

BR8919452

ISSN 0101-3084

IPEN - PUB - - 212

**CNEN/SP**

**ipen** Instituto de Pesquisas  
Energéticas e Nucleares

DIFRAÇÃO MÚLTIPLA MAGNÉTICA DE NÉUTRONS EM UM  
CRISTAL NATURAL DE MAGNETITA

Vera Lucia Mazzocchi e Carlos Benedicto Ramos Parente

PUBLICAÇÃO IPEN 212

SETEMBRO/1988

SÃO PAULO

**DIFRAÇÃO MÚLTIPLA MAGNÉTICA DE NÉUTRONS EM UM  
CRISTAL NATURAL DE MAGNETITA**

Vera Lucia Mazzocchi e Carlos Benedicto Ramos Parente

**DEPARTAMENTO DE FÍSICA E QUÍMICA NUCLEARES**

**CNEN/SP  
INSTITUTO DE PESQUISAS ENERGÉTICAS E NUCLEARES  
SÃO PAULO - BRASIL**

**Série PUBLICAÇÃO IPEN**

**INIS Categories and Descriptors**

**A13.10**

**CRYSTAL STRUCTURE  
MAGNETISM  
MAGNETITE  
MULTIPLE SCATTERING  
NEUTRON DIFFRACTION**

---

**IPEN - Doc - 3081**

**Aprovado para publicação em 05/01/88.**

**Nota: A redação, ortografia, conceitos e revisão final são responsabilidade do(s) autor(es).**

# DIFRAÇÃO MÚLTIPLA MAGNÉTICA DE NÊUTRONS EM UM CRISTAL NATURAL DE MAGNETITA\*

Vera Lucia Mazzocchi e Carlos Benedicto Ramos Parente

## RESUMO

Difração Múltipla de Nêutrons foi empregada em um estudo do magnetismo existente na magnetita ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ). A magnetita tem uma estrutura cristalográfica tipo spinel com sítios tetraédricos A ocupados exclusivamente por íons trivalentes  $\text{Fe}^{3+}$  e sítios octaédricos B ocupados tanto por íons  $\text{Fe}^{2+}$  como pelos íons remanescentes  $\text{Fe}^{3+}$ , em uma distribuição ao acaso. É ferromagnética do tipo Néel A-B, na temperatura ambiente, com íons nos sítios A e B acoplados antiferromagneticamente. Esse acoplamento desaparece em  $T_c \cong 580^\circ\text{C}$ . Utilizando um cristal natural de magnetita foram obtidos experimentalmente diagramas de difração múltipla da reflexão primária 111 na temperatura ambiente e em  $703^\circ\text{C}$ . Esta reflexão é quase que inteiramente de origem magnética resultando em diagramas do tipo "Aufhellung", abaixo de  $T_c$ , e do tipo misto "Aufhellung-Umweganregung" acima de  $T_c$ . Diagramas teóricos foram calculados empregando o método iterativo de aproximação das intensidades por expansão em série de Taylor, e comparadas com os resultados experimentais.

## MAGNETIC NEUTRON MULTIPLE DIFFRACTION IN A NATURAL CRYSTAL OF MAGNETITE

## ABSTRACT

Neutron multiple diffraction has been employed in the study of the magnetism in magnetite ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ ). Magnetite has a crystallographic structure of an inverted spinel with tetrahedral A sites occupied solely by trivalent  $\text{Fe}^{3+}$  ions and octahedral B sites occupied both by divalent  $\text{Fe}^{2+}$  ions and

---

(\*) Trabalho apresentado no X Congresso del Grupo Iberoamericano de Cristalografia, realizado no México - DF, de 11 a 15 de Abril de 1988.

the remaining  $\text{Fe}^{3+}$  ions in random distribution. At room temperature magnetite is a Néel A-B ferrimagnet where the ions on the A, B sites are coupled antiferromagnetically. This coupling disappears at  $T_c \approx 580^\circ\text{C}$ . Employing a natural single crystal of magnetite experimental neutron multiple diffraction patterns were obtained for the primary reflection 111 at room temperature and  $703^\circ\text{C}$ . This reflection is almost entirely magnetic in origin resulting in 'Aufhellung' patterns below  $T_c$  and mixed 'Aufhellung-Umweganregung' patterns above  $T_c$ . Theoretical patterns were calculated employing the iterative method for the approximation of intensities by a Taylor series and compared to the experimental results.

