

Tese de Doutorado

*Estudos do Ponto Crítico Quântico de Férmions Pesados em
Condições Extremas de Ultra Baixas temperaturas e Altas
Pressões*

Julio Antonio Larrea Jiménez

CENTRO BRASILEIRO DE PESQUISAS FÍSICAS

Rio de Janeiro, dezembro de 2003

*A mis padres, José y Rosa, y hermanos por conformar una familia unida, sustento de mi
equilibrio emocional.*

A la memoria de Lolo e Kurt

AGRADECIMENTOS

Desejo expressar em primeiro lugar, meu mais profundo agradecimento e reconhecimento à Profª. Dra. Elisa Baggio-Saitovitch por ter me sugerido o tema da tese e orientado no desenvolvimento do presente trabalho.

Também estendo meu reconhecimento e agradecimento ao Prof. Dr. Andreas Eichler (U. F. Braunschweig), pelas valiosas discussões, pelo apoio experimental e pelos gratos momentos compartilhados no laboratório, durante suas visitas ao CBPF.

Expresso meu agradecimento ao Prof. Dr. Mucio Continentino do IF-UFF pelas valiosas discussões teóricas. Da mesma maneira, gostaria de estender meu agradecimento aos grupos de pesquisa liderados pelos Professores alemães Dr. Jochen Litterst (U. F. Braunschweig) e Dr. Abd-Elmeguid (Univ. Köln), pelo gentil recebimento e as valiosas discussões durante minha estadia na Alemanha. Agradeço também ao Dr. C. Carley do G.N.R.S –Grenoble (França) pelas discussões sobre temas de ultrabaixas temperaturas.

Agradeço também aos colegas do laboratório de Supercondutividade e Férmions Pesados, Dra. Magda Fontes, Dra. Ana Paula Alvarenga, Scheilla Ramos, Dr. Jorge Luis, pelo apoio nas facilidades utilizadas durante a realização dos experimentos na minha tese.

Meu agradecimento ao pessoal da criogenia, Sr. Henrique Duarte, Ivanildo e Vicente, pela ajuda nas transferências de He líquido. Agradeço ao senhor Valmir pelo apoio nas células de pressão. Agradeço ao engenheiro Eduardo Shigueo e o Julio pela assistência na parte computacional.

Estendo meu agradecimento a meus amigos com quem tive a sorte de ganhar grandes vivências durante minha moradia no Rio de Janeiro: *Al Chicho Whualkuer* e sua responsabilidade marcante e, *Al che Boyo Luis*, com quem, junto a nossa amiga “La

guitarra”, compartilhei momentos agradáveis da música do grupo *NIRVANA*, aturando algumas vezes o sarcasmo do *tano Edgardo*.

Agradeço também a meus colegas peruanos, ainda morando no Rio, Pablo, Mariela, Miguel, Daniel, Elmer, Richard, e aos que partiram do Rio, Dalber, Marcos, Javier, Rafael, por dividirem muitos momentos de amizade fora do espaço acadêmico. Também agradeço aos colegas brasileiros do CBPF, em especial ao pessoal do futebol das quartas feiras.

Meu agradecimento especial para minhas amigas brasileiras de coração Vera Lucia, Alessandra, Flávia, Rosângela, com quem dividimos momentos agradáveis difíceis de serem esquecidos.

Meu agradecimento aos professores da pós-graduação do CBPF, ao pessoal administrativo da biblioteca e da secretaria de pós-graduação, em especial a dona Myriam sempre eficiente e oportuna para resolver nossos problemas.

Meu agradecimento ao meus colegas e professores da Universidad Nacional Mayor de San Marcos (Decana de América) (Lima - Perú), pelo apoio moral constante.

Meu agradecimento às instituições do Governo Brasileiro que possibilitaram o desenvolvimento desta tese no CBPF: ao CNPq pela bolsa de doutorado concedida e ao programa de intercâmbio DAAD/CAPES pelo apoio na minha estadia na Universidade de Köln (Alemanha).

RESUMO

Este trabalho relata o estudo do comportamento crítico quântico em diversos compostos férmions pesados (HF): $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt e YbFe_2Ge_2 , usando medidas de resistência elétrica sob altas pressões (p) (até ~ 20 GPa) e ultrabaixas temperaturas (desde ~ 50 mK).

