ka)$$

Assim quando $\omega \rightarrow 0$, $k \rightarrow 0$, $a/\delta \rightarrow 0$ e $x = \frac{1+i}{\delta} a$

Com isso, ficaremos apenas com os primeiros termos da série.

$$R = R_{DC} \left[1 + \frac{1}{48} \left(\frac{a}{\delta} \right)^4 - \frac{1}{2880} \left(\frac{a}{\delta} \right)^8 + \dots \right] \quad e$$

$$X = R_{DC} \left[-\frac{1}{4} \left(\frac{a}{\delta} \right)^2 + \frac{1}{384} \left(\frac{a}{\delta} \right)^6 + \dots \right]$$

Considerando apenas o primeiro termo de cada expansão e substituindo δ , temos:

$$R = R_{DC} \quad X = \frac{-a^2 \sigma \mu R_{DC}}{8} \omega$$

Sendo $L = \frac{\mu l}{8\pi}$ a indutância de um cilindro maciço, podemos escrever a impedância como

$Z = R_{DC} - iL\omega$, que é a impedância de um circuito elétrico que possui um resistor R e um indutor L como elementos discretos.

Então, para altas frequências, temos:

Para $x \rightarrow \infty \left(\frac{a}{\delta} \gg 1 \right)$ as funções de Bessel ficam:

$$Y_0(x\sqrt{2i}) = x^{-1/2} e^{(1-i)x}$$

$$Y_1(x\sqrt{2i}) = - \left[- \left(\frac{1}{2} \right) x^{-3/2} \frac{e^{-ix\sqrt{2i}}}{\sqrt{2i}} + x^{-1/2} (-i) e^{-ix\sqrt{2i}} \right]$$

No limite $x \rightarrow \infty$, o primeiro termo entre colchetes pode ser desprezado, obtendo-se:

$$J_1(x) = iJ_0$$

Então a equação 3.2.6 fica:

$$Z = -\frac{i}{2} R_{DC} k a$$

Substituindo $k = (1+i) \sqrt{\frac{\mu\sigma\omega}{2}}$ e separando na parte real e imaginária da impedância, temos:

$$R = a R_{DC} \sqrt{\frac{\mu\sigma}{8}} \sqrt{\omega}$$

$$X = -a R_{DC} \sqrt{\frac{\mu\sigma}{8}} \sqrt{\omega}$$

Na figura 8, é mostrada a função de Landau e suas expansões para baixas e altas frequências em escala logarítmica.

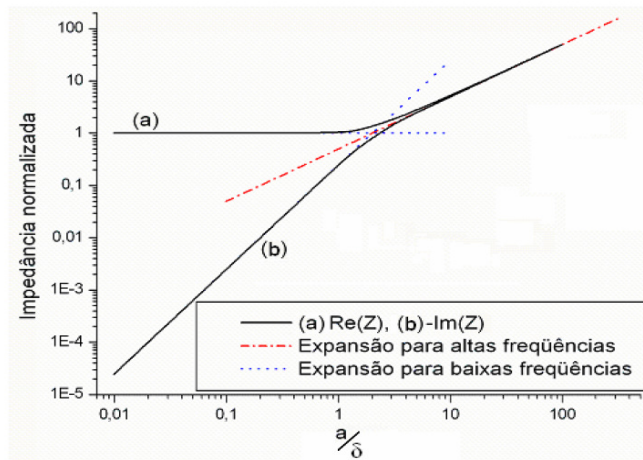


Figura 8 – Partes reais e imaginárias da Função de Landau e suas expansões para baixas e altas frequências.

4. RESULTADOS EXPERIMENTAIS

4.1 Amostra Gd [9]

4.1.1 Preparação da amostra

A amostra inicial consiste em uma porção de gadolínio puro 99,9%. A partir deste material foram produzidas três amostras com duas geometrias bem definidas. Para cortar o material, utilizamos o processo de eletroerosão à fio e os contatos elétricos foram confeccionados colando fios de cobre na superfície da amostra previamente depositada pelo método de “sputtering”. Utilizamos de cola prata para a fixação dos contatos.

