

UNIVERSIDADE ESTADUAL DE CAMPINAS

**LÂMINA DE 1/4 DE ONDA DE RAIOS X
PARA DICROÍSMO MAGNÉTICO**

Eduardo Henrique de Toledo Poldi
RA: 155216



eduardohtp x(arroba)x gmail.com

F 690 A - INICIAÇÃO CIENTÍFICA II

Orientador: Dr. Narcizo Marques Souza Neto
Laboratório Nacional de Luz Síncrotron - LNLS

Campinas, 28 de Novembro de 2015

Sumário

1	Revisão Bibliográfica	2
1.1	Luz Síncrotron	2
1.2	Técnicas de Absorção de Raios X	2
1.3	Lâmina de 1/4 de onda	4
1.4	Turbo-XAS	4
1.5	Modo Síncrono	6
2	Metodologia	8
3	Resultados	10
3.1	Cálculo da Polarização e Intensidade do Feixe de Raios X	10
3.2	Lâmina de 1/4 de Onda: Transmissão e <i>Offset</i> do ângulo de Bragg	12
3.3	Projeto da mesa do <i>Phase Retarder</i>	15
3.4	Medidas de Polarização com a Lâmina de 1/4 de Onda	16
3.4.1	Pico de Bragg	16
3.4.2	Intensidade do Feixe Difractado e Taxa de Polarização Circular	17
4	Conclusão	18
5	Comentários do Orientador	19
6	Agradecimentos	19
7	Referências	19

1 Revisão Bibliográfica

O presente projeto está sendo desenvolvido no Laboratório Nacional de Luz Síncrotron (LNLS), visando unir diferentes técnicas experimentais e tecnologias que foram desenvolvidas desde a década de 1990, com a intenção de montar um arranjo experimental (ou *set-up*, em inglês), que seja mais eficiente do que o utilizado atualmente para se realizar experimentos de dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD), tanto na atual fonte de luz síncrotron quanto na que está em construção, o Sirius. Assim, nesta seção são apresentados os estudos das propriedades da luz síncrotron, das técnicas de absorção de raios X (XAS) e XMCD, do método de Turbo-XAS e do modo síncrono.

1.1 Luz Síncrotron

Primeiramente, deve-se entender o porquê de a luz síncrotron ser tão importante para os experimentos de absorção de raios X, bem como do funcionamento das principais técnicas de absorção utilizadas atualmente.

A luz síncrotron é obtida da deflexão de partículas aceleradas a velocidade relativística por campos magnéticos. Esta possui amplo e contínuo espectro de energia e, no plano da órbita, alta taxa de polarização. Como a radiação síncrotron é composta por ondas eletromagnéticas, o termo polarização é utilizado para se referir à direção da componente elétrica da onda, que é ortogonal à magnética. Diz-se que certa radiação possui polarização linear vertical, por exemplo, quando o vetor da sua componente elétrica se encontra no plano vertical. Essas partículas são armazenadas numa órbita fechada, dito anel de armazenamento, dentro de um sistema de ultra-alto-vácuo, e os fótons são emitidos na direção tangencial da trajetória, praticamente colimada e com alta intensidade no plano da órbita, conforme mostrado na figura 1.1.

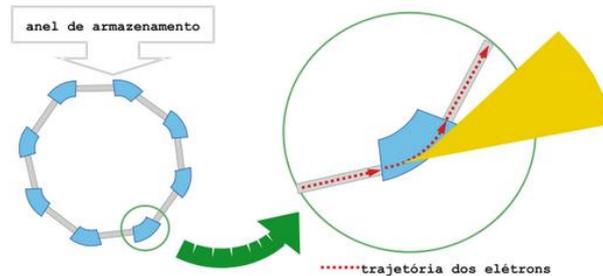


Figura 1.1: "A luz emitida pela deflexão do feixe nos dipolos é emitida na direção tangencial à trajetória descrita pelas partículas, formando um leque." Retirada de [1].

1.2 Técnicas de Absorção de Raios X

A radiação síncrotron é comumente utilizada para medidas de absorção de raios X para diferentes materiais, pois se pode determinar informações sobre a estrutura eletrônica, geométrica e magnética de determinada amostra, o que só é possível porque a radiação síncrotron possui larga banda espectral, diferentemente de raios X produzidos por fontes convencionais. Uma dessas técnicas é a espectroscopia de absorção de raios X (do inglês, XAS: *X-ray Absorption Spectroscopy*), cuja principal característica é a seletividade química [1]. Esta técnica fornece a quantidade de fótons absorvida pelos materiais, por meio de espectros de absorção, que são gráficos de absorção em função da energia dos fótons. Nesse

espectro pode-se destacar duas regiões: a próxima à borda de absorção (XANES: *X-ray Absorption Near Edge Structure*), onde se fornece fótons de energia suficiente para excitar um elétron para outra camada, gerando um fotoelétron e a da estrutura fina oscilatória estendida (EXAFS: *Extended X-ray Absorption Fine Structure*), que apresenta as oscilações devidas à interferência entre a função de onda do fotoelétron criado com seu retro-espalhamento nos elétrons de átomos vizinhos, fornecendo informações de ordem estrutural (vide figura 1.2).

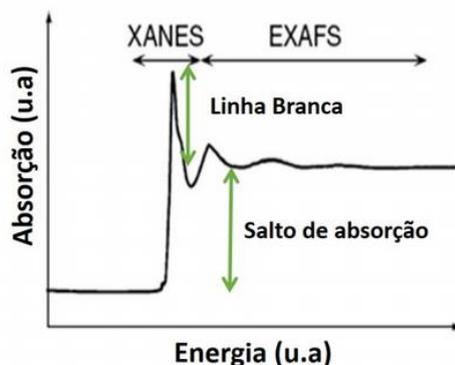


Figura 1.2: Espectro de absorção. Note a região de XANES, próxima à borda de absorção, e a de EXAFS, obtida do retro espalhamento do fotoelétron em seus átomos vizinhos. Figura retirada da referência [2].

Outra técnica bastante utilizada é a de dicroísmo circular magnético de raios X (XMCD: *X-ray Magnetic Circular Dichroism*), com a qual pode-se sondar materiais com anisotropia magnética, ou seja, que absorvem de diferentes maneiras a luz polarizada circularmente à direita e à esquerda, fornecendo informações sobre o momento magnético da amostra, conforme demonstrado na figura 1.3. Vale notar que a técnica de XMCD é a única que permite seletividade química do magnetismo [1].

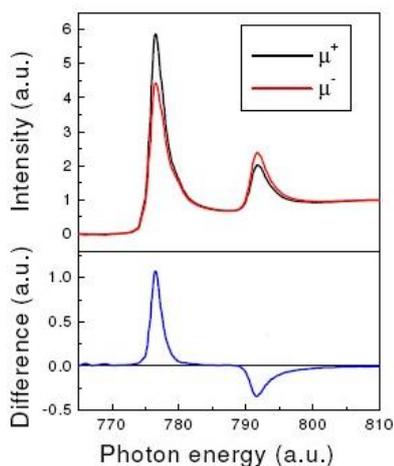


Figura 1.3: Espectro de XMCD (em azul) resultado da diferença dos espectros de absorção para luz polarizada à direita (curva preta) e à esquerda (curva vermelha). Figura retirada de [3].