Os compostos, $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ e CePt , possuem uma ordem ferromagnética (FM) como estado fundamental ($p=0$), com $T_C = 1.8$ K e 5.8 K, respectivamente. Nossos resultados mostram que a transição magnética-Ponto crítico quântico (QCP) é diferente em cada um destes compostos de Ce. A aplicação de pressão muda a ordem magnética no composto $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, passando da ordem FM para uma antiferromagnética (AF), em torno de $p \sim 0.5$ GPa. Acima desta pressão, o estado AF segue um comportamento típico dos compostos HF, onde a extrapolação de $T_N \rightarrow 0$ define o QCP na pressão crítica $p_C \sim 3.6$ GPa. Por outro lado, o composto rede Kondo FM CePt mostra uma transição direta desde um estado FM para o QCP, em $p_C \sim 12$ GPa. O composto CePt é o primeiro sistema rede de Kondo FM de Ce que mostra uma transição de fase quântica FM direta.

O estado fundamental no férmion pesado YbFe_2Ge_2 está localizado no lado não magnético do diagrama de fase, ao contrário dos compostos de Ce anteriores. Este material apresenta um comportamento líquido de Fermi abaixo da temperatura de coerência (T_{coh}), a qual é reduzida com a pressão. A análise das medidas de resistência elétrica, $R(T)$, sugere a aparição de magnetismo acima de 13 GPa, presumivelmente uma ordem AF. A pressão crítica foi determinada em $p_C \sim 9.7$ GPa, a partir da dependência de $R(T)$ com T em lei de potencia, e da extrapolação de $T_N \rightarrow 0$ K.

Finalmente foram encontradas evidências de que o cenário físico do QCP é o mesmo para todos os compostos estudados, no qual a natureza bidimensional (2D) das flutuações de spin, assim como das excitações magnéticas, têm um papel importante na explicação do comportamento crítico quântico destes férmions pesados.

ABSTRACT

This work reports the study of the quantum critical behavior of several heavy fermions compounds (HF): CePd₂Al₂Ga, CePt and YbFe₂Ge₂ using electrical resistance measurements under higher pressures (p) (up to ~ 20 GPa) and very low temperatures (down to ~ 50 mK).

Both CePd₂Al₂Ga and CePt compounds have ferromagnetic (FM) ground states ($p=0$), with $T_C = 1.8$ K and 5.8 K, respectively. Our results show that the magnetic-quantum critical point (QCP) transition is different for the two Ce compounds. The application of pressure changes the magnetic order in CePd₂Al₂Ga, from FM to antiferromagnetic (AF), around $p \sim 0.5$ GPa. Beyond that pressure, the AF state follows a typical behavior of HF compounds, in which the extrapolation of $T_N \rightarrow 0$ defines the QCP at the critical pressure $p_C \sim 3.6$ GPa. On the other hand, the FM Kondo lattice CePt shows a direct transition from the FM order to QCP at $p_C \sim 12$ GPa. The CePt compound is the first FM Ce Kondo lattice that shows a direct FM quantum phase transition.

Contrary to the previous Ce compounds, the ground state of the heavy fermion YbFe₂Ge₂ is localized in the nonmagnetic side of the phase diagram. This material shows a Fermi liquid behavior below a coherence temperature (T_{coh}), which is reduced as pressure is applied. The analysis of the electrical resistance data suggests the onset of magnetism above 13 GPa, presumably an AF order. From the T dependence power law of $R(T)$ and, the extrapolation of $T_N \rightarrow 0$ K, the critical pressure is determined as $p_C \sim 9.7$ GPa.

Finally, we have found evidences that the physical scenario of QCP is the same for all these compounds, in which the nature of the two dimensional (2D) spin fluctuations, as well as magnetic excitations, play an important role in explaining the quantum critical behavior in these HF compounds.

SUMÁRIO

Agradecimentos	ii
Resumo	iv
Abstract	v
Sumário	vi
Lista de Figuras	x
Lista de Tabelas	xxi
Capítulo 1- Introdução	1
Referências	5
Capítulo 2- Fundamentos Teóricos	6
2.1 Férmions pesados	6
2.2 Teorias do ponto crítico quântico (QCP)	9
2.2.1 Teoria das flutuações de spin (SFT) do comportamento não líquido de Fermi	10
2.2.2 Ondas de spin no comportamento crítico	13
Referências	15
Capítulo 3- Compostos férmions pesados: CePd₂Al₂Ga, CePt, YbFe₂Ge₂	16
3.1 Introdução	16
3.2 Composto CePd ₂ Al ₂ Ga	17