## INTRODUÇÃO

Recentemente, em um estudo das fases alfa e beta do quartzo, Mazzocchi<sup>(4)</sup> utilizou a difração múltipla de nêutrons como técnica de análise estrutural. Os resultados conseguidos no estudo de duas possíveis estruturas para o quartzo beta, demonstraram a validade dessa aplicação<sup>(5)</sup>. O presente trabalho corresponde a uma extensão dessa técnica ao estudo de estruturas magnéticas, aproveitando-se da bem conhecida interação magnética dos nêutrons com os momentos magnéticos dos átomos de uma estrutura cristalina<sup>(1)</sup>. Para isso foi utilizado um monocristal natural de magnetita e com ele determinados os diagramas experimentais de difração múltipla da reflexão primária 111, na temperatura ambiente e em  $703^\circ\text{C}$ . Em  $T_c \approx 580^\circ\text{C}$ , a magnetita sofre uma transição de fase magnética passando de um estado ferrimagnético a um estado paramagnético<sup>(1,6)</sup>. Diagramas teóricos, correspondentes aos experimentais, foram obtidos com a utilização de um programa de computador que calcula a intensidade multiplamente difratada em um caso de muitos feixes e alta extinção secundária<sup>(4,9)</sup>. Uma comparação entre os resultados teóricos e experimentais permite uma primeira

avaliação do emprego do método de estruturas magnéticas.

#### A ESTRUTURA DA MAGNETITA

A magnetita,  $Fe_3O_4$ , é um composto do tipo  $A^{2+}B_2^{3+}O_4$  com estrutura cristalina do tipo spinel invertido. Sua rede de Bravais é cúbica de faces centradas e sua estrutura está de acordo com o grupo espacial  $Fd3m$ , com 8 unidades de  $Fe_3O_4$  por cela unitária. Na estrutura, os átomos de oxigênio ocupam as posições especiais:

(32e)  $x, x, x ; 1/4 - x, 1/4 - x, 1/4 - x ;$   
 $x, \bar{x}, \bar{x} ; 1/4 - x, 1/4 + x, 1/4 + x ;$   
 $\bar{x}, x, x ; 1/4 + x, 1/4 - x, 1/4 + x ;$   
 $\bar{x}, \bar{x}, x ; 1/4 + x, 1/4 + x, 1/4 + x .$

somadas às coordenadas das posições equivalentes  $0, 0, 0 ; 0, 1/2, 1/2 ; 1/2, 0, 1/2 ; 1/2, 1/2, 0$  correspondentes às translações dos centros das faces (translações FC). Os íons de  $Fe^{3+}$  ocupam as posições especiais:

(8a)  $0, 0, 0 ; 1/4, 1/4, 1/4 +$  translações FC.

Os íons de  $Fe^{2+}$  e os íons de  $Fe^{3+}$  restantes ocupam as posições especiais:

(16d)  $5/8, 5/8, 5/8 ; 5/8, 7/8, 7/8 ; 7/8, 5/8, 7/8 ;$   
 $7/8, 7/8, 5/8 +$  translações FC.

A estrutura magnética da magnetita é do tipo Néel A-B<sup>(6)</sup>, onde A são sítios tetraédricos correspondentes às posições (8a) e B sítios octaédricos correspondentes às posições (16d). Os íons nos sítios A estão acoplados aos íons nos sítios B, em uma disposição antiferromagnética. Devido ao maior número de

íons de ferro nos sítios B, a resultante não é nula, caracterizando, portanto, uma estrutura ferrimagnética<sup>(1)</sup>.

#### O FATOR DE ESTRUTURA DA MAGNETITA

A intensidade do espalhamento coerente, experimentado por um feixe de nêutrons não polarizado incidente em uma amostra com estrutura magnética, é proporcional a um fator de estrutura  $F$  ao quadrado que inclui tanto uma contribuição do espalhamento nuclear quanto do magnético, ou seja:

$$F_{hkl}^2 = F_{hkl, \text{nuclear}}^2 + F_{hkl, \text{magnético}}^2$$

onde

$$F_{hkl, \text{nuclear}}^2 = \left| \sum_n b_n \cdot \exp(2\pi \cdot i(h \cdot x_n/a + k \cdot y_n/b + l \cdot z_n/c)) \right|^2$$

$$F_{hkl, \text{magnético}}^2 = \left| \sum_n q_n \cdot p_n \cdot \exp(2\pi \cdot i(h \cdot x_n/a + k \cdot y_n/b + l \cdot z_n/c)) \right|^2$$

