

“Estudo da estrutura eletrônica e do magnetismo dos compostos de UTe e USe sob altas pressões”

Orientador: Dr. Ricardo Donizeth dos Reis

Coorientador: Dr. Narcizo Marques de Souza Neto

Instituição: Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS)

1. Introdução

A hibridização eletrônica entre os orbitais f e d regula quase todas as propriedades físicas em compostos à base de terras raras e actinídeos. Isto torna-se especialmente intrigante em elementos actinídeos devido a maior largura da banda de energia dos níveis $5f$, o que coloca esses elementos em um cenário intermediário entre o caso localizado presente nas terras-raras $4f$ e delocalizado de metais $3d$. Tal cenário torna possível a ocorrência de diversos fenômenos exóticos nesta classe de materiais, tais como comportamento de férmion pesado e efeito Kondo, mas também faz com que as suas interpretações sejam bem mais complexas^{1,2,3}.

Durante muitos anos o entendimento da hibridização $5f/6d$ em compostos à base de Urânio se manteve restrito a proposições teóricas, devido a ausência de uma técnica experimental que permitisse a investigação desta hibridização. No entanto, recentemente⁴ nós exploramos as contribuições dipolares e quadrupolares da seção de choque de absorção e demonstramos que a técnica de dicroísmo circular magnético (XMCD do inglês *X-ray magnetic circular dichroism*) nas bordas $L_{2,3}$ do Urânio pode fornecer informações exclusivas sobre a extensão desta hibridização e portanto pode contribuir significativamente no entendimento desta classe de materiais. Além disso, nossa nova metodologia para o estudo da hibridização $5f/6d$ faz uso de raios X de alta energia (17 keV), o que permite que a mesma possa ser aplicada para experimentos sob altas pressões.

Neste trabalho nós propomos usar esta nova metodologia, para o estudo dos efeitos da pressão nas propriedades eletrônicas e magnéticas dos compostos UTe e USe. Ambos os compostos pertencem à família dos monocalcogênios e cristalizam na estrutura cúbica simples do tipo NaCl. Os compostos UTe e USe ordenam ferromagneticamente com temperaturas de ordenamento de 104 K e 160 K, respectivamente. Além disso, o valor da temperatura de ordenamento magnético está diretamente ligada ao tamanho da célula unitária, de forma que a contração da rede, induzida por pressão ou por substituição química, tem forte influência no valor de T_C , como pode ser visto na Figura 1. Este mesmo comportamento do T_C como função da contração da rede cristalina foi observada em outros compostos da família dos monocalcogênios à base Európio⁵, e o uso da técnica de XMCD associada a cálculos ab initio de primeiros princípios, de forma similar a proposta para este projeto, se mostrou decisiva para entender os mecanismos que regulam o ordenamento magnéticos naqueles materiais.

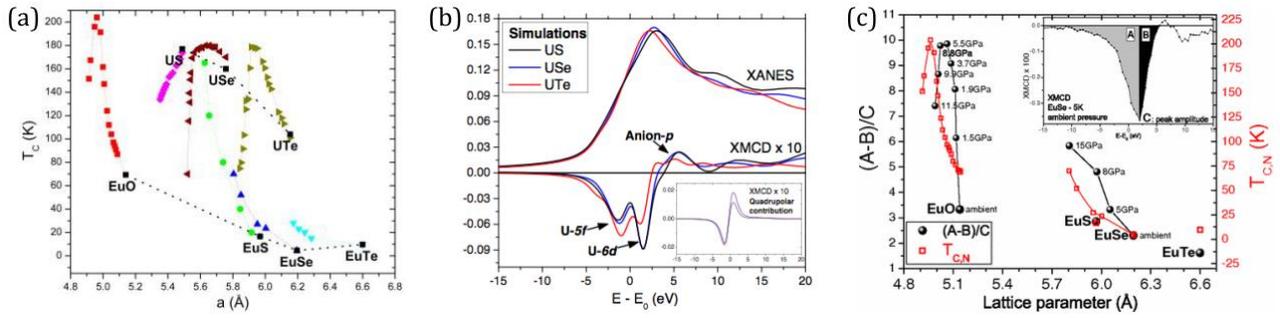


Figura 1. (a) Comparação entre as temperaturas de ordenamento magnético como função da contração da rede para compostos tipo EuX e UX ($X = \text{O}, \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$)^{5,6}. (b) Simulações ab initio dos espectros de XANES e XMCD para UR ($R = \text{S}, \text{Se}, \text{Te}$). (c) Assimetria no sinal de XMCD dado por $(A-B)/C$. A e B são as áreas definidas pelo espectro e C é a amplitude do pico de XMCD⁵.