3.3 Composto CePt	23
3.4 Composto YbFe ₂ Ge ₂	31
Referências	36
Capítulo 4- Técnicas experimentais	39
4.1 Os criostatos	39
4.2 Medidas de resistividade AC sob pressão	42
4.2.1 O sistema de resistividade AC	42
4.2.2 As células de pressão utilizadas nas medidas de resistência AC	44
4.2.2.1 Célula de pressão líquida ($P < 1.2$ GPa)	46
4.2.2.2 Célula de pressão de Bridgman ($P \leq 14$ GPa)	49
4.2.2.3 Célula de Compressão com Diamantes (DAC ~ diamond anvil cell)	52
4.2.3 Sistema de diluição ³ He- ⁴ He (dilute)	57
Referências	64
Capítulo 5- CePd₂Al₂Ga: Supressão dos magnons na vizinhança do Ponto crítico quântico.	65
5.1 Introdução	65
5.2 Medidas de resistência elétrica sob pressão	66
5.2.1 Definição do regime magnético do CePd ₂ Al ₂ Ga.	66
5.2.1.1 Mudança na ordem magnética do CePd ₂ Al ₂ Ga induzida por	72

pressão hidrostática.	
5.2.1.2 AF $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ conduzido ao QCP: Supressão dos magnons anisotrópicos.	77
5.2.1.3 $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ em pressões acima do QCP	87
5.3 Conclusões	90
Referências	92
Capítulo 6 - Comportamento crítico quântico da rede Kondo ferromagnética CePt	95
6.1 Introdução	95
6.2 Apresentação dos resultados das medidas de resistência elétrica, $R(T)$, no CePt .	96
6.3 Discussão	104
6.3.1 Comportamento crítico quântico do estado ferromagnético (FM)	104
6.3.2 Acima do QCP. Passagem para o estado Líquido de Fermi	111
6.4 Conclusões	115
Referências	116
Capítulo 7 - Ordenamento magnético induzido por altas pressões no férmion pesado YbFe_2Ge_2	118
7.1 Introdução	118

7.2 Apresentação dos resultados. Análise das medidas de resistência elétrica.	119
<i>7.2.1 A contribuição elétron-fônon à resistividade elétrica do YbFe_2Ge_2</i>	119
7.2.2 Expoentes efetivos e a evolução do estado fundamental do YbFe_2Ge_2 com a pressão.	125
7.3 Discussão dos resultados	128
7.3.1 Líquido de Fermi (FL) conduzido para o ponto crítico quântico (QCP)	130
7.3.2 Magnetismo induzido no YbFe_2Ge_2 em pressões acima do QCP	131
7.4 Conclusões	140
Referências	143
CONCLUSÕES GERAIS	145

Lista de Figuras

- 2.1 Diagrama esquemático dos sistemas férmions pesados (HF), proposto por Continentino, mostrando a linha de coerência (T_{coh}), a linha crítica (T_N no caso antiferromagnético) e a trajetória não líquido de Fermi. A linha $q_c\xi = 1$, separa o regime local do regime crítico real (ver ref. [3]). 7
- 3.1. Estrutura cristalina do sistema $CePd_2(Al, Ga)_3$ do tipo $PrNi_2Al_3$. No caso do composto $CePd_2Al_2Ga$, os íons de Al e Ga encontram-se distribuídos estequiometricamente no plano (001). 18
- 3.2. (a) Dependência com a temperatura e a pressão $\rho(T, p)$, no $CePd_2Al_3$. O “insert” mostra a dependência de T_N com a pressão. (b) Dependência com a temperatura e a pressão $\rho(T, p)$, no $CePd_2Ga_3$. O “insert” mostra a dependência com a pressão de T_C [9]. 19
- 3.3. Diagrama de fase de T_N em função da concentração de Ga x para $CePd_2(Al_{1-x}Ga_x)_3$. Os quadrados representam as temperaturas de transição AF obtidas no experimento com dopagem, enquanto o triângulo indicará a temperatura de transição FM para o $CePd_2Al_2Ga$. A área sombreada mostra a região de composições onde não é possível obter amostras homogêneas [13]. 20
- 3.4.(a). Diagrama de fase proposto para o sistema $CePd_2(Ga_{1-x}Al_x)_3$. As linhas verticais e as setas definem o eixo de pressão para cada composto, respectivamente. (b) Dependência da temperatura de ordem magnética no $CePd_2Al_2Ga$ das medidas de susceptibilidade AC. 21
- 3.5. Medidas de calor específico no $CePd_2Al_2Ga$. A figura do “insert” mostra a dependência da temperatura magnética (T_m) com a pressão. 22