A somatória na parte nuclear é estendida a todos os átomos da estrutura enquanto que, na parte magnética, ela é limitada aos átomos com momento magnético. O vetor  $\vec{q}$  é o vetor de interação magnética definido por:

$$\vec{q} = \vec{\epsilon} (\vec{\epsilon} \cdot \vec{K}) - \vec{K}$$

onde  $\vec{K}$  é um vetor unitário na direção do spin magnético atômico, e  $\vec{\epsilon}$  é um vetor unitário na direção do vetor de espalhamento da reflexão de índices de Miller  $h, k, l$ . O módulo de  $q$  é igual a:

$$q = \text{sen } \alpha$$

onde  $\alpha$  é o ângulo formado pelos vetores  $\vec{k}$  e  $\vec{\tau}$ .  $b_n$  é a amplitude de espalhamento nuclear do átomo de coordenadas  $x_n, y_n, z_n$  em uma cela unitária com parâmetros  $a, b, c$  e  $p_n$  é a amplitude de espalhamento magnético desse átomo. A amplitude  $p_n$  é dada por:

$$p = (e^2 \cdot \gamma / m \cdot c^2) \cdot S \cdot f$$

onde  $(e^2 \cdot \gamma / m \cdot c^2)$  é o raio clássico do elétron,  $S$  é o número quântico de spin do átomo espalhador e  $f$  é o fator de forma do espalhamento. No caso da magnetita,  $S$  é igual a 2 e 5/2 para os íons de  $Fe^{2+}$  e  $Fe^{3+}$ , respectivamente<sup>(1)</sup>.

No caso mais geral, em que não se pode definir um único domínio magnético na amostra, o  $|\vec{q}|^2$  resultante em  $F_{hkl, mag}^2$  é simplesmente igual a 2/3. Este é o caso da magnetita, onde os momentos magnéticos formam domínios de acordo com as seis possíveis orientações {001}. Levando em conta os seus particulares átomos e íons pode-se, finalmente, escrever para a magnetita:

$$\begin{aligned}
 F_{hkl}^2 = & \left| \sum_{8a+} b_{Fe} \cdot \exp(2\pi i/a(h \cdot x_n + k \cdot y_n + l \cdot z_n)) + \right. \\
 & \left. - \sum_{32e} b_0 \cdot \exp(2\pi i/a(h \cdot x_n + k \cdot y_n + l \cdot z_n)) + \right. \\
 & \left. + 2/3 \left| \sum_{16d} \bar{p}_{Fe} \cdot \exp(2\pi i/a(h \cdot x_n + k \cdot y_n + l \cdot z_n)) + \right. \right. \\
 & \left. \left. - \sum_{8a} p_{Fe^{3+}} \cdot \exp(2\pi i/a(h \cdot x_n + k \cdot y_n + l \cdot z_n)) \right|^2 \right. \quad (1)
 \end{aligned}$$

No fator de estrutura ao quadrado acima,  $a$  é o parâmetro da rede cúbica da magnetita e  $\bar{p}_{Fe}$  é o valor médio entre  $p_{Fe^{3+}}$  e  $p_{Fe^{2+}}$ , isto é,  $\bar{p}_{Fe} = (p_{Fe^{3+}} + p_{Fe^{2+}})/2$ , uma vez que os íons

ocupam as posições 16d aleatoriamente e em igual número. A diferença entre as somatórias de contribuição magnética se deve ao postulado de que os íons nos sítios A estão acoplados anti-ferromagneticamente com os íons nos sítios B. Por este motivo,  $p_{Fe^{3+}}$  foi tomado negativo.