Foram construídas três amostras das quais a que possuía a geometria de um paralelepípedo com secção reta quadrada foi escolhida para a realização das medidas. Não existe uma função analítica para a impedância de amostras com geometrias diferentes de cilíndrica e lâmina infinita. É possível mostrar por simulações [10] que o paralelepípedo com secção reta quadrada é a geometria que apresenta menor diferença, 10% para baixas frequências, na impedância quando comparada com a geometria cilíndrica, desde que a lateral do quadrado da secção seja igual ao diâmetro do cilindro. Tudo isto é importante quando

queremos obter a permeabilidade magnética através das medidas de impedância, porém, este não é o objetivo deste trabalho.

Sendo assim, foram realizados quatro tipos de medidas. São elas: (Impedância x frequência), (Impedância x Temperatura), (Impedância x Campo Magnético) e (Impedância x Temperatura com Campo Magnético). Além do mais, em todos estes tipos de medidas, foi possível separar a impedância na sua parte real e imaginária.

4.1.2 Resultados

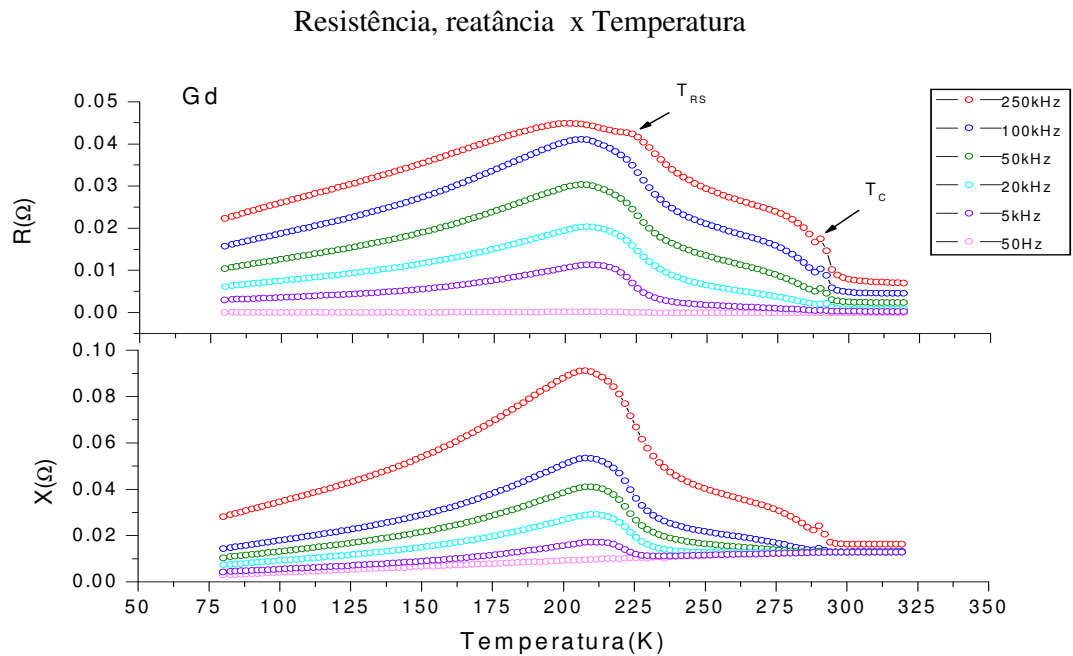


Figura 9 - Resistência (R) e Reatância (X) em função da Temperatura. $T_{RS}=226K$ (Temperatura de Reorientação de Spins) $T_C=290K$ (Temperatura de Curie) Corrente de sonda $I=20mA$

O Gd é um elemento ferromagnético de estrutura hexagonal com $T_C=293K$. Em temperaturas baixas ocorre uma nova ordem magnética chamada ordenamento de spin, onde os momentos magnéticos se alinham com o eixo cristalino c da estrutura hexagonal $T_{RS}=226K$ (temperatura de reorientação de spin). Na figura 9, são mostradas as medidas de resistência e a reatância em função da temperatura para frequências de corrente de sonda entre 50Hz e 250kHz

Podemos notar que no gráfico da (Resistência x Temperatura) existem anomalias que acontecem exatamente nestas temperaturas. Apesar de este fenômeno ser estudado por outras técnicas, como difração de neutros, também é possível verificar estas anomalias através da impedanciometria.