Para realizar experimentos de XMCD, portanto, o que está relacionado ao objetivo deste projeto, deve-se possuir luz circularmente polarizada – ora à direita, ora à esquerda, para que seja feita a subtração entre os espectros obtidos, de modo que se tenha o sinal de XMCD –, ou seja, o campo elétrico da radiação

precisa ter vetor com componentes em ambos os eixos, σ e π , uma defasada em $\pi/2$ em relação à outra, e que estas possuam amplitudes iguais.

1.3 Lâmina de 1/4 de onda

Como comentado anteriormente, a luz síncrotron possui alta taxa de polarização linear no plano da órbita. Neste caso, em que será tratada apenas a luz síncrotron proveniente da deflexão por dipolos, essa polarização é linear horizontal. Fora deste plano, tanto acima como abaixo, encontra-se luz circularmente polarizada, e quanto mais se distancia dele, maior a taxa de polarização circular, mas menor a intensidade dos fótons, já que o feixe é praticamente todo colimado no plano da órbita [1].

Atualmente, é seguindo essa ideia que são realizadas as medidas de XMCD: com uma TAXA DE POLARIZAÇÃO CIRCULAR DE APROXIMADAMENTE 70% E APENAS 1/3 DA INTENSIDADE DO FEIXE [4], não sendo o melhor arranjo experimental possível. Nas linhas de luz, que são as estações experimentais de um anel de armazenamento, portanto, pode-se montar um dispositivo experimental de modo a otimizar esses números, utilizando uma lâmina de 1/4 de onda de raios X. Essa lâmina é também conhecida como *Phase Retarder* ou *Phase Plate* e feita de material birrefringente [5]. Neste projeto, o material escolhido para ser utilizado como lâmina de 1/4 de onda foi o diamante. Materiais birrefringentes são aqueles que, quando o atravessados pelo feixe de fótons, se as componentes e do vetor do campo elétrico da luz, K_σ e K_π , forem diferentes ao passar pelo diamante, ao sair deles, a diferença das componentes é dada por $\delta = 2\pi|K_\sigma - K_\pi|t$, onde t é a espessura da lâmina. A taxa de polarização circular é dada pela equação $P_c = \frac{2A_\sigma A_\pi}{A_\sigma^2 + A_\pi^2} \sin \delta$, com A_σ e A_π sendo as amplitude das componentes σ e π , respectivamente [4,5,6,7].

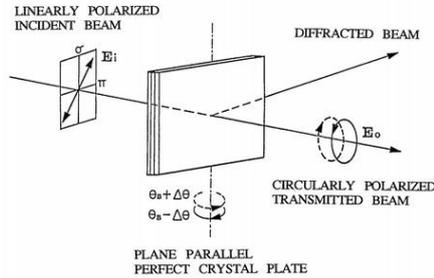


Figura 1.4: Representação da lâmina de 1/4 de onda e das componentes do campo elétrico nas direções σ e π . Retirada de [5].

O *Phase Retarder*, porém, é apenas um dos elementos que, combinados, farão desse projeto único. Também será utilizada a ótica dispersiva, o método de medição Turbo-XAS (T-XAS), e o modo síncrono, que serão detalhados a seguir.

1.4 Turbo-XAS

Primeiramente, convém aqui enunciar a Lei de Bragg, a qual afirma que, para que ocorra difração de raios X num cristal, é necessário que a diferença entre os caminhos percorridos pelas ondas incidentes, formando ambas um ângulo θ com a horizontal, em dois planos cristalinos paralelos espaçados de uma distância d , seja um múltiplo inteiro, n , de seu comprimento de onda λ , de forma que $2d \sin \theta = n\lambda$ [8].

Na linha dispersiva (figura 1.5) de luz do LNLS, DXAS (do inglês, *Dispersive X-ray Absorption Spectroscopy*), o monocromador utilizado é dispersivo, também chamado de policromador. Como a luz proveniente da fonte síncrotron possui todos os comprimentos de onda λ , um monocromador é o equipamento

responsável monocromatizar o feixe, ou seja, selecionar determinado λ , implicando em um único valor de energia (E) fixo, uma vez que $E = hc/\lambda$ (com h sendo a constante de Planck, e c a velocidade da luz). Um monocromador dispersivo, entretanto, é um cristal de curvatura ajustável no qual incide o feixe e o focaliza em um único ponto. Como o espelho é curvo, cada ponto em que os fótons incidem neste possuirá determinado λ , implicando, pela Lei de Bragg, em valores de θ diferentes ao longo do comprimento do espelho. Portanto, serão gerados diferentes valores de E , fazendo com que o policromador focalize todas as energias em um único ponto [9]. Esta linha de luz compreende fótons de energia de 5 a 20 keV, possibilitando luz síncrotron de comprimentos de onda entre 0,06 e 0,25 nm.

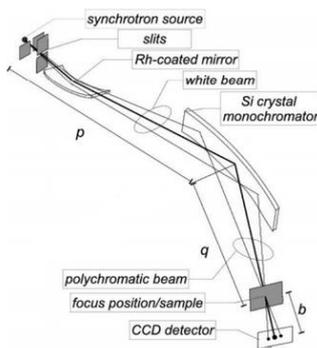


Figura 1.5: Linha dispersiva (DXAS) do LNLS, com p , q e b sendo as distâncias, respectivamente, da fonte ao monocromador, do monocromador à amostra (foco) e da amostra à CCD. Observe que um conjunto de fendas colima o feixe branco (raios X com todos os comprimentos de onda e todas as energias), para depois passar por um espelho que o focaliza na vertical, para somente então difratar no monocromador. Retirada da referência [9].

Medidas em ótica dispersiva convencional, porém, possuem sua desvantagem: não são possíveis as medidas da intensidade inicial, I_0 , e final, I_1 , de fótons concomitantemente.

Não há a utilização de fendas para selecionar determinada energia para o feixe, então todo o intervalo de energia é medido num único espectro de absorção, o que é vantajoso e rápido, sendo que o valor de I_1 é obtido por um Dispositivo de Carga Acoplada (CCD: *Charge Coupled Device*) [9]. Após a medida, determinamos I_0 retirando a amostra da frente do feixe e medindo sua intensidade na mesma câmara de ionização.

Os valores da intensidade I_0 e I_1 são relacionados pela lei de Lambert-Beer $I_1 = I_0 e^{-\mu t}$ (figura 1.6), com μ sendo o coeficiente de absorção, e t sendo a espessura da amostra [2]. As intensidades são obtidas por transmissão, num CCD associado a uma tela cintiladora, para que esses fótons incidam no cintilador, e emitam luz no espectro visível).

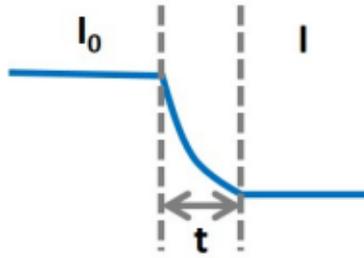


Figura 1.6: Decaimento exponencial da intensidade do feixe com o aumento da espessura da amostra: $I_1 = I_0 e^{-\mu t}$. Figura retirada da referência [2].

Ambos os métodos apresentam foco pequeno e estável, e a óptica da linha é mantida fixa (o polícromador não precisa ser movido), por outro lado, o método de Turbo-XAS (T-XAS) consiste na utilização de uma fenda que varre todo o espectro de energia separando em um feixe monocromático por vez (figura 1.7). Além da fenda, em T-XAS utiliza-se uma câmara de ionização antes e outra depois da amostra para se obter os valores de I_0 e I_1 simultaneamente [10].