#### A REALIZAÇÃO EXPERIMENTAL

Os diagramas experimentais foram obtidos no difratômetro de nêutrons instalado no reator IEA-R1 do IPEN-CNEN/SP, em arranjo experimental apropriado a este tipo de experiência<sup>(4)</sup>. O aquecimento do cristal foi conseguido com a utilização da mesma cápsula de aquecimento empregada no estudo da fase beta do quartzo. A resistência de aquecimento, entretanto, foi modificada de forma a evitar a aplicação de campos magnéticos sobre a amostra. O fio da resistência foi enrolado na forma helicoidal, para torná-lo mais curto e a resistência resultante colocada em zig-zag próximo à parede interna do cilindro, sustentada por isoladores adequados de alumina recozida. A forma de zig-zag tinha o objetivo de evitar o aparecimento de campos magnéticos sobre o cristal, conforme mencionado acima. O cristal foi colocado com a direção  $\langle 111 \rangle$  na direção do eixo do cilindro e todo o conjunto mantido em posição por alumina em pó bem compactada. A alumina ( $Al_2O_3$ ) é pouco absorvedora de nêutrons, uma vez que os coeficientes de absorção lineares valem, para o alumínio  $8 \times 10^{-3} \text{ cm}^{-1}$ , e para o oxigênio, praticamente zero (v. tabela 6, cap.3, do Bacon, 1975). Quanto ao espalhamento incoerente, que poderia dar origem a uma radiação de fundo muito intensa, tanto o alumínio quanto o oxigênio são espalhadores quase que exclusivamente coerentes (v. tabela 2, cap.2, do Bacon, 1975), não causando este tipo de problema.

A alumina, foi verificado, não apresenta nenhuma reflexão de Bragg coincidente com a reflexão primária utilizada.

O aquecimento foi realizado utilizando-se de um transformador de saída variável (VARIVOLT) e a temperatura, tanto da resistência de aquecimento quanto do cristal, foram monitoradas por termopares em disposição semelhante ao utilizado no mencionado estudo do quartzo beta. Durante o processo de elevação de temperatura, a tensão de saída do transformador foi sendo gradualmente elevada até se atingir uma temperatura bem acima da transição. No final do processo, a temperatura estabilizou-se em cerca de 703°C.

O diagrama experimental na temperatura ambiente, foi obtido com o cristal na cápsula de aquecimento. Antes de serem iniciadas as contagens, foi feito o necessário ajuste da posição do cristal para a obtenção do máximo da reflexão primária<sup>(7)</sup>. Para a obtenção do diagrama em alta temperatura, foi feito um reajuste da posição do cristal, corrigindo os desvios que surgem como consequência do próprio aquecimento. O intervalo angular total, em ambos os diagramas, estendeu-se de 0 a 83,5°, na escala de medição do ângulo azimutal  $\phi$ . Tendo sido o cristal colocado na cápsula de forma que a direção cristalográfica da reflexão de referência<sup>(2)</sup> coincidissem com a direção da origem na escala de medição, esta origem coincidiu praticamente com a origem da escala de indexação. Desta forma, para uma reflexão primária com simetria de ordem 3, como é o caso da reflexão primária 111 utilizada, no intervalo angular total está incluído um diagrama completo (60°) de difração múltipla<sup>(5)</sup>. O tempo de contagem foi de 5 minutos para cada ponto e o passo angular utilizado de 0,1°. Os dados experimentais foram obtidos automaticamente, por meio do sistema

de controle e aquisição de dados do difratômetro de nêutrons que emprega um microcomputador da linha Apple, adequadamente interfaciado e programado.

#### OS DIAGRAMAS TEÓRICOS

Os diagramas 'Aufhellung' teóricos foram obtidos com um programa de computador que utiliza o método de cálculo iterativo por aproximação em série de Taylor<sup>(8)</sup>. O programa, antes utilizado no já mencionado estudo do quartzo beta, foi adaptado para um estudo da estrutura magnética da magnetita. As modificações principais foram passagem do sistema hexagonal do quartzo beta para o cúbico da magnetita e substituição do cálculo do fator de estrutura puramente nuclear do quartzo para o fator de estrutura nuclear + magnético da magnetita, de acordo com a expressão (1).

A Figura 1 mostra trechos calculados pelo programa considerando as contribuições magnética e nuclear simultaneamente, a contribuição puramente magnética e a contribuição puramente nuclear.

Na análise de dados apresentada a seguir, os diagramas teóricos foram calculados considerando somente as contribuições nuclear + magnética e puramente nuclear que correspondem, respectivamente, aos casos ferrimagnético e paramagnético. A contribuição puramente magnética não pode ser obtida isoladamente, na experiência, e o seu cálculo serve apenas para mostrar o grau dessa contribuição.