Resistência(R), reatância(X) x Frequência

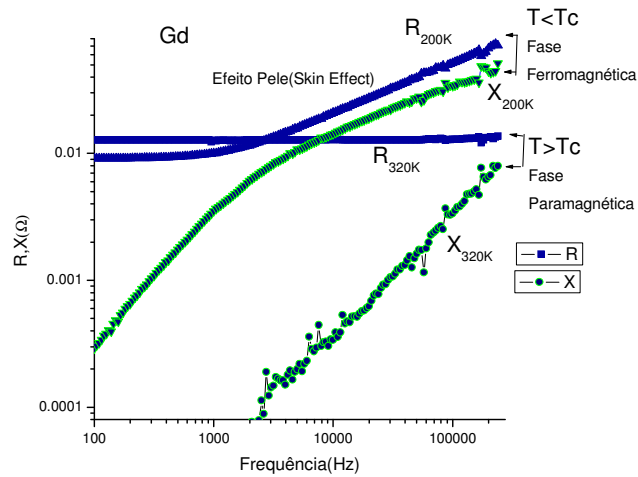


Figura 10 - Resistência (R) e reatância (X) em função da Frequência. Corrente de sonda I=20mA para o Gd a uma temperatura de 200K(fase ferromagnética e 320K(fase paramagnética).

Na figura 10, temos medidas de resistência e impedância em função da frequência para duas temperaturas diferentes. Na primeira isoterma, a amostra encontra-se na fase ferromagnética(T=200K) e é evidenciado o efeito skin. Na segundo isoterma (T=320K), a amostra encontra-se na fase paramagnética, onde não existe mais ordem magnética.

Impedância(Z) x Campo magnético(H)

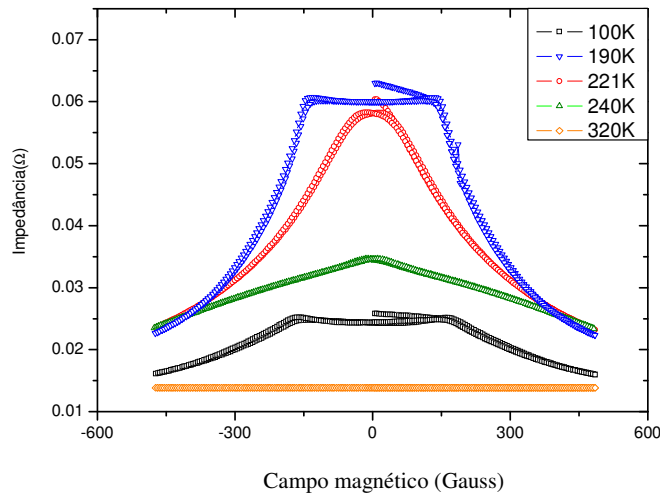


Figura 11 – Impedância em função do campo magnético. Corrente de sonda I=20mA. Frequência 100kHz

Na figura 11, temos uma medida de magnetoimpedância para diferentes temperaturas. Nestas medidas, variou-se o campo magnético externo aplicado paralelo à corrente desde zero até o valor máximo de +500Oe, reduzindo até o campo mínimo de -500Oe e finalmente retornando ao campo nulo. As medidas foram realizadas para frequência de 100kHz.

4.2 Amostra Co₂NbSn [11]

4.2.1 Preparação da amostra

Inicialmente, os três elementos Co, Nb e Sn, com pureza média de 99,99%, foram pesados para se obter o composto estequiométrico Co₂NbSn. Após a pesagem, os elementos foram levados ao Forno-à-Arco, onde foram fundidos a temperaturas acima de 2000°C. Após, com um disco diamantado, foi retirado da amostra um pequeno pedaço a fim de moê-lo e preparar um pó com grãos menores de 53 µm. Após, foi necessário tratar termicamente a amostra a fim de diminuir as tensões na rede cristalina. Para isto, foi encapsulado tanto o pó quanto o batoque em cápsulas de quartzo a baixa pressão e levados ao forno por 5 dias a 850°C e submetidos a resfriamento rápido.

Após estes processos, foi realizado uma medida de difração de raio-x com o pó e o batoque foi submetido ao corte na máquina de eletroerosão à fio. Com a amostra já na geometria desejada, foi necessário confeccionar os seus quatro contatos elétricos utilizando-se de solda ponto.