Por isso, esse projeto prevê a introdução do método de Turbo XAS na linha dispersiva do LNLS em conjunto com a lâmina de 1/4 de onda em substituição ao atual.

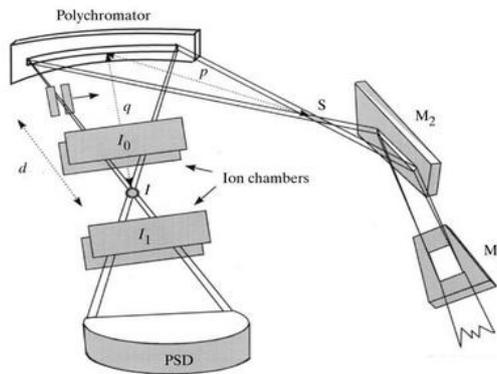


Figura 1.7: Arranjo experimental para medidas no modo T-XAS, com p , q e d sendo as distâncias, respectivamente, da fonte ao monocromador, do monocromador à amostra (foco I do polícromador) e da fenda à amostra. M_1 e M_2 são espelhos responsáveis, nessa ordem, por focalizar verticalmente e causar alguma dispersão horizontal o feixe. S é a “fonte virtual” de fótons, foco de M_2 . I_0 e I_1 são as câmaras de ionização que medem essas intensidades e a PSD (Detector Sensível à Posição, do inglês, *Position Sensitive Detector*) representa a CCD acoplada à tela cintiladora. Figura retirada de [10].

1.5 Modo Síncrono

O modo síncrono, ou, no inglês, *lock-in*, é um modo que permite que seja feita a medição de ambas as helicidades – tanto da luz polarizada à direita, quanto da à esquerda – numa só medida, fornecendo a diferença entre eles ao final, ou seja, o sinal de dicroísmo magnético. Isso é obtido ao se acoplar um

piezoatuador (piezoelétrico é o material que se comprime ou expande ao experimentar uma diferença de potencial) a um gerador de onda quadrada, que fornecerá uma voltagem para o piezo, de modo que haja um *offset* (do inglês, desvio) de poucos arco-segundos em torno do pico de Bragg do diamante, fazendo oscilar o *Phase Retarder*, posições onde se consegue máxima polarização circular à direita ou à esquerda. Funciona como um filtro, descartando todos os ruídos de frequências diferentes da frequência da onda quadrada que a lâmina está oscilando, selecionando apenas esta emitida pelo gerador de onda [6,11].

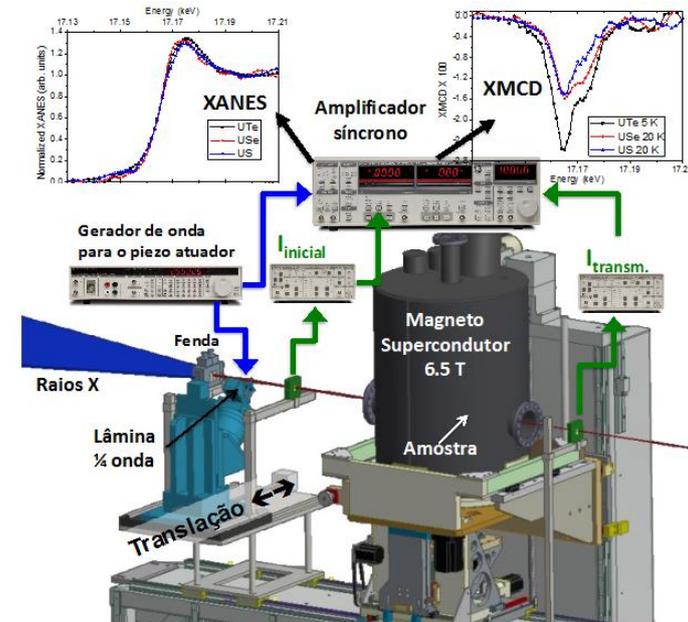


Figura 1.8: Arranjo experimental previsto no projeto. Medidas de XMCD nesse modo irão viabilizar o uso de um magneto supercondutor de 6.5 T já existente no LNLS. Veja o texto para mais detalhes.

A figura 1.8 esboça o arranjo experimental completo para medidas de XMCD em modo síncrono, combinando ótica dispersiva com a lâmina de 1/4 de onda, depois de todos os equipamentos comparados e instalados. O ímã de 6,5 T irá induzir a um estado magnetizado amostras mais duras, ou menos ferromagnéticas. Portanto, se o gerador de onda quadrada fizer isso numa velocidade muito alta, a helicidade da luz será invertida numa frequência bastante considerável. Varrendo todo o espectro de energia, com a fenda selecionando um determinado comprimento de onda por vez, o sinal de XMCD pode ser obtido com muito maior eficácia, com esse arranjo experimental resultante da combinação de vários outros, do que o utilizado atualmente no LNLS.

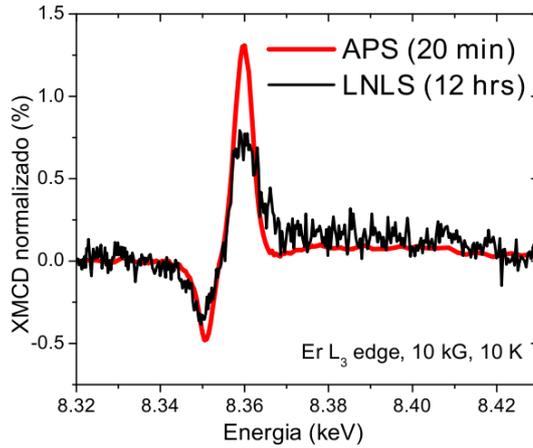


Figura 1.9: Comparação entre os resultados dos métodos de medição síncrono (linha vermelha) e não-síncrono (linha preta).

A figura 1.9 apresenta a comparação entre os resultados dos métodos de medição síncrono e não-síncrono, em medidas realizadas no APS (*Advanced Photon Source*), laboratório norte-americano situado em Chicago, e no LNLS, respectivamente.

Com a combinação de todas essas técnicas, será possível obter maior taxa de polarização circular do que a de atualmente, mantendo a mesma intensidade do feixe, com melhores relação sinal/ruído e tempo de aquisição nas medidas de XMCD.

2 Metodologia

Primeiramente foi estudada a maneira como a polarização e a intensidade do feixe se comportam quando desvia-se do plano da órbita. Assim, pôde ser entendida a relação entre as amplitudes das componentes do feixe e sua taxa de polarização linear ou circular após a difração no monocromador dispersivo, para diferentes valores de abertura da fenda e posições desta em relação ao plano da órbita.