A Figura 2 mostra trechos idênticos dos diagramas experimental e teórico da magnetita ferrimagnética. Os parâmetros  $b_{Fe}$ ,  $b_O$ ,  $p_{Fe^{2+}}$  e  $p_{Fe^{3+}}$ , empregados no cálculo, foram os mes

mos utilizados por Hamilton<sup>(3)</sup> com, respectivamente, os seguintes valores ( $\times 10^{-12}$  cm): 0,96; 0,58; 1,08f e 1,35f. O parâmetro  $b_T$ , isotrópico de temperatura, foi determinado por esse mesmo autor como tendo o valor  $0,98 \text{ \AA}^{0-2}$ . O parâmetro da rede cúbica  $a$ , empregado no cálculo, foi relatado por Olés e colaboradores<sup>(6)</sup> com o valor  $8,39425 \text{ \AA}$ . O parâmetro de posição atômica do oxigênio  $x$ , por sua vez, é dado por Wickoff<sup>(10)</sup> com o valor 0,379. O coeficiente linear de absorção da magnetita foi considerado desprezível, nos cálculos. Na Figura 2 é nítida a simetria do diagrama em relação à posição  $\theta = 30^\circ$  o que é uma característica dos diagramas de difração múltipla.

A Figura 3 é o equivalente da Figura 2 para o caso paramagnético, acrescida de alguns trechos calculados com diferentes valores de  $a$ . Deve-se mencionar que, até onde pudemos verificar na literatura, os valores dos parâmetros  $x$ ,  $b_T$  e  $a$  não foram determinados em temperaturas acima da transição ferri-para. Por este motivo procuramos determinar os valores dos parâmetros que produzissem uma melhor concordância entre os diagramas teórico e experimental da magnetita paramagnética. É o que será mostrado na próxima secção. Deve-se notar ainda que, em ambas as Figuras, os espectros teóricos estão graficados na forma  $\Gamma \times \theta$ , onde  $\Gamma$  é a razão entre a intensidade múltiplamente difratada na direção do feixe primário e essa mesma intensidade na ausência de difração múltipla<sup>(2)</sup>. Desta forma, embora tenhamos procurado utilizar escalas que resultassem em gráficos de amplitudes semelhantes, as escalas são diferentes entre os diagramas teóricos e experimentais, e assim devem ser consideradas.

No cálculo do diagrama da magnetita ferrimagnética, o fator de forma magnético utilizado foi o do íon  $\text{Fe}^{3+}$  na própria

magnetita (v. pag. 228 do Bacon, 1975). A curva foi utilizada tanto para os íons  $Fe^{3+}$  como para os íons  $Fe^{2+}$ .

#### A ANÁLISE DOS DADOS

A análise dos dados foi feita de modos distintos para as fases ferri e paramagnética. No caso ferrimagnético, intensidades integradas de diversos picos do diagrama experimental foram calculadas e comparadas com as intensidades dos picos correspondentes no diagrama teórico. O diagrama teórico foi calculado com os parâmetros encontrados na literatura, conforme mencionado na seção anterior. A Tabela I mostra o resultado dessa comparação, onde as posições angulares dos picos são também indicadas, com o fim de permitirem a identificação desses picos. O grau de concordância foi verificado com a utilização de um programa de computador<sup>(4)</sup> que calcula o fator de concordância R, expresso pela bem conhecida fórmula:

$$R = \frac{\sum_k |I_k(\text{obs}) - C \cdot I_k(\text{calc})|}{\sum_k I_k(\text{obs})}$$

em função de C, fator de escala entre os diagramas teórico e experimental. Os outros símbolos da fórmula são facilmente identificáveis. O menor valor de R, para um determinado C, encontrado para o conjunto de intensidades integradas, está indicado na própria Tabela I.

No caso paramagnético, o diagrama é de baixa intensidade devido ao fato do fator de estrutura nuclear da reflexão primária III ser praticamente nulo. Por este motivo o diagrama resultou do tipo misto Aufhellung-Umweganregung. Além disso, os parâmetros utilizados na fase ferri não são adequados ao

cálculo na fase para, obviamente devido ao aumento substancial da temperatura. Em particular, o parâmetro da rede  $a$  é bastante sensível à temperatura. A alteração do seu valor muda substancialmente o diagrama teórico, em particular a posição dos picos e conseqüentemente a concordância com o diagrama experimental. Na própria Figura 3 é possível verificar que a concordância (qualitativa) entre os diagramas não é definitivamente boa, quando o diagrama teórico é calculado com os valores dos parâmetros da fase ferri (corresponde na Figura 1 ao diagrama teórico superior). Com o aumento do valor de  $a$ , a concordância ainda não é suficientemente boa até  $8,450 \text{ \AA}$ . A partir de  $8,470 \text{ \AA}$  os diagramas começam a exibir uma melhor concordância. Por este motivo, acima deste valor, os diagramas da Figura foram calculados com os acréscimos necessários passando de  $0,02 \text{ \AA}$  para  $0,005 \text{ \AA}$ .