4.2.2 Resultados

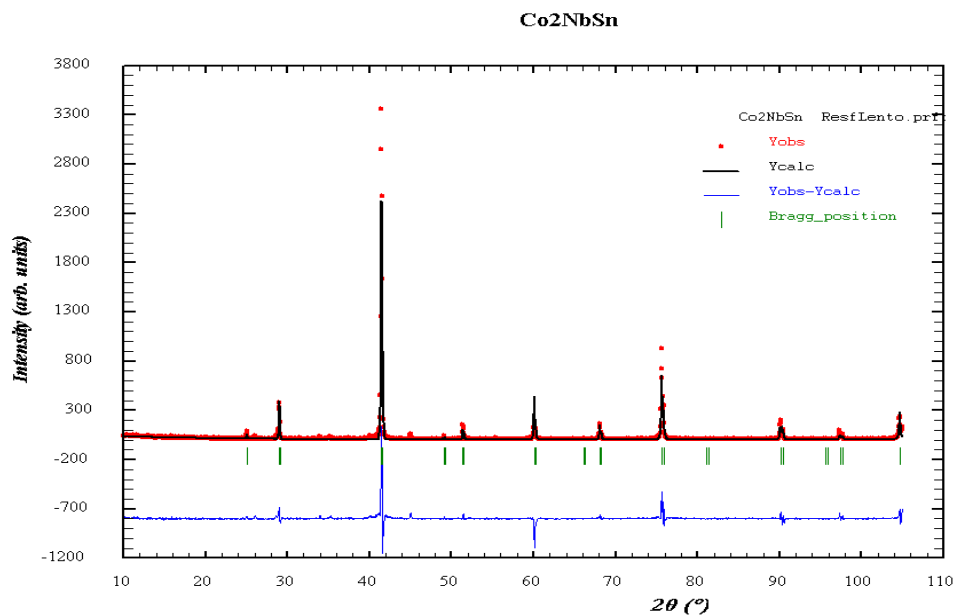


Figura 12 – Difratoograma da amostra de Co₂NbSn

Na figura 12, temos o difratograma de raio-x para a amostra Co_2NbSn que de acordo com os seus picos principais caracteriza-se uma estrutura cúbica $L2_1$ do Composto Heusler. Os pontos em vermelho referem-se aos dados experimentais. Os pontos em preto são os teóricos obtidos através do Método de Rietveld. Enquanto os traços em verde são as posições teóricas dos ângulos de Bragg.

Impedância(Z) x temperatura(T)