De acordo com a teoria de eletrodinâmica clássica [12], a intensidade I do feixe em função da frequência angular ω e do ângulo sólido Ω é dada por:

$$\frac{d^2I}{d\omega d\Omega} = \frac{e^2\omega^2}{4\pi^2c} | -A_{\parallel}\hat{e}_{\parallel} + A_{\perp}\hat{e}_{\perp}|^2, \quad (2.1)$$

onde c é a velocidade da luz e as amplitudes das componentes da luz síncrotron paralela e perpendicular ao plano da órbita são A_{\parallel} e A_{\perp} , respectivamente:

$$A_{\parallel} \approx \frac{c}{\rho} \int_{-\infty}^{\infty} t \exp \left[i\frac{\omega}{2} \left(\left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2 \right) t + \frac{c^2 t^3}{3\rho^2} \right) \right] dt$$

$$A_{\perp} \approx \theta \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[i\frac{\omega}{2} \left(\left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2 \right) t + \frac{c^2 t^3}{3\rho^2} \right) \right] dt$$

Algumas constantes abordadas a seguir são o raio de curvatura da trajetória dos elétrons, ρ , a componente imaginária, i , e $\gamma = 2680$, definido como a energia dos elétrons no anel ($E = 1.37\text{GeV}$) dividida por sua energia de repouso, mc^2 [4]. O ângulo θ de desvio do plano da órbita também recebe valores predefinidos para cada cálculo.

Assim, será demonstrada, nas passagens a seguir, a equivalência das equações 2.1 e 2.6, de modo a obter os coeficientes A e B das fórmulas para o cálculo da taxa de polarização linear, P_L , e circular, P_C [8].

Fazendo $\xi = \frac{\omega\rho}{3c}(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2)^{\frac{3}{2}}$ e uma substituição de variável $t = \frac{x\rho}{c}(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2)^{\frac{1}{2}}$, de modo que $dt = \frac{\rho}{c}(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2)^{\frac{1}{2}}dx$, tem-se:

$$\begin{aligned} A_{\parallel} &\approx \int_{-\infty}^{\infty} x \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} \exp \left[i \frac{\omega}{2} \left(\frac{x\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{3}{2}} + \frac{x^3\rho}{3c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{3}{2}} \right) \right] \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} dx \\ &= \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} x \exp \left[i \frac{\omega}{2} \left(\frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{3}{2}} \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right) \right] dx \\ &= \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} x \exp \left[i \frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx \quad (2.2) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} A_{\perp} &\approx \theta \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[i \frac{\omega}{2} \left(\frac{x\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{3}{2}} + \frac{x^3\rho}{3c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{3}{2}} \right) \right] \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} dx \\ &= \theta \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} \int_{-\infty}^{\infty} \exp \left[i \frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx \quad (2.3) \end{aligned}$$

Note que pode-se substituir parte das equações que virão pelas funções de Bessel do tipo K , dadas a seguir.

$$\begin{aligned} \int_0^{\infty} x \sin \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx &= \frac{1}{\sqrt{3}} K_{2/3}(\xi) = \frac{1}{3} \int_0^{\infty} \frac{3 + 2x^2}{\sqrt{1 + \frac{x^3}{3}}} \exp \left[-\xi \left(1 + \frac{4x^2}{3}\right) \sqrt{1 + \frac{x^2}{3}} \right] dx \\ \int_0^{\infty} x \cos \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx &= \frac{1}{\sqrt{3}} K_{1/3}(\xi) = \int_0^{\infty} \frac{3 + 2x^2}{\sqrt{1 + \frac{x^3}{3}}} \exp \left[-\xi \left(1 + \frac{4x^2}{3}\right) \sqrt{1 + \frac{x^2}{3}} \right] dx \end{aligned}$$

Utilizando a identidade $e^{ix} = \cos x + i \sin x$, as equações 2.2 e 2.3 e fazendo as substituições pelas funções de Bessel anteriormente mencionadas, tem-se que:

$$\begin{aligned} A_{\parallel} &\approx \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right) \left(\int_{-\infty}^{\infty} x \cos \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx + i \int_{-\infty}^{\infty} x \sin \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx \right) = \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right) \left(\frac{2i}{\sqrt{3}} K_{2/3}(\xi) \right) \\ &\Rightarrow A_{\parallel}^2 \approx - \left(\frac{\rho}{c}\right)^2 \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^2 \frac{4}{3} K_{2/3}^2(\xi) \quad (2.4) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} A_{\perp} &\approx \theta \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right) \left(\int_{-\infty}^{\infty} \cos \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx + i \int_{-\infty}^{\infty} \sin \left[\frac{3}{2} \xi \left(x + \frac{x^3}{3}\right) \right] dx \right) = \theta \frac{\rho}{c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^{\frac{1}{2}} \left(\frac{2}{\sqrt{3}} K_{1/3}(\xi) \right) \\ &\Rightarrow A_{\perp}^2 \approx \left(\frac{\rho\theta}{c}\right)^2 \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right) \frac{4}{3} K_{1/3}^2(\xi) \quad (2.5) \end{aligned}$$

Em ambas as equações acima foram utilizadas as propriedades de integrais sobre funções pares ou ímpares definidas em intervalos simétricos pelo eixo y . Ou seja, como $f(x) = x \cos[\frac{3}{2}\xi(x + \frac{x^3}{3})]$ e $g(x) = \sin[\frac{3}{2}\xi(x + \frac{x^3}{3})]$ são funções ímpares, o valor da integral definida destas sobre o intervalo $[-\infty, \infty]$ é zero. Da mesma maneira, como $h(x) = \cos[\frac{3}{2}\xi(x + \frac{x^3}{3})]$ e $j(x) = x \sin[\frac{3}{2}\xi(x + \frac{x^3}{3})]$ são pares, suas integrais avaliadas em $[-\infty, \infty]$ valem, respectivamente, as integrais de $2h(x)$ e $2j(x)$ avaliadas em $[0, \infty]$.

Substituindo 2.4 e 2.5 em 2.1, e calculando o módulo ao quadrado desta equação, tem-se:

$$\frac{d^2 I}{d\omega d\Omega} = \frac{e^2}{3\pi^2 c} \left(\frac{\omega\rho}{c}\right)^2 \left(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2(\xi) + \frac{\theta^2}{(1/\gamma^2) + \theta^2} K_{1/3}^2(\xi) \right] \quad (2.6)$$

Na equação 2.6, substituindo $A = (\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2)K_{2/3}(\xi)$ e $B = \theta(\frac{1}{\gamma^2} + \theta^2)^{\frac{1}{2}}K_{1/3}(\xi)$ pode-se concluir que o valor de A está associado à componente da polarização da luz paralela ao plano da órbita, A_{\parallel} . Do mesmo modo, B associa-se à componente perpendicular, A_{\perp} . Isso vale pois os valores de A e B dependem das funções modificadas de Bessel do tipo $K_{2/3}$ e $K_{1/3}$, respectivamente. A relação entre essas grandezas, então, se dá pelas equações 2.7 e 2.8 a seguir:

$$A_{\parallel} = \frac{2i}{\sqrt{3}} \frac{\rho}{c} A \quad (2.7)$$

$$A_{\perp} = \frac{2}{\sqrt{3}} \frac{\rho}{c} B \quad (2.8)$$

De modo que

$$P_C = \frac{2AB}{A^2 + B^2} \quad (2.9)$$

e

$$P_L = \frac{A^2 - B^2}{A^2 + B^2} \quad (2.10)$$

Tendo conseguido explicitar os valores dos coeficientes A e B nas equações acima, pôde-se calcular quais os valores de I , P_C e P_L em função do desvio do plano da órbita.

3 Resultados

Nesta seção, serão apresentados os resultados quanto aos cálculos polarização e intensidade do feixe, transmissão e *Offset* do ângulo de Bragg ao passar pelo *Phase Retarder*, para uma melhor compreensão do *set-up* experimental para a realização das medidas de XMCD. Também serão mostrados alguns resultados obtidos dos experimentos com a lâmina de 1/4 de onda, em que foram medidas sua largura do pico de Bragg, intensidade e taxa de polarização circular do feixe transmitido.