- 3.6 (a) Estrutura cristalina do CePt tipo CrB. (b) Estrutura magnética do composto ferromagnético CePt, vista ao longo do eixo b . Os números inscritos dentro dos átomos de Ce correspondem ao valor do parâmetro y proporcional a 100% do parâmetro de rede b . Os átomos de Pt não são mostrados porque eles têm as mesmas posições x, z dos átomos de Ce. 24
- 3.7 Temperatura de Curie T_C e temperatura Kondo T_K do sistema $CeNi_xPt_{1-x}$ em função do conteúdo x de Ni. Para o $CeNi_{0.95}Pt_{0.05}$ e $CeNi$, que apresentam comportamento paramagnético de Pauli e valência intermediária, T_K não pode ser definida [25]. 26
- 3.8 (a) Resistividade elétrica em função da temperatura, em diferentes pressões, para o CePt e LaPt. (b) Resistividade elétrica em função da temperatura para o CePt, na vizinhança da temperatura de Curie T_C . A dependência de T_C com a pressão é mostrada no insert da figura [29]. 26
- 3.9 Curvas de resistividade elétrica ρ_m versus $\ln T$ no CePt para diferentes pressões [29]. 27
- 3.10 Proposta esquemática do processo de deslocamento do nível de Fermi E_F do Ce por efeitos da pressão. 29
- 3.11. Valores de T_C como função da contração do volume, por efeitos de dopagem ($CePt_{1-x}Ni_x$) e de pressão p (CePt) [29]. 30
- 3.12 Representação esquemática da analogia elétron-buraco nos férmions pesados (HF) de Ce e Yb dentro do diagrama de fase. A região próxima do ponto crítico quântico é governada pelo cenário das flutuações magnéticas (spin fluctuations-SF). 31

- 3.13. (a) Resistividade elétrica em baixas temperaturas do YbRh_2Si_2 , medida ao longo do eixo \underline{a} e em $p=0$, mostrando dependência $\rho(T)=\rho_0+bT^\varepsilon$, com $\varepsilon=1$. [a] Dependência com a temperatura do expoente efetivo ε , definido como $\partial \ln \Delta \rho / \partial \ln T$, onde $\Delta \rho = \rho - \rho_0$ [b] ρ vs T^2 , para $B \leq 14$ T aplicado ao longo do eixo c . A posição dos símbolos indica a temperatura de “crossover”, abaixo da qual $\rho \propto T^2$. (b) [a] Resistividade elétrica do YbRh_2Si_2 para $p = 1.5$ GPa. Anomalias em T_m em ultrabaixas temperaturas (T_1) são observadas, desenvolvendo uma dependência linear acima de T_m . Inset: derivada de $\rho(T)$ com T , mostrando que T_m e T_1 são transições de segunda ordem. (b). Dependência com a pressão de T_m e T_1 para três amostras diferentes. O símbolo em $p=0$ corresponde ao valor de T_N extraído da susceptibilidade magnética [34]. 33
- 3.14. A parte superior mostra o diagrama de fase magnético do YbRh_2Si_2 baseado em dados experimentais da temperatura de ordem (T_m) determinado por (•)espectroscopia Mössbauer e (■, ◆) resistividade elétrica. Além disso, a dependência com a pressão do momento magnético μ_{Yb} é mostrada. A parte inferior ilustra as diferentes fases no diagrama de fase $[JN(E_F), T]$ sugerido pelas ref. [35, 36]. $N(E_F)$ é a densidade eletrônica de estados no nível de Fermi. 34
- 3.15 Estrutura cristalina do YbFe_2Ge_2 , tipo ThCr_2Si_2 . 35
- 4.1 Criostato Janis usado nas medidas de resistência elétrica AC sob pressão no intervalo de temperaturas entre 1.6K e 300 K. 40