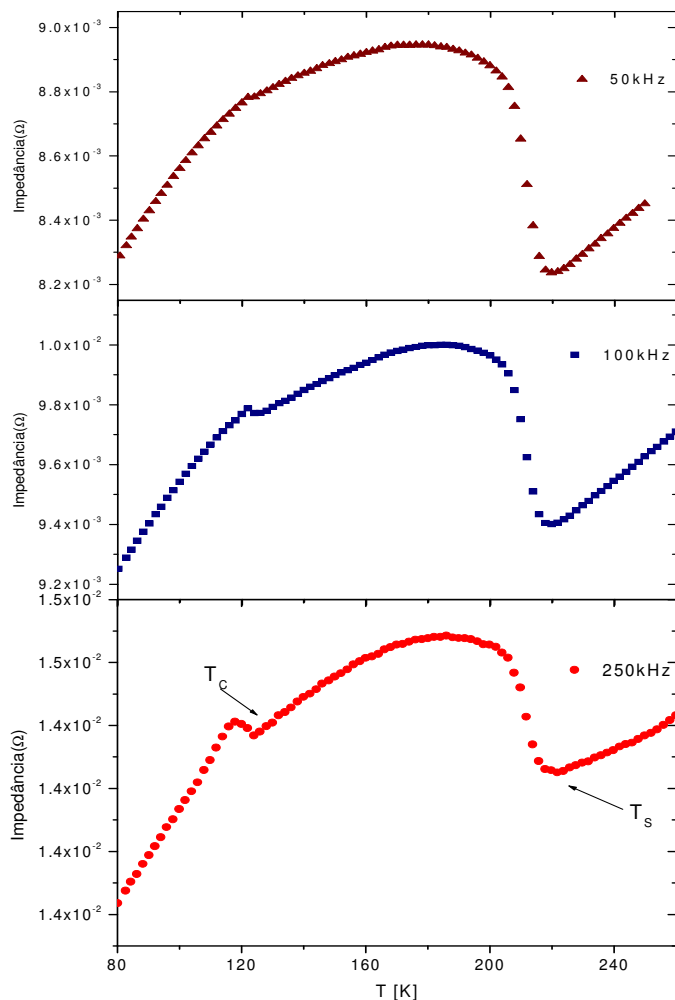


Figura 13 - Impedância (Z) em função da Temperatura (T) para três diferentes frequências 50kHz, 100kHz e 250kHz. $T_c=116\text{K}$ (Temperatura de Curie) $T_s=223\text{K}$ (Temperatura de Transição Estrutural). Corrente de sonda $I=20\text{mA}$

A figura 13 é composta por três medidas de impedância em função da temperatura para valores de frequência de 50kHz, 100kHz e 250kHz. Nela, podemos notar as transições de fase que ocorre na Heusler Co_2NbSn . Onde a temperatura de transição entre o estado ferromagnético e paramagnético é o $T_C=116\text{K}$ e a temperatura da transição estrutural onde ocorre a mudança da estrutura cristalina de cúbica para ortorrômbica é $T_S=223\text{K}$.

Impedância(Z) x temperatura(T) com campo magnético aplicado (H)

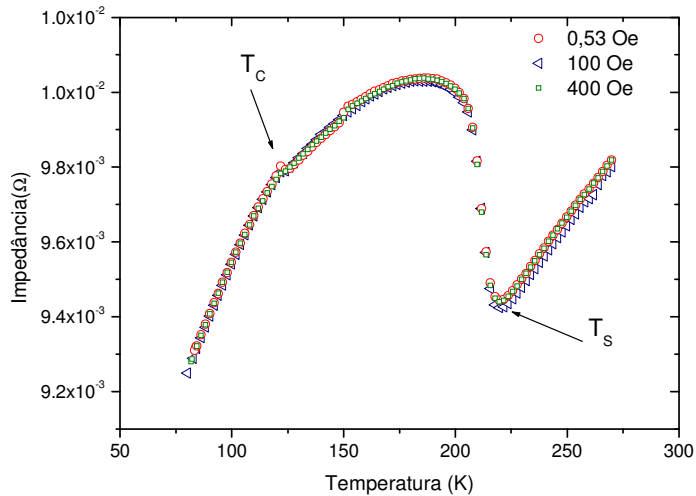


Figura 14 - Impedância(Z) em Função da Temperatura(T) com Campo Magnético Externo aplicado.

Neste gráfico da figura 14 verificamos a variação da impedância em função da temperatura com campo magnético externo aplicado de 100Oe e 400Oe. Já a medida de 0,53Oe, foi realizada apenas com a contribuição do campo magnético terrestre. Aqui, também podemos verificar as transições de fase tanto magnética quanto estrutural. Não observam-se variações significativas da impedância para estes valores de campos externos aplicados.

4.3 Amostra $\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$ [12]

4.3.1 Preparação da amostra

A observação dos efeitos de memória de forma (shape memory effect) e magnetocalórico na liga Heusler Ni-Mn-Ga tem gerado considerável interesse neste material devido a possibilidade da sua utilização como refrigerador magnético. Neste trabalho estudamos a liga $\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$ com pureza média de 99,99% realizando medidas da magnetização, impedância e magnetoimpedância em função da temperatura e campo magnético externo aplicado.

O efeito magnetocalórico pode ser aumentado através da indução de uma transição de fase de primeira ordem, simultaneamente a uma transição de fase magnética, pela aplicação

de campo magnético externo. A substituição de átomos de Ga por átomos de In no composto Ni_2MnGa , realizado neste trabalho, visa modificar as temperaturas das transições martensítica (202K) e magnética (370K) deste composto objetivando um efeito magnetocalórico próximo a temperatura ambiente.