3.1 Cálculo da Polarização e Intensidade do Feixe de Raios X

Utilizando as equações descritas acima, foram calculadas as intensidades e taxas de polarização linear (P_L) e circular (P_C) do feixe, dependendo da posição e da abertura da fenda, após a deflexão do feixe no monocromador dispersivo.

Nas figuras 3.1 e 3.2, para a energia mesma fixa, a fenda foi movimentada de baixo para cima no plano perpendicular ao da órbita, sendo mantidos fixos 0,1 mm de abertura. Na figura 3.1 é possível observar que ocorre uma variação da intensidade do feixe em função da posição da fenda, sendo que o feixe nunca atingiu $I = 1$ para essa abertura.

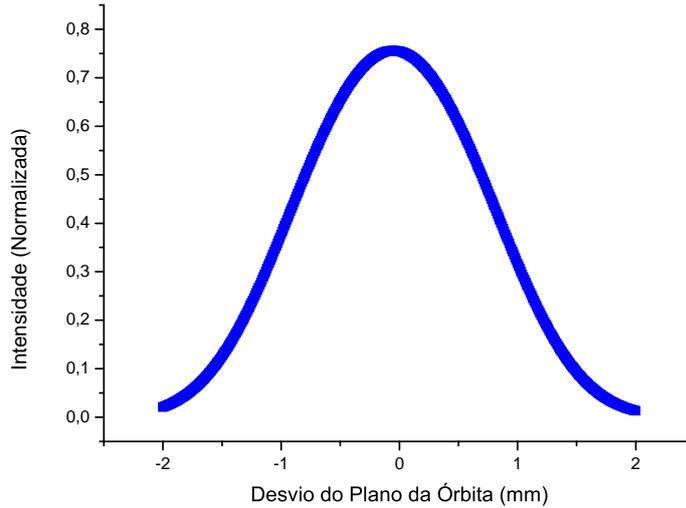


Figura 3.1: Intensidade em função do desvio do plano da órbita.

Os resultados para as taxas de polarização, apresentados na figura 3.2, mostraram que P_C atinge valores superiores a 90%, em módulo, quando suficientemente distantes do plano da órbita, sendo zero quando a fenda está centrada neste. Por outro lado, P_L decresce com o distanciamento do plano da órbita, uma vez que há uma limitação do tamanho do feixe selecionado (0,1 mm).

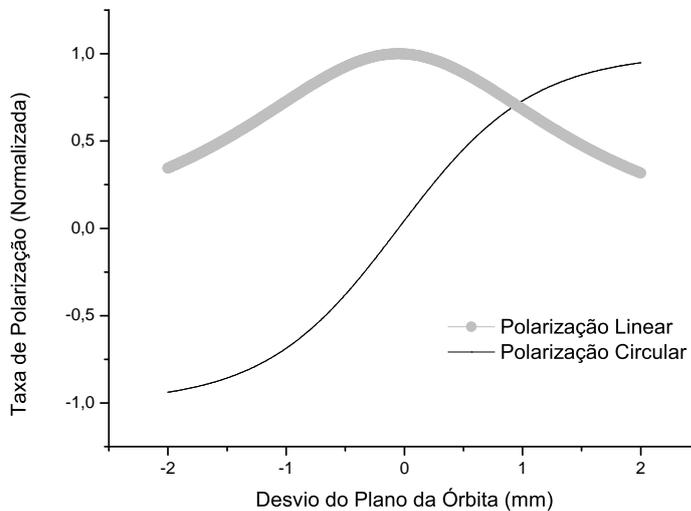


Figura 3.2: Taxa de Polarização do feixe em função do desvio do plano da órbita.

No caso das figuras 3.3 e 3.4, a fenda estava centrada no plano da órbita, tendo começado fechada, passando a abrir para cima e para baixo igualmente até atingir 2 mm de abertura de cada lado.

Na figura 3.3, nota-se o aumento da intensidade do feixe conforme a fenda abre, já que a quantidade do feixe que é compreendida com esse arranjo é maior do que no anterior.

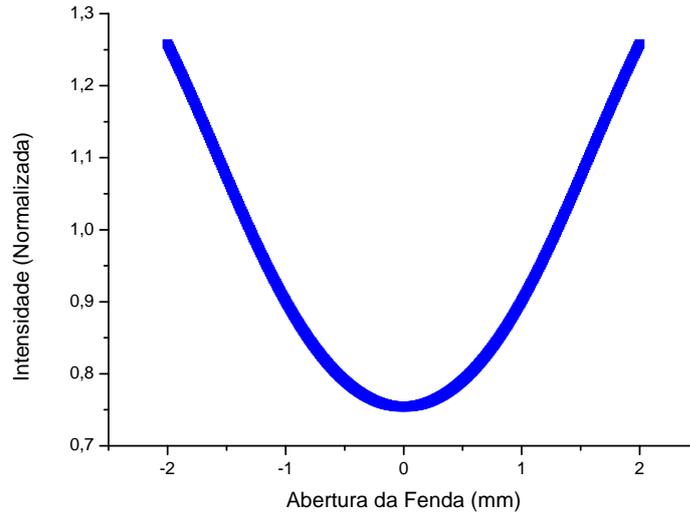


Figura 3.3: Intensidade do feixe em função da abertura da fenda, com essa centrada no plano da órbita.

A respeito das taxas de polarização, na figura 3.4 enquanto $P_L > 0,9$ para todo o alcance da fenda, $P_C = 0$, o que se dá porque há o cancelamento das funções de onda de helicidades opostas.

Com este resultado, pode-se concluir que será possível usar nos experimentos uma grande quantidade do feixe centrado na órbita para ter uma alta intensidade, já que tem-se um feixe polarizado linearmente, mesmo aceitando uma fenda de alguns milímetros.

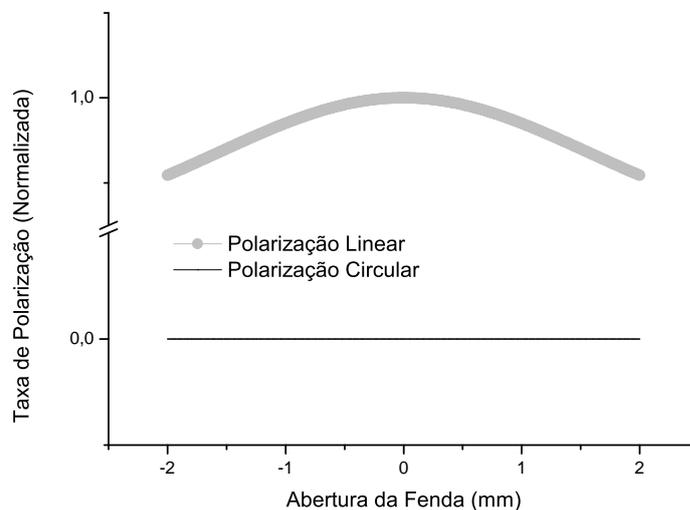


Figura 3.4: Taxa de Polarização do feixe em função da abertura da fenda, sendo que esta esteve centrada no plano da órbita.