Na realidade, após os primeiros resultados de análise qualitativa da magnetita para, mostrados na Fig. 3, foi feita uma análise mais completa, correspondente à um refinamento dos parâmetros  $a$ ,  $b_T$  e  $x$ . A comparação entre os diagramas paramagnéticos foi feita de modo distinto daquele utilizado no caso ferri, conforme mencionado no início. A comparação, no caso para, foi realizada ponto a ponto. Isto é, em lugar das intensidades integradas utilizadas no cálculo de  $R$ , foram utilizados os valores, ponto a ponto, das intensidades teórica e experimental. Para tal, foi utilizado um programa de computador, similar ao anteriormente mencionado, onde os  $I_k(\text{obs})$  e os  $I_k(\text{calc})$  na expressão de  $R$ , foram substituídos por  $y_k(\text{obs})$  e  $y_k(\text{calc})$ , ou seja, pelos valores ponto a ponto da intensidade nos diagramas. Desta forma, foi realizado primeiro um ajuste do valor de  $a$ , considerando um trecho de  $30^\circ$  do diagrama expe

rimental. O cálculo dos diversos diagramas teóricos com  $a$  variando, mantendo  $b_T$  e  $x$  fixos e iguais aos valores da magnetita ferri, permitiu o cálculo de diversos valores de  $R$  mínimo, um para cada um dos valores de  $a$ . O melhor valor de  $a$  foi considerado como aquele correspondente ao menor valor entre os  $R$  mínimos. Em seguida,  $a$  foi conservado com o novo valor,  $x$  com o valor antigo e  $b_T$  variou. Da mesma forma, o melhor valor de  $b_T$  foi considerado como aquele correspondente ao menor valor entre os  $R$  mínimos.

Finalmente, conservando  $a$  e  $b_T$  com os valores novos ajustados, foi determinado o melhor valor de  $x$ , usando do mesmo procedimento. A Figura 4 serve para a comparação entre o diagrama experimental e os teóricos, calculados na forma do ajuste progressivo mencionado acima. É possível de verificar qualitativamente, a melhoria da concordância com a evolução do processo de refinamento utilizado. Os valores de  $R$ , para cada curva, são mostrados na própria Figura, assim como o conjunto de valores dos parâmetros indicados na curva inferior, corresponde aos valores finais do refinamento.

## CONCLUSÕES

Os resultados encontrados para a magnetita nas fases, ferri e paramagnética, mostram a viabilidade da aplicação da difração múltipla de nêutrons na análise estrutural, em particular no caso de estruturas magnéticas. Deve ser considerado, contudo, que alguns fatores influíram nos resultados, impedindo uma melhor concordância entre os diagramas teóricos e experimentais. Assim é que, no caso ferrimagnético, os parâmetros utilizados foram os da literatura. Certamente um processo de

refinamento, como aquele utilizado no caso paramagnético, teria levado a um menor valor de R. De um modo geral, para os dois casos, pode ser afirmado que a introdução, nos cálculos, de um fator de temperatura anisotrópico e de absorção não-nulo, com muita probabilidade levaria também a melhores resultados. Em particular, no caso paramagnético, a pouca intensidade observada no diagrama experimental é outro fator influenciando os resultados. Finalmente, deve ser mencionado que o cristal natural de magnetita utilizado tem forma irregular. Embora a aproximação, não mencionada anteriormente, para um cilindro com 1 cm de raio na base e 3 cm de altura, com eixo orientado na direção do vetor de espalhamento da reflexão primária, seja aceitável, certamente ela introduz erro nos cálculos de intensidade.

Devido aos bons resultados encontrados nesta primeira aplicação da difração múltipla de nêutrons, em análise de estruturas magnéticas, está sendo efetuado o refinamento de parâmetros no caso ferrimagnético.