4.2 Criostato Oxford utilizado nas medidas de resistência elétrica AC sob pressão em ultrabaixas temperaturas [0.040 K –20 K].	41
4.3. Diagrama de blocos do sistema de medidas de resistividade usado nas medidas AC sob pressão. A frequência utilizada foi de $\nu = 16$ Hz com corrente de excitação de $I = 1$ mA.	43
4.4 Configuração convencional dos contatos para o cálculo da resistividade em uma amostra poliedral [6].	44
4.5 Representação esquemática da célula de pressão líquida utilizada no presente trabalho (< 1.2 GPa) : (1) Porta amostra, (2) Base cônica, (3) Copo de Teflon, (4) Orifício cilíndrico, (5) Parafuso inferior, (6) Pistão interno, (7) Parafuso superior, (8) Pistão externo.	48
4.6 Representação esquemática da célula de Bridgman usada nas medidas de resistência elétrica AC (≤ 14 GPa)	50
4.7 Representação esquemática da montagem das amostras no anvil dentro de uma célula de Bridgman (a) Corte lateral, (b) Corte transversal.	51
4.8. Representação esquemática de uma célula de compressão com diamantes (DAC) utilizada nas medidas de resistência elétrica AC ($p < 30$ GPa).	53
4.9: (a) Alinhamento entre os diamantes (b) Paralelismo entre os diamantes.	54
4.10: (a) Representação esquemática na preparação do isolamento elétrico do gasket e do meio de transmissão hidrostático em uma célula de compressão com diamantes (DAC). (b) Vista transversal da DAC mostrando: (b1) a DAC completamente preparada para medir resistividade elétrica AC e, (b2) Os contatos elétricos.	55

- 4.11. Diagrama de fase da mistura líquida $\text{He}^3\text{-He}^4$ à pressão de vapor de saturação. O diagrama mostra a linha lambda para a transição superfluida de He^4 , a linha de separação de fases da mistura, abaixo da qual se formam uma fase rica em He^3 e em uma fase rica em He^4 , e a linha da temperatura de Fermi (T_F) correspondente à componente He^3 [17]. 58
- 4.12. Representação esquemática de um refrigerador de mistura $\text{He}^3\text{-He}^4$ [17]. 60
- 4.13 Foto do refrigerador de mistura $\text{He}^3\text{-He}^4$ (dilute) utilizado em nossas medidas de resistência elétrica AC, mostrando as componentes principais. 61
- 4.14 Vista esquemática do sistema completo de diluição $\text{He}^3\text{-He}^4$ utilizada nas medidas de resistência elétrica (criostato e sistema de controle de bombeamento). No sistema de controle: G= Grupo de bombas de alto vácuo, P= Bomba, C= Bomba Compressora, R= Reservatório da mistura $\text{He}^3\text{-He}^4$, F=Filtros, S= Válvula de segurança. 63
- 5.1 Curvas de resistência elétrica, em função da temperatura e da pressão para um primeiro bloco de amostras do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$. As curvas estão normalizadas aos valores das resistências em $T= 120\text{K}$, e as setas indicam a temperatura onde a resistência tem seu máximo valor (T_{max}^R) 66
- 5.2. Medidas de resistência elétrica normalizadas a 20 K ($R/R(20\text{K})$) em diferentes pressões. O retângulo mostra o regime de temperaturas estudado que é apresentado na Fig. 5.3. 67
- 5.3. Medidas de resistência elétrica no intervalo de baixas temperaturas, para algumas pressões representativas. As linhas sólidas representam os ajustes considerando as contribuições do espalhamento elétron-magnon e líquido de Fermi (FL), que serão abordadas mais adiante. 68

- 5.4 Segunda derivada da resistência elétrica, $d^2R/dT^2(\Omega^2/K^2)$, no CePd₂Al₂Ga para algumas pressões. 69
- 5.5 Dependência com a pressão da temperatura de ordem magnética, T_{mag} , extraída das medidas de resistência elétrica $R(T)$ e calor específico $C(T)$ (ref. [9]). 70
- 5.6. $\Delta R=(R-R_0)$ vs. $\ln T$. As linhas retas, com pendente ε , são construídas a partir da relação $\Delta R=R-R_0= aT^\varepsilon$. 71
- 5.7 Dependência com a pressão do expoente efetivo ε . A seta indica a transição de uma fase magnética para uma paramagnética 72.
- 5.8 Temperatura de ordem magnética (T_{mag}), gap das ondas de spin FM e AF e, coeficientes A e b (calculados das eq. 5.2 e 5.3) em função da pressão. As linhas pontilhadas são usadas como guia. 75
- 5.9 Linhas críticas para diferentes expoentes efetivos ψ associados a transição AFM-QCP no CePd₂Al₂Ga. 78
- 5.10. Proposta de estrutura magnética para o CePd₂Al₂Ga. (a) Caso ferromagnético (FM). (b) Caso antiferromagnético (AF). (c) Caso das flutuações de spin bidimensionais (2D-SF), que por simplicidade foi representada apenas num plano. 82
- 5.11. T_N e gap em função da pressão para a ordem antiferromagnética (AF). As linhas retas representam as diferentes formas de queda linear do gap definindo diferentes pontos de corte no eixo P (p_C^{Gap}). A curva pontilhada é reproduzida substituindo na eq. 5.5, para o caso 2D, a função linear para o gap da forma $\Delta(p)=0.2*(3.5-p)$ e $\Gamma/k_B =2.55$ K. 83