Foram utilizados os mesmos procedimentos da Co_2NbSn para preparar esta amostra. Porém, notamos que após a fusão no forno à arco, a amostra havia-se cristalizado de forma muito acentuada, formando cristalitas de 1mm de largura, e devido a este fato surgiu a idéia de analisá-la, para fins de comparação, uma porção da amostra tratada e não tratada termicamente. Vejamos o difratograma de raio-x:

4.3.2 Resultados

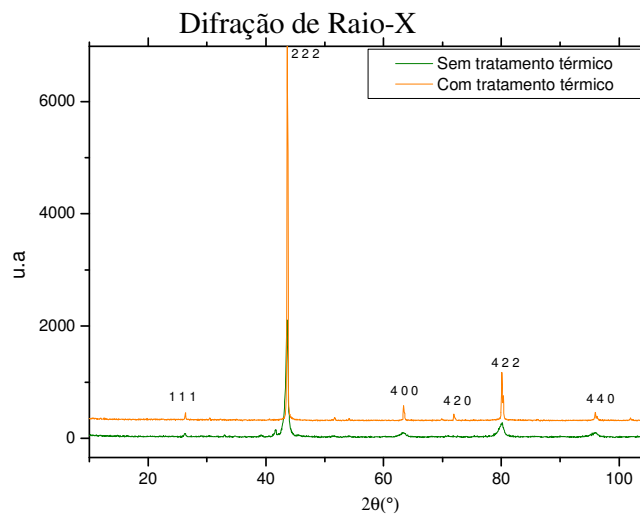


Figura 15 - Difração de raio-x, determina uma estrutura cúbica – L_{21} – $T=300\text{K}$

Na figura 15, temos o difratograma de raio-x para a amostra $\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$ antes e depois do tratamento térmico. Claramente, a amostra tratada termicamente está mais cristalizada que a não tratada. Isto é verificado pela forma e intensidade dos picos. Já os números colocados no difratograma são os índices de Miller que se referem às distâncias interplanares.

Para fins de comparação, verificamos os parâmetros de rede a da rede cúbica dos compostos:

Ni_2MnGa	$\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$	Ni_2MnIn
$a = 5,829\text{Å}$	$a = 5,890\text{Å}$	$a = 6,075\text{Å}$

e o resultado mostrou-se satisfatório, pois a nossa amostra possui um valor de parâmetro de rede intermediário.

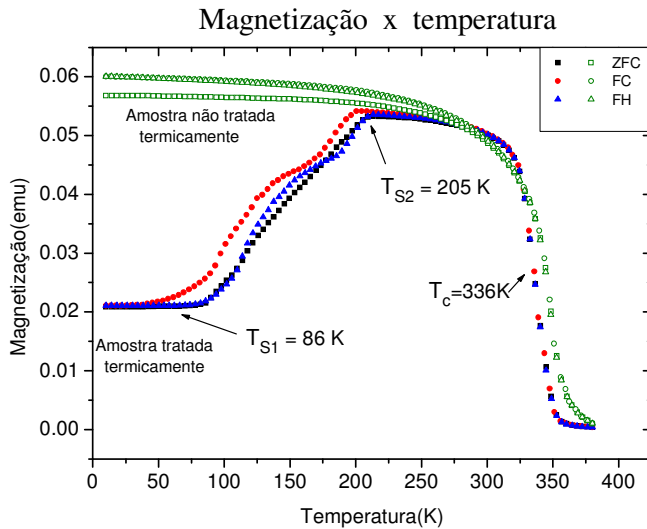


Figura 16 – Curva de Magnetização, campo magnético aplicado 500Oe. Onde T_{S1} é o início da transição estrutural e T_{S2} é temperatura onde a amostra já está em uma estrutura cúbica Heusler.

A medida da figura 16 foi realizada com o magnetômetro SQUID (ver apêndice A). Nela, podemos verificar a grande diferença da magnetização em baixa temperatura entre a amostra tratada termicamente e a não tratada. Também verificamos a transição estrutural salientada na região onde a curva FC (“Field Cooling”) e a FH (“Field Heating”) desencontram-se.