3.2 Lâmina de 1/4 de Onda: Transmissão e *Offset* do ângulo de Bragg

Nos próximos meses serão realizados experimentos na linha de espectroscopia e difração de raios X (XDS, do inglês *X ray Diffraction Spectroscopy*) do LNL para se medir a taxa de polarização do feixe depois de atravessar os diamantes. A figura 3.5 mostra o conjunto de lâminas a ser utilizado no experimento. Assim, foi necessário entender como o feixe é transmitido ao atravessar o diamante e qual o *Offset*

do ângulo de Bragg em que se pode encontrar a taxa de polarização circular máxima para cada espessura do *Phase Retarder*.



Figura 3.5: Diamantes que serão utilizados nos próximos experimentos com o arranjo que está sendo elaborado.

Para o cálculo do feixe transmitido pelo *Phase Retarder* foi utilizada a Lei de Lambert-Beer [8]. Entretanto, para determinar a espessura efetiva, t_{ef} , da lâmina, foi necessário realizar uma correção devido à inclinação da lâmina em relação ao feixe, conforme mostrado na figura ??.

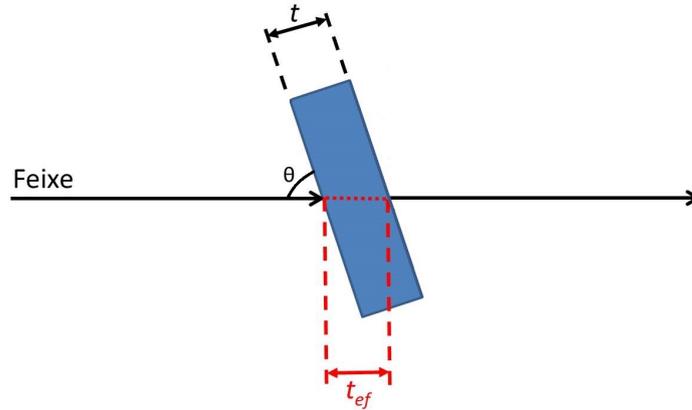


Figura 3.6: Ilustração da geometria utilizada para o cálculo da espessura efetiva da lâmina de diamante.

Deste modo, a espessura efetiva pode ser determinada por uma simples relação trigonométrica:

$$t_{ef} = \frac{t}{\sin \theta} \quad (3.1)$$

onde t é a espessura da lâmina de diamante e θ é o ângulo de Bragg.

Para cada valor de energia E , há um comprimento de onda λ associado, o que faz com que o ângulo de Bragg seja diferente. Isso implica na alteração de posição do *Phase Retarder* e, conseqüentemente, em sua espessura efetiva. Substituindo na Lei de Lambert-Beer a equação 3.1, utilizando a Lei de Bragg e considerando o feixe com apenas uma dimensão, pôde-se chegar na equação 3.2 para calcular a intensidade do feixe transmitido (T) para cada espessura de lâmina.

$$T = \frac{I_1}{I_0} = \exp\left(-\frac{2d\mu t}{\lambda}\right) \quad (3.2)$$

Os valores da intensidade transmitida pelas lâminas com diferentes espessuras são apresentados na figura 3.7.

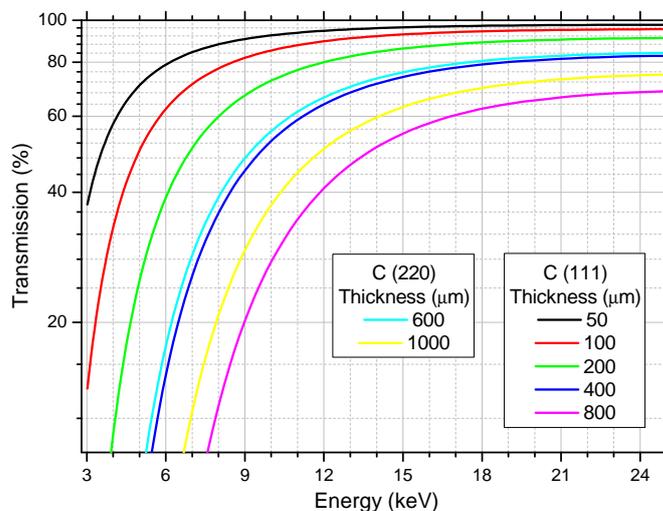


Figura 3.7: Transmissão do feixe em função de sua energia para cada valor de espessura da lâmina.

De acordo com os resultados apresentados na figura acima, a transmissão diminui com o aumento da espessura. Porém, essa relação não é válida entre lâminas de planos cristalinos diferentes, pois os espaçamentos interatômicos são distintos.

Outro parâmetro importante para obtenção de P_C máximo é o *Offset* do ângulo de Bragg. Utilizando um software apropriado e o conteúdo da equação do cálculo de P_C , os resultados obtidos estão mostrados na figura 3.8.

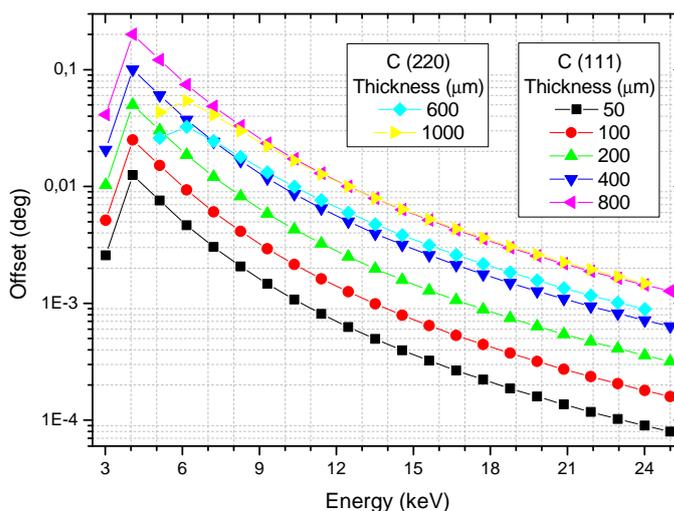


Figura 3.8: *Offset* de cada lâmina em torno do pico de Bragg em função da energia do feixe.

De acordo com a figura 3.8, para o intervalo de 3 a 25 keV, o valor do *Offset* depende da espessura da lâmina de diamante, aumentando proporcionalmente com a espessura e diminuindo com o aumento da

energia. Esses dados foram utilizados para determinar o deslocamento do piezo que será utilizado no novo arranjo experimental.

3.3 Projeto da mesa do *Phase Retarder*

Inicialmente, o projeto previa um arranjo experimental em que a lâmina de diamante ficava sob pressão ambiente, com capacidade para apenas um *Phase Retarder* de cada vez. Como no Sirius esse estágio deverá ser instalado sob vácuo, foi necessário envolver todo o suporte numa câmara que deve possuir em seu interior uma pressão na ordem de $10^{-7}mBar$. Assim, a mudança na montagem a pressão ambiente para vácuo justifica a adição de um outro suporte com mais de uma lâmina, uma vez que abrir a câmara de vácuo para trocar um *Phase Retarder* por outro demanda muito tempo de espera até se atingir o vácuo desejado novamente. Como cada suporte poderá conter duas ou três janelas para as lâminas, tendo-se mais espessuras disponíveis para medidas em diferentes energias.

Sob cada um dos suportes para as lâminas de 1/4 de onda, baseado nos desenhos do projeto da referência [13], será introduzido um par de estágios de rotação motorizados, *swivels* (figura 3.9). Esses estágios permitirão às lâminas de diamante mais dois graus de liberdade na movimentação, funcionando como um ajuste fino em duas direções.