#### AGRADECIMENTOS

Os autores agradecem a Joel Alvarenga de Sousa, ao supervisor do reator IEA-R1 Roberto Frajndlich e Laurindo Mas-saki Nakano, e aos operadores José Roberto Berretta, Italo Salzano Junior e José Roberto de Mello, pelas operações extras do reator, sem as quais não teria sido possível a execução da parte experimental deste trabalho. Agradecem também aos integrantes do grupo de apoio à pesquisa do IP, liderado por Antonio Soares de Gouvêa, em especial a Maria Aparecida H. Trezza, pela valiosa colaboração na implantação, no sistema TSO do com

putador IBM 4381, do programa de cálculo de diagramas teóricos de difração múltipla.

#### REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

1. BACON, G.E. Neutron diffraction. 3 ed. Oxford, Clarendon, 1975.
2. CATICHA-ELLIS, S. Simultaneous reflections and the mosaic spread in a crystal plate. Acta Crystallogr., Sect. A, 25:666-73, 1969.
3. HAMILTON, W.C. Neutron diffraction investigation of the 119°K transition in magnetite. Phys. Rev., B, 110: 1050-7, 1958.
4. MAZZOCCHI, V.L. Estudo das fases alfa e beta do quartzo com difração múltipla de nêutrons. São Paulo, 1984. (Dissertação de Mestrado, Instituto de Pesquisas Energéticas e Nucleares).
5. MAZZOCCHI, V.L. & PARENTE, C.B.R. Study of beta-quartz by neutron multiple diffraction. 1987. (to be published in Acta Crystallographica).
6. OLÉS, A.; KAJZAR, F.; KUCAB, M.; SIKORA, W. Magnetic structures determined by neutron diffraction. Kraków, Panstwowe Wydawnictwo Naukowe, 1976.
7. PARENTE, C.B.R. Difração múltipla de nêutrons em um cristal de alumínio. São Paulo, 1972. (Tese de Doutorado, Instituto de Física, USP).
8. PARENTE, C.B.R. & CATICHA-ELLIS, S. Multiple scattering of x-rays and neutrons. 1. A recurrence formula for

the Taylor series expansion in the calculation of intensities. Jap. J. Appl. Phys., 13:1501-5, 1974.

9. PIMENTEL, F.J.F.; MAZZOCCHI, V.L.; PARENTE, C.B.R. Approximate intensity solutions for the multiple diffraction of neutron in a many-beam case. 1988. ( to be published).
10. WYCKOFF, R.W.G. Crystal Structures. 2. ed. New York , Wiley, 1965. 3v.

**TABELA 1** - Valores das Intensidades Integradas, Obtidas para a Fase Ferrimagnética da Magnetita

Picos	Intervalo Angular	I(obs)	I(calc)
1	11,7 - 13,3°	240.266	239.136
2	13,3 - 16,1°	412.269	364.805
3	16,2 - 21,8°	780.731	781.139
4	21,9 - 23,1°	154.221	209.820
5	23,1 - 26,3°	435.229	399.296
6	26,5 - 27,9°	178.358	230.825
7	28,2 - 31,8°	465.204	462.922
8	32,1 - 33,5°	198.542	230.498
9	33,7 - 38,1°	581.518	609.346

R = 0,074

C = 19.600

## RELAÇÃO DE FIGURAS

- FIGURA 1 - Trechos dos diagramas de difração múltipla teóricos considerando as contribuições magnética e nuclear simultaneamente, a contribuição puramente magnética e a contribuição puramente nuclear.
- FIGURA 2 - Comparação entre um trecho do diagrama de difração múltipla experimental (diagrama superior) e o correspondente diagrama teórico, para a fase ferrimagnética da magnetita.
- FIGURA 3 - Comparação entre um trecho do diagrama de difração múltipla experimental (diagrama superior) e diagramas teóricos correspondentes para diferentes valores de  $a$ , da fase paramagnética da magnetita.
- FIGURA 4 - Comparação entre um trecho do diagrama de difração múltipla experimental (diagrama superior) e diagramas teóricos correspondentes mostrando o ajuste progressivo dos parâmetros  $a$ ,  $b_T$  e  $x$ , da fase paramagnética da magnetita.