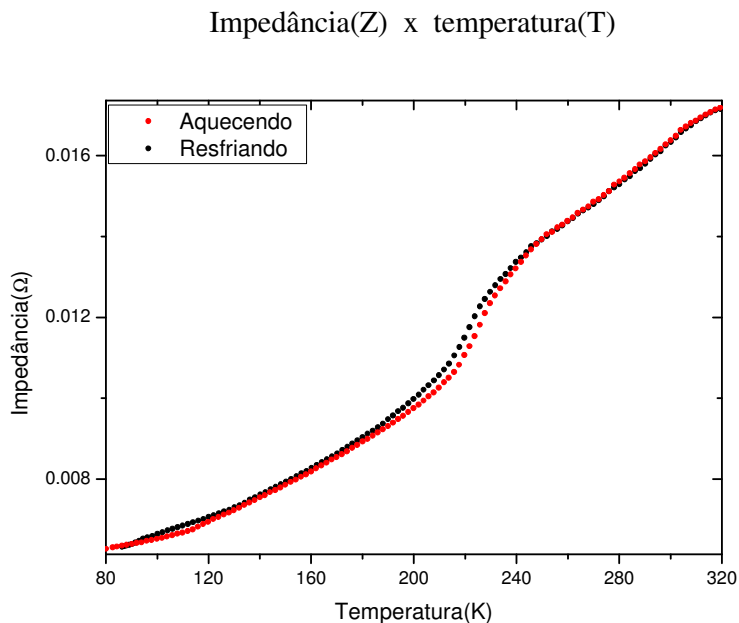


Figura 17 – Medida de impedância em função da temperatura mostrando também a irreversibilidade estrutural do composto $Ni_2Mn(Ga_{0.8}In_{0.2})$

A figura 17 mostra os resultados da medida de impedância em função da temperatura. A aquisição dos pontos foi realizada durante o aquecimento e, logo depois, durante o resfriamento da amostra. Este resultado mostra uma irreversibilidade devido às transições estruturais.

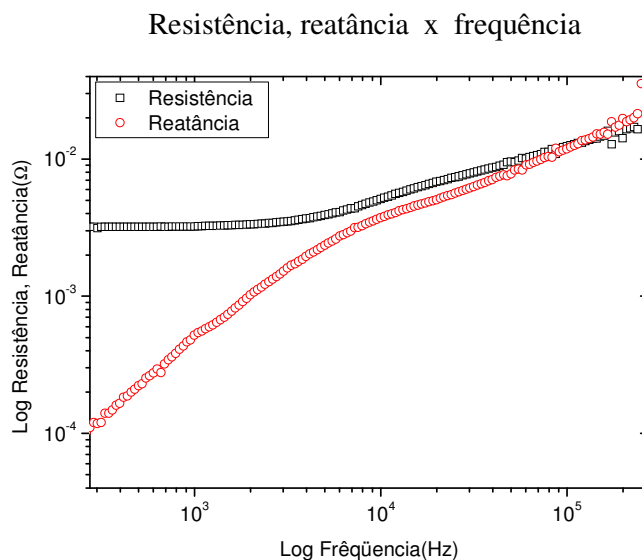


Figura 18– Medida de resistência, reatância em função da frequência da corrente de sonda

Neste gráfico da figura 18, medimos a resistência e a reatância em função da frequência para uma temperatura fixa de 320K. Aqui também se evidenciou o efeito “skin” para frequências acima de 5kHz. Este resultado está de acordo com a curva teórica para expansão no limite de baixa e alta frequência (ver figura 6).

5 CONSIDERAÇÕES FINAIS

A impedanciometria pode ser utilizada como uma importante técnica experimental no estudo das propriedades magnéticas dos materiais ferromagnéticos macios, particularmente em estudos destas propriedades próximo de transições de fase. Neste trabalho foram realizadas medidas da impedância, parte real (Resistência) e parte imaginária (Reatância), em função da temperatura, frequência da corrente de sonda e campo magnético externo aplicado.

Das medidas em função da temperatura foi possível determinar a temperatura de transição entre as fases ferromagnética e paramagnética T_C para as três amostras, a temperatura de reorientação de spins T_{RS} no caso do gadolínio, e a temperatura de transição estrutural T_S para as amostras de Co_2NbSn e $Ni_2Mn(Ga_{0,8}In_{0,2})$. Também, foi possível, a partir das medidas de impedância em função da frequência evidenciar o efeito pele(skin effect) em todas as três amostras.

6 APÊNDICE

Magnetômetro SQUID

O equipamento SQUID (Superconductor Quantum Interferometer Device) MPMS (Magnetic Properties Measurement System), modelo 2000 fabricado pela Quantum Design® possui um sistema que opera entre 1,9 K e 400 K, variando a temperatura com taxas mínima de 0,01 K/min e máxima de 10K/min. A temperatura pode ser lida com uma precisão de 0,01K e podem ser aplicados campos magnéticos de até 5 Tesla(50000Oe). Desta forma a partir deste equipamento é possível produzir curvas de magnetização, momento magnético em função da temperatura, e curvas de histerese, onde fixamos uma determinada temperatura e variamos o campo magnético aplicado na amostra.