Dois motores de translação foram adicionados: Um fará a seleção entre os suportes do *Phase Retarder*, enquanto o outro selecionará a janela para a lâmina de determinado suporte. A câmara manterá os *swivels*, o motor seletor do suporte e a lâmina de 1/4 de onda sob vácuo.

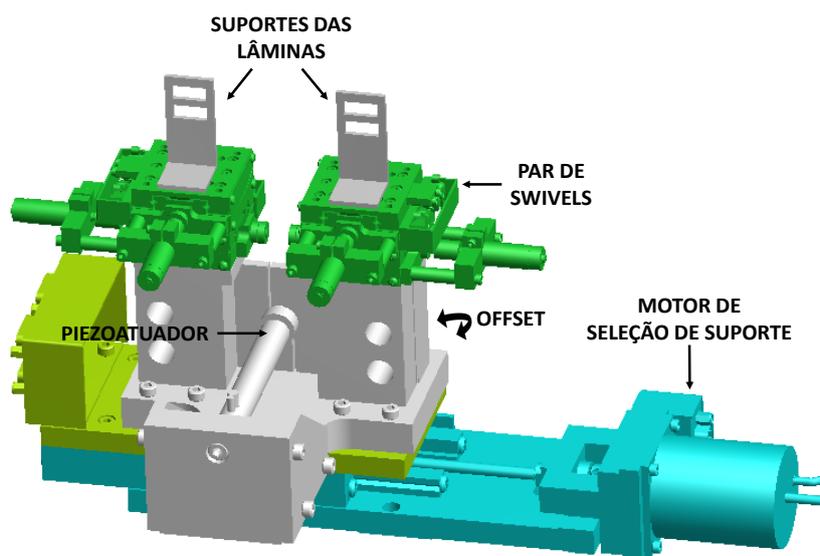


Figura 3.9: Representação do interior da câmara de vácuo.

O raio X linearmente polarizado entra na câmara por uma flange, passa pelo diamante e sai com polarização circular. Depois de atravessar a lâmina, o feixe difratado sairá por uma janela de berílio e terá sua intensidade será medida por um fotodiodo fora da câmara. Por fim, segue na figura 3.10 a representação do projeto da mesa para o *Phase Retarder*, a ser utilizado em conjunto com o magneto supercondutor de 6.5T, já alocado na linha de luz.

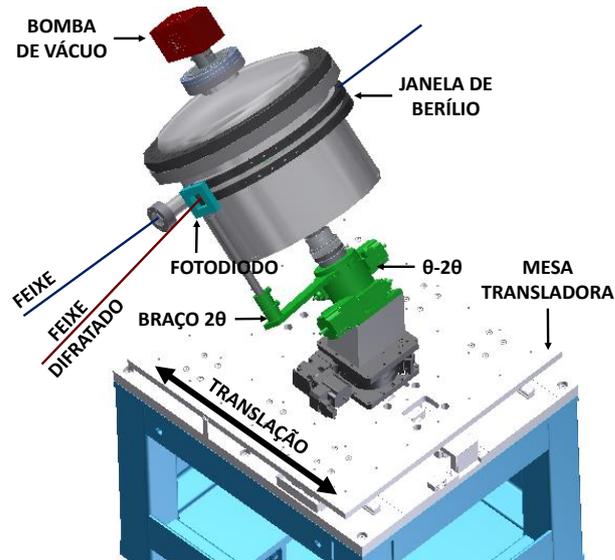


Figura 3.10: Esquema do suporte das lâminas de diamante, com a câmara de vácuo no exterior. O ângulo de incidência dos raios X no *Phase Retarder* é controlado pelo motor θ e que o ângulo do raio X difratado é 2θ , onde se localiza o fotodiodo.

3.4 Medidas de Polarização com a Lâmina de 1/4 de Onda

Como o arranjo experimental para a linha DXAS ainda não está disponível, foram realizados testes preliminares com as lâminas de 1/4 de onda para verificar a conversão da polarização da radiação linear em circular. Os experimentos foram realizados na linha de espectroscopia de difração de raios X do LNLS, XDS (do inglês: *X ray diffraction spectroscopy*). Foram medidos a largura do pico de Bragg, a intensidade do raio X difratado e a taxa de polarização circular obtida com o diamante de $400\mu m$. A energia nas medidas foi fixada em 10 keV.

3.4.1 Pico de Bragg

Depois de rotacionar o diamante a 45° em relação ao plano horizontal, o ângulo θ da lâmina foi ajustado para a condição de Bragg (Figura 3.11). Fazendo uma varredura de intensidade em função do ângulo em torno do pico de Bragg, obteve-se a figura 3.12.



Figura 3.11: Arranjo experimental utilizado para os experimentos com a lâmina de 1/4 de onda.

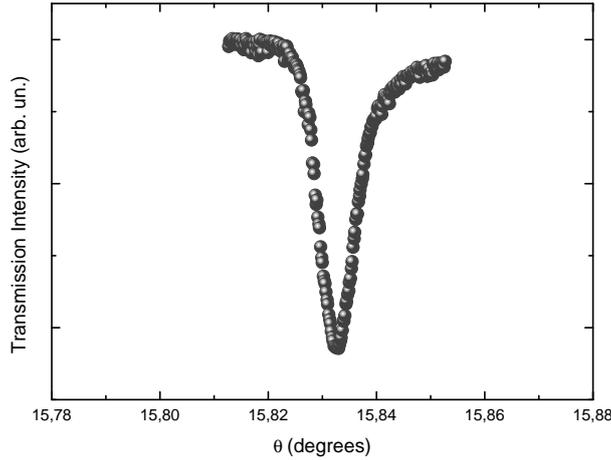


Figura 3.12: Pico de Bragg para o diamante de $400\mu m$ de espessura à energia fixa de 10 keV.

Com essa medida, obteve-se que o ângulo de Bragg para este diamante vale $\theta_B = 15,8330^\circ$ e a largura (FWHM) do pico de Bragg é $0,007^\circ$.

3.4.2 Intensidade do Feixe Difratado e Taxa de Polarização Circular

Utilizando um polarímetro (conjunto formado por um detector e um espelho cristalino polarizado em uma direção; no caso, foi utilizado um de Ge), medimos a intensidade do feixe transmitido pelo diamante e difratado no cristal quando o polarímetro estava tanto perpendicular (90°) quanto paralelo (0°) ao plano da órbita. A figura 3.13 apresenta os resultados obtidos da intensidade transmitida pelo desvio do ângulo de Bragg do diamante. Essas medidas refletem o módulo quadrático da amplitude do campo elétrico na orientação correspondente. Com esses dados, pôde-se encontrar o valor do *offset* do ângulo de Bragg que proporciona taxa de polarização circular máxima: $0,0134^\circ$. Como esse valor é maior do que os $0,007^\circ$ encontrados para a largura do pico de Bragg, conclui-se que o diamante é perfeito o suficiente para ser utilizada como um *X ray Phase Retarder*.