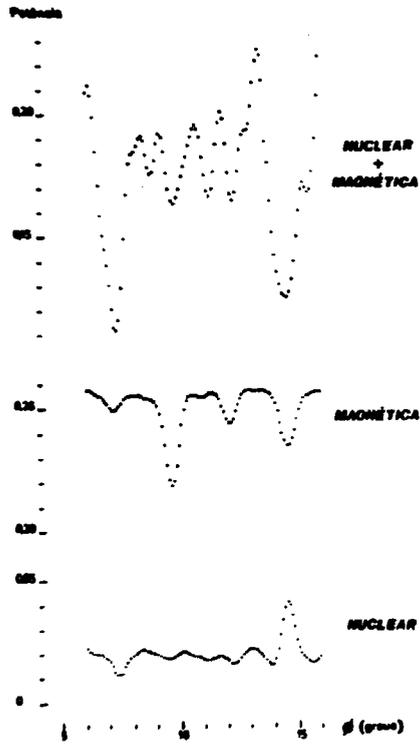


Figura 1

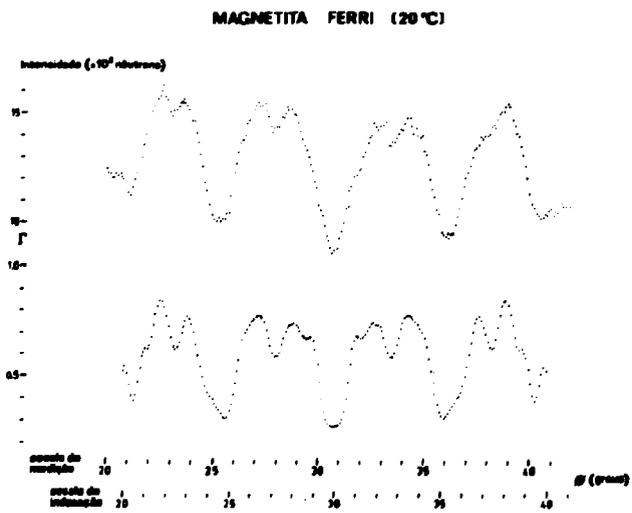


Figura 2

MAGNETITA PARA (703 °C)

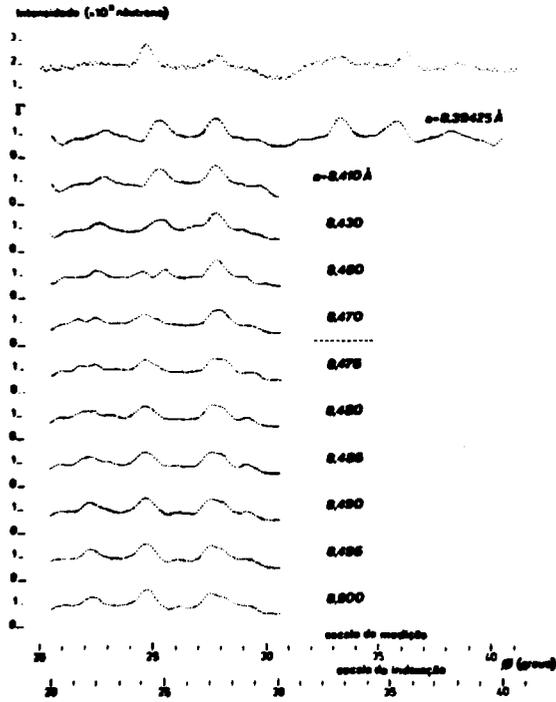


Figura 3

MAGNETITA PARA (703 °C)

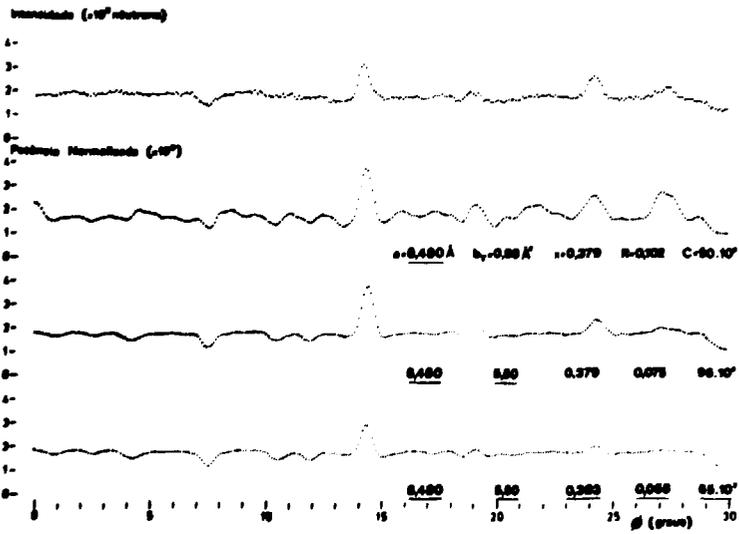


Figura 4