Figura 19a: Magnetômetro SQUID

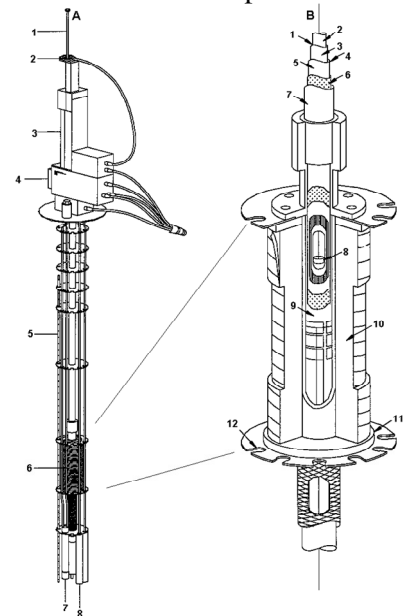


Figura 19b: Detalhes da cana de medida

Na figura 19a, vemos à esquerda o dewer onde é colocado He e N₂ líquido que tornam possível o trabalho em baixas temperaturas e a cana de medida. À direita, vemos todo o conjunto da eletrônica do equipamento e o computador responsável e pela automatização do processo de medida.

Na figura 18b, é possível visualizar melhor a cana de medida, a qual é composta basicamente pelo conjunto de motorização da haste, pela haste onde é inserida a amostra, por uma bobina supercondutora geradora do campo magnético externo aplicado, bobinas captadoras do sinal proveniente da amostra e o sensor SQUID.

7 REFERÊNCIAS

- [1] F.L.Machado, C.S.Martins, and S.M.Rezende. Giant magnetoimpedance in the ferromagnetic alloy $\text{Co}_{(75-x)}\text{Fe}_x\text{Si}_{15}\text{B}_{10}$. *Phys. Rev. B*, (51):3926,1995
- [2] L. A. Tuan, N. T. Huy and P. T. Huy. Giant magnetoimpedance in layered composite micro-wires for high-sensitivity magnetic sensor applications. *Journal of Physics: Conference Series* 187 (2009) 012044
- [3] G.L.F Fraga, P. Pureur, and D. E. Brandão. Spontaneous magnetoimpedance in heusler compounds Pd_2MnSn and Pd_2MnSb near the Curie temperature. *Sol. Stat. Commun.*, (124):7, 2002.
- [4] G.L.F Fraga, L.A.Borba and P. Pureur. Impedance and magnetic permeability of heusler compounds Pd_2MnSn and Pd_2MnSb near the Curie temperature. *Phys.Rev.B*, (74):64427, 2006
- [5] V.V.Khovailo and T.Abe. Detection of weak-order phase transition in ferromagnets by ac resistometry. *J.Appl.Phys.*, (94):2491, 2003
- [6] *Physics of waves* William C. Elmore e Mark A.Heald - McGraw-Hill Book Company, New York, 1969.
- [7] *Formulas and Tables*, Spiegel, Murray Ralph - McGraw-Hill Book Company, São Paulo,1970.
- [8] L.D. Landau e E.M. Lifschitz, **Electrodynamics of Continuous Media**, - Pergamon Press, Oxford, 1960
- [9] L.R.Schardosim. Salão de iniciação científica, XVIII, 2006, Porto Alegre. **Estudo da Impedância e Magnetoimpedância do Gadolínio.**
- [10] Borba, Luciano Appellaniz. **Impedância e permeabilidade inicial dos compostos Heusler Pd_2MnSn e Pd_2MnSb próximo da temperatura de Curie.** Porto Alegre: UFRGS, 2006. Dissertação (Mestrado). Instituto de Física.
- [11] L.R.Schardosim. Salão de iniciação científica, XIX, 2007, Porto Alegre. **Estudo da Impedância e Magnetoimpedância da Heusler Co_2NbSn .**
- [12] L.R.Schardosim. Salão de iniciação científica, XX, 2008, Porto Alegre. **Estudo das propriedades magnéticas da ligas Heusler $\text{Ni}_2\text{Mn}(\text{Ga}_{0,8}\text{In}_{0,2})$.**