2. Objetivos e Perspectivas

A falta de uma técnica com seletividade ao elemento químico e ao orbital que fornecesse informações sobre como o magnetismo do U nos compostos de UTe e USe se comporta sob contração da rede, impediu explicações conclusivas sobre o magnetismo nesta classe de materiais. Aqui nós propomos realizar experimentos de XMCD sob pressão para obter informações sobre a estrutura eletrônica dependente do spin dos orbitais $5f/6d$ do U, bem como dos orbitais p dos ânions. Além disso, como mencionado anteriormente o magnetismo destes materiais tem relação direta com o parâmetro de rede do composto, desta forma experimentos de difração de raios X como função da pressão também serão realizados para determinar como a estrutura cristalina dos materiais se altera com a pressão.

Este conjunto completo de informações (dependência da T_C , da estrutura eletrônica e da estrutura cristalina como função da pressão) permitirá conclusões a respeito do cenário geral das relações entre magnetismo e estrutura eletrônica em compostos monocalcogênios actinídeos.

3. Metodologia

Propomos realizar medidas de XMCD na borda L_3 do U (~ 17 keV) como função da pressão aplicada (via células de bigorna de diamante) para estudar o comportamento das propriedades eletrônicas e magnéticas dos compostos UTe e USe ao avaliar possíveis mudanças na ocupação dos orbitais $5f/6d$. Os experimentos serão realizados abaixo das temperaturas de transição ferromagnética para cada composto ($T_C = 160$ K para USe; e $T_C = 104$ K para UTe)⁷. Experimentos e simulações dos espectros de XMCD a pressão ambiente para o composto de UTe já foram realizados (Figura 2), demonstrando a aplicabilidade da técnica. Neste projeto nós iremos estudar a evolução destes espectros como função da pressão física e da temperatura, utilizando células de bigornas de diamante. Os diamantes utilizados em todos os experimentos terão culeta de 350 μm de diâmetro e o meio de pressão será Neônio, de modo que a pressão

atingida seja da ordem de 80 GPa. Além disso investigaremos o comportamento da estrutura cristalina por meio de experimentos de difração de raios X.

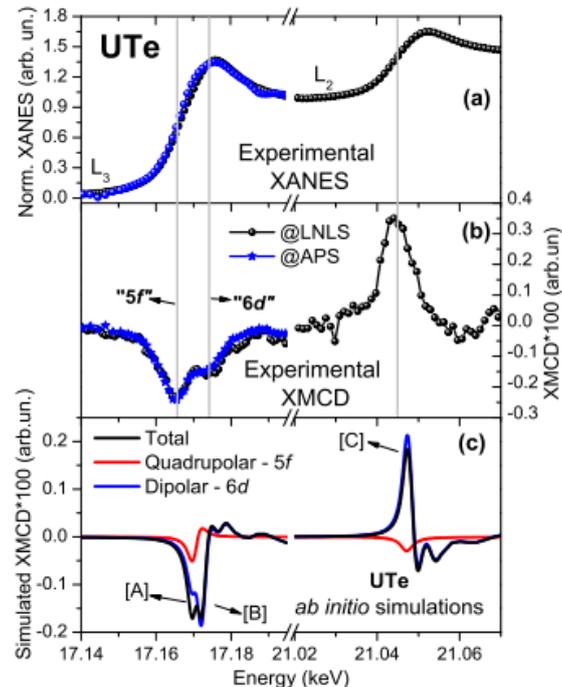


Figura 2. Espectros de XANES (a) e XMCD (b) nas bordas $L_{2,3}$ do U em compostos de UTe a 10 K (bem abaixo de $T_C = 104$ K) para um campo aplicado de 0,45 T. (c) apresenta simulações ab initio de XMCD no UTe usando o programa FDMNES.

4. Cronograma

1º Trimestre: Estudar as técnicas de experimentais que serão utilizadas para realização do projeto (XAS, XMCD).

2º Trimestre: Aprender o processo de preparação das células célula de pressão de diamante para experimentos de XMCD.

3º Trimestre: Realização dos experimentos de XAS e XMCD sob pressão na linha de luz EMA do novo Síncrotron Brasileiro (SIRIUS)

4º Trimestre: Conclusão dos experimentos, análise de dados, redação de artigos científicos e participação em eventos.

5. Bibliografia

¹ K. T. Moore and G. van der Laan, Rev. Mod. Phys., 81 (2009) 235.

² N. Kernavanois et al., J. Phys.: Condens. Matter, 13 (2001) 9677.

³ T. Okane et al., J. Phys. Soc. Japan, 77 (2008) 024706.

⁴ R. D. dos Reis et al., Nature Communications, 8 (2017) 1203.

⁵ N. M. Souza-Neto et al., Phys. Rev. Lett., 102 (2009) 057206.

⁶ A. L. Cornelius et al., J. Mag. Mag. Mat., 161 (1996) 169-176.

⁷ T. Durakiewicz et al., Phys. Rev. Lett., 93 (2004) 267205.