- 5.12. Curvas de $T_N(p)$ calculadas a partir da eq. (5.5), para diferentes expressões lineares do gap que dependem da pressão e do valor de p_C^{Gap} escolhido. 84
- 5.13. Comparação entre as curvas previstas pelos modelos teóricos, campo médio (MF) e as ondas de spin em duas dimensões (SW-2D), e os valores experimentais de T_N obtidos a partir da análise dos dados de $R(T)$ 85
- 5.14 (a). $R(T)$ vs T^2 para diferentes pressões. A seta indica o limite máximo do comportamento com T^2 (T^*). (b) Representação de T^* em função da pressão. A dependência de T^* com a pressão está em contradição com o que se espera para um estado líquido de Fermi (FL) na fase paramagnética, indicando que o material se encontra na fase magnética em pressões menores que o QCP. 88
- 5.15. Diagrama de fase tentativo para o férmion pesado $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ proposto a partir da análise de $R(T)$. FM = Ferromagnético, AF=antiferromagnético, PM = paramagnético, FL = Líquido de Fermi, NFL = Não Líquido de Fermi e, 2D-SF = Flutuação de spin bidimensional. $T_{\text{mag}} \sim$ temperatura de ordem magnética e $T_{\text{coh}} \sim$ Temperatura de coerência. 90
- 6.1 Curvas de resistência elétrica da rede Kondo CePt e do composto não magnético LaPt, normalizadas à temperatura ambiente $R(T)/R(300 \text{ K})$, em diferentes pressões. O retângulo pontilhado mostra o intervalo de temperaturas de interesse para a observação dos fenômenos críticos quânticos. 96
- 6.2 Medidas de $R(T)$ do CePt no intervalo de baixas temperaturas, $T < 30 \text{ K}$, para algumas pressões representativas. (a) Abaixo de 11 GPa, (b) Acima de 11 GPa. As setas indicam as posições onde as inflexões em $R(T)$ são observadas e associadas a T_C . 97

- 6.3 Dependência com a temperatura da resistividade elétrica sem a contribuição elétron-fônon ($\rho - \rho_{ph}$). As linhas retas indicam uma dependência $-\log T$ em altas temperaturas. 98
- 6.4. Curvas de susceptibilidade magnética ac (χ_{AC}) para diferentes pressões. Estas medidas foram realizadas pelo grupo do Institut für Technische Physik - Technische Universität Braunschweig (Alemanha)[13]. 99
- 6.5 $\log(R - R_0)$ vs. $\log T$ para o CePt na pressão $p = 12.2$ GPa. R_0 é a resistência residual. A análise feita com a lei $\Delta R = R - R_0 \propto T^\varepsilon$ mostra dois intervalos diferentes de temperaturas, onde $\varepsilon = 2$ para $T < 7$ K, e $\varepsilon = 1.34$ para $7 < T < 30$ K. 100
- 6.6. Resistência elétrica $R(T)$ vs. T^2 . T_{coh} é a temperatura de coerência abaixo da qual o sistema se comporta como um líquido de Fermi, com dependência linear $R(T)$ com T^2 . 101
- 6.7 Valores da temperatura de Curie (T_C), obtidos mediante as medidas de resistência elétrica $R(T)$ e susceptibilidade magnética $\chi(T)$. A temperatura de coerência (T_{coh}) também é mostrada. O ponto crítico quântico (QCP) pode ser encontrado próximo a 12 GPa [15] 102
- 6.8 Valores de T_C em função da contração do volume ($-\Delta V/V$), obtida em diferentes experimentos: [P] pressão (este trabalho) e [A] ligas [ref. 12] 103
- 6.9 Ajustes das curvas $T_C(P)$ e $T_{coh}(P)$ usando a função analítica $\delta = -aT^2 - bT^{1/\psi}$, onde $\delta = |P - P_c|$ e ψ é o expoente efetivo. Para $T_C(P)$, $\psi = 3/4$ (3d) ou $\psi = 1$ (2d) reproduzem satisfatoriamente a linha crítica. Para $T_{coh}(P)$, $\psi = 3/2$ associado ao expoente dinâmico $z=3$. 105