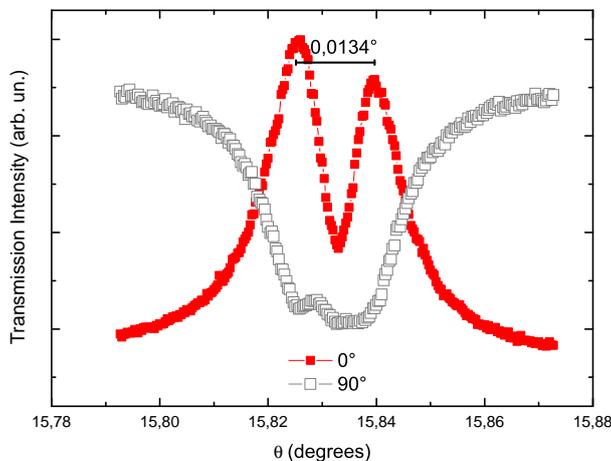


Figura 3.13: Intensidade do raio X transmitido na lâmina de $400\mu m$ de espessura e difratado no cristal de Ge à energia fixa de 10 keV. O polarímetro foi posicionado na vertical (90°) e na horizontal (0°).

Utilizando os dados apresentados na figura 3.13 e as equações 2.9 e 2.10, obteve-se as taxas de polarização circular e linear em função desvio do ângulo de Bragg, com P_C máxima na ordem de 98% (figura 3.14).

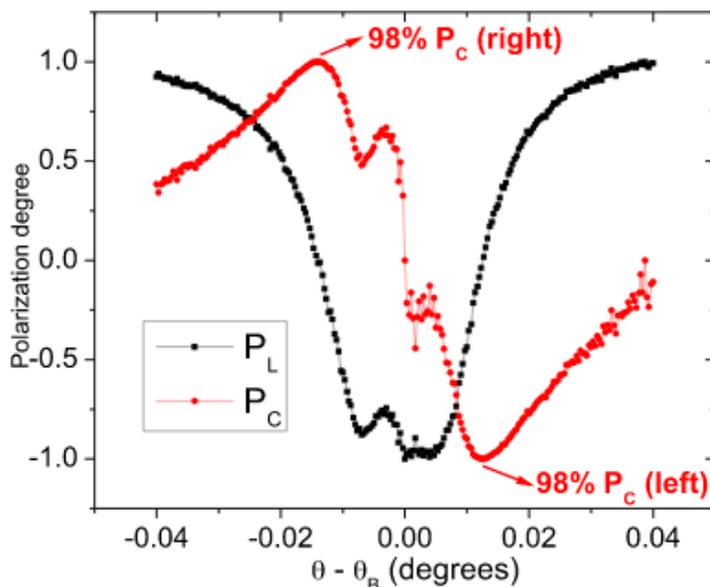


Figura 3.14: Graus de polarização circular e linear calculados utilizando as intensidades horizontal e vertical espalhadas.

4 Conclusão

Primeiramente, foi realizado o cálculo da polarização e intensidade do feixe defletido em um monocromador dispersivo em função da abertura e posição da fenda em relação ao plano da órbita. Foi verificado que há diminuição da polarização linear a medida que se afasta do plano da órbita, e o aumento da polarização circular, entretanto a intensidade diminui.

Com relação à lâmina de 1/4 de onda, foi estudada a transmissão do feixe em função da espessura, do ângulo e da orientação cristalográfica. Observou-se que para diamantes de mesmo espaçamento interplanar, a transmissão diminui com o aumento da espessura. Também foram calculados os valores de *Offset* para essas lâminas, de modo a determinar o deslocamento necessário para o piezoatuador.

O projeto inicial da mesa que sustentará o *Phase Retarder* foi modificado e conterà agora uma câmara de vácuo envolvendo todo o suporte dos diamantes, incluindo dois pares de *swivels*, para ajustes finos, e dois motores de translação, para selecionar dentre as diferentes lâminas de diamante.

Os experimentos realizados na linha XDS com o diamante de $400\mu\text{m}$ de espessura mostraram que este poderá ser utilizado como retardador de fase devido ao fato de a largura de seu pico de Bragg ser menor do que o *offset* do ângulo de Bragg para o ponto com taxa de polarização circular máxima. O arranjo experimental da lâmina de 1/4 de onda tem chegada prevista para Maio de 2016.

5 Comentários do Orientador

Meu orientador concorda com o expressado neste relatório e deu a seguinte opinião:

Eduardo teve uma ótima dedicação ao trabalho de iniciação científica nesse início do trabalho. Ele estudou bastante toda a literatura e se focou em estudar todos os conceitos já reportados na literatura necessários para o desenvolvimento do trabalho. Além disso, ele dedicou uma grande parte do tempo em detalhar o projeto e desenho do arranjo experimental a ser usado de forma definitiva no síncrotron atual e Sirius, considerando todas as condições de contorno. Isso é demonstrado no excelente relatório apresentado em que ele descreve com suas próprias palavras de forma sucinta o conhecimento adquirido até aqui. Eduardo demonstra um aprendizado rápido e é sempre curioso para todas as novas questões que lhe aparecem, além de ter iniciativa para procurar as respostas, qualidades essenciais para um jovem e promissor profissional na área de física.

6 Agradecimentos

Agradeço imensamente ao Narcizo, ao Carlos e ao Jairo, pois sem sua ajuda e paciência eu não teria conseguido desenvolver todo esse trabalho nesse período.

Agradecemos à Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado de São Paulo - Fapesp pela bolsa.

7 Referências

- [1] Cezar, J. C., et al., Aplicação de Técnicas de Absorção de Raios X no Estudo de Materiais Magnéticos. *Revista Brasileira de Ensino de Física*, 2000, 363.
- [2] Reis, R. D. dos, Efeitos da hibridização (4f,5f)/(5d,6d) no magnetismo de compostos intermetálicos.
- [3] Site do ALS - Advanced Light Source (U.S. Department of Energy Office of Science): <http://xraysweb.lbl.gov/webpage/Project/TutorialContrast.shtml>
- [4] Tolentino, H. C. N., et al., Linear and circularly polarized light to study anisotropy and resonant scattering in magnetic thin films. *J. Synchrotron Rad.* (2005). 12, 168–176.
- [5] Hirano, K., et al., An X-Ray Phase Plate Using Bragg-Case Diffraction. *Japanese Journal of Applied Physics* (1991), 30, 407–410.
- [6] Hirano, K., et al., Switching of Photon Helicities, in the Hard X-ray Region with a Perfect Crystal Phase Retarder. *Japanese Journal of Applied Physics* (1992), 31, 1209–1211.
- [7] Hirano, K., et al., Transmission-Type X-Ray Phase Retarder Using Ge Crystal in Laue Diffraction Geometry. *Japanese Journal of Applied Physics* (1994), 33, 689–692.
- [8] Jens Als-Nielsen, Des McMorrow, *Elements of Modern X-ray Physics*.
- [9] Cezar, J. C., et al., Energy-dispersive X-ray absorption spectroscopy at LNLS: investigation on strongly correlated metal oxides. *J. Synchrotron Rad.* (2010). 17, 93–102.
- [10] Pascarelli, S., et al., Turbo-XAS: dispersive XAS using sequential acquisition. *J. Synchrotron Rad.* (1999). 6, 1044 - 1050.
- [11] Boada, R., et al., X-ray magnetic circular dichroism measurements using an X-ray phase retarder on the BM25 A-SpLine beamline at the ESRF. *J. Synchrotron Rad.* (2010). 17, 308–313.
- [12] John David Jackson, *Classical Electrodynamics*.
- [13] Suzuki, M., et al., Polarization control of an X-ray free-electron laser with a diamond phase retarder. *J. Synchrotron Rad.* (2014). 21.