- 6.10 Resistividade magnética ρ_{mag} em função da temperatura para diferentes pressões. As curvas sólidas representam o ajuste dos dados ρ_{mag} pela contribuição do gap das ondas de spin FM. 106
- 6.11 Temperatura de Curie (T_C), gap das ondas de spin FM (Δ) e, o coeficiente b em função da pressão. A linha pontilhada serve como guia, enquanto que, a linha sólida é calculada usando a relação (6.3) com $\Gamma/k_B = 25.8 \text{ K}$ e $\Delta(P) = 4.28 |P-12|$ 108
- 6.12 Estrutura cristalina do CePt observada ao longo de eixo b . As bolas maiores representam os átomos de Ce 110
- 6.13 Dependência com a pressão do coeficiente A do termo T^2 no estado líquido de Fermi (FL). A linha sólida é o ajuste dos pontos experimentais dando uma pressão de divergência próxima de 12.1 GPa. 111
- 6.14 Medidas de resistência elétrica do CePt para pressões acima de 13 GPa a baixas temperaturas. As linhas sólidas são os ajustes usando a expressão 6.4 para uma impureza Kondo diluída. 112
- 6.15 Dependência com a pressão da concentração das impurezas magnéticas diluídas (c_{imp}) e a temperatura onde $R(T)$ é mínimo (T_{min}) 113
- 7.1 Curvas de resistência elétrica $R(T)$ do YbFe_2Ge_2 em diferentes pressões, normalizadas com respeito ao valor da resistência a temperatura ambiente (300 K). Nesta figura também se inclui a curva de resistência elétrica do monocristal LuFe_2Ge_2 cedida por E. Ávila e col. [3]. 120
- 7.2 Contribuição magnética à resistência elétrica do YbFe_2Ge_2 , normalizada ao valor de resistência a temperatura ambiente, considerando a aproximação acima descrita. As setas apontando para abaixo indicam o deslocamento de T_R^{max} e, para cima o aumento da pressão no texto. 121

- 7.3. Curvas de resistência elétrica normalizadas a 300 K, no intervalo de temperaturas $T < 40$ K. As setas apontando para baixo mostram as inflexões nas curvas de $R(T)$ associadas a possíveis transições magnéticas, enquanto que a seta apontando para cima indica o aumento de p . 124
- 7.4 Dependência de ΔR com a temperatura, para pressões acima de 13 GPa. As linhas retas mostram o intervalo de temperaturas onde ΔR é linear. Os valores calculados de $\varepsilon > 2$ revelam o comportamento magnético do YbFe_2Ge_2 acima de 13 GPa. 125
- 7.5 Dependência com a pressão do expoente efetivo ε . As linhas pontilhadas mostram os diferentes estados físicos do YbFe_2Ge_2 de acordo com ε e P : NFL=Não líquido de Fermi, FL = Líquido de Fermi, OM=Magnético, NOM = Não magnético, AF =antiferromagnético. 126
- 7.6 $R(T)$ vs. T^2 no YbFe_2Ge_2 . A seta indica a temperatura de coerência (T_{coh}) abaixo da qual o sistema apresenta um comportamento líquido de Fermi (FL). 129
- 7.7 Análise de ΔR vs T , onde uma dependência linear de ΔR com $T^{1.1 \pm 0.1}$ é encontrados num intervalo de temperaturas entre 2-20K. 129
- 7.8 Temperatura de coerência (T_{coh}) e temperatura magnética (T_{mag}) em função da pressão. 131
- 7.9 Ajustes das curvas de resistência elétrica $R(T)$ usando as equações (7.1) e (7.2) para o cálculo do gap das ondas de spin AF. 133
- 7.10 Dependência com a pressão da temperatura de ordem magnética $T_N(P)$, do gap das ondas de spin AF $\Delta(P)$ e, o coeficiente $A(P)$ 134

7.11 Ajustes para $T_N(P) \propto |\delta|^\psi$, onde ψ é predito pelos modelos teóricos: Flutuação de spin (SFT) e Campo Médio (MFT). As linhas retas seguem a lei de potência predita pela SFT para o caso de um AF em 2D ($\psi=1$). 135

7.12 Dependência com a pressão de T_N (linha sólida) obtida a partir do comportamento do gap descrito pela linha pontilhada e a eq. (7.3) com $\Gamma/k_B = 2.21$ K considerada constante. 138

7.13. Diagrama de fase do YbFe_2Ge_2 proposto a partir da análise das medidas de resistência elétrica sob pressão. T_N = Temperatura de Néel, T_{coh} = Temperatura de coerência, T_K ~temperatura de Kondo. FL= Líquido de Fermi, NFL=Não líquido de Fermi, QCP= Ponto crítico quântico, SF-2D (AF)= Flutuação de spin bidimensional tipo antiferromagnético. 140

Lista de Tabelas

- 2.1 Dependências com a temperatura de várias grandezas conforme teorias das flutuações de spin para o comportamento não líquido de Fermi: (a) Mills/Hertz, (b) Moriya e col. (c) Lonzarich. A notação para a temperatura de ordem magnética é dada $T_{N/C}$ para os casos AF e FM, respectivamente. 12
- 5.1 Valores dos parâmetros obtidos através do ajuste dos dados da resistência elétrica, usando as equações (5.1), (5.2) e (5.3) para o cálculo do gap correspondente às diferentes ordens magnéticas. Os números entre parêntese representam o erro em cada valor calculado. 74
- 7.1 Valores da temperatura magnética (T_{mag}), temperatura de coerência (T_{coh}), gap das ondas de spin (Δ), coeficiente A da eq.(7.1) e a temperatura que escala com o comportamento não líquido de Fermi (T_{NLF}). 132

CAPITULO 1

INTRODUÇÃO

Nos últimos anos tem aumentado de forma notável o interesse no estudo dos sistemas eletrônicos fortemente correlacionados. Do ponto de vista físico estes sistemas são muito interessantes porque suas propriedades envolvem transições de fase quântica e fenômenos críticos. Podemos citar como exemplo os isolantes de Mott e os férmions pesados ($HF = \textit{heavy fermions}$), materiais que captam atualmente a maior atenção da comunidade científica [1].

Os férmions pesados (HF) são sistemas eletrônicos que contêm elementos com camadas f instáveis, como os elementos do grupo dos lantanídeos ou actinídeos, por exemplo, Ce, U e Yb, [2]. Estes sistemas se caracterizam pela natureza da interação entre os portadores de carga, que são diferentes dos metais comuns. Os HF apresentam uma enorme densidade de portadores de carga ($\sim 10^{22} \text{ cm}^{-3}$) que interagem fracamente. Muitas das propriedades físicas dos HF em função da temperatura, como a susceptibilidade magnética, o calor específico ou a resistividade elétrica, podem ser descritas de forma similar aos metais convencionais, considerando uma alta renormalização da massa dos portadores de carga a uma grande escala ($m_{HF} \sim 100 - 1000 m_e$, $m_e =$ massa do elétron livre). O estado fundamental adotado pelos HF é muito diversificado, podendo apresentar um estado magnético ou não magnético, ou ainda magnético coexistindo com o estado supercondutor, como é o caso do CeCu_2Si_2 [3].

De forma geral, as propriedades físicas dos férmions pesados são descritas pela competição entre duas interações: a interação Kondo e a interação magnética coletiva de longo alcance Ruderman Kittel Kosiya Yosida (RKKY). Ambas as interações escalam com duas energias diferentes, cujas temperaturas características, T_K (interação Kondo) e T_{RKKY} (interação RKKY), dependem do valor do parâmetro de ordem (J/W), sendo J a constante de acoplamento entre o spin dos íons f e os spins dos elétrons de condução, e W é a largura de banda dos elétrons de condução. O estado magnético do HF ocorre

quando a interação RKKY predomina sobre a interação Kondo, e vice-versa para o estado não magnético. A situação mais interessante nos HF ocorre quando a competição entre ambas as interações atingem o equilíbrio. Neste cenário, os HF se apresentam numa situação de instabilidade magnética, próximo a uma transição de fase de segunda ordem, de um estado magnético (MO) para um não magnético (NMO). O valor do parâmetro de ordem que fixa a transição de fase de segunda ordem na temperatura zero, $(J/W)_c$, é conhecido como ponto crítico quântico (*quantum critical point - QCP*), região onde as flutuações do parâmetro de ordem são determinadas pela mecânica quântica. No QCP se esperaria que os compostos HF apresentassem um comportamento não líquido de Fermi (NFL), podendo coexistir, em alguns casos, com um estado supercondutor, como é observado no CePd_2Si_2 [4].

A pressão externa (p) é um parâmetro importante para investigar as propriedades físicas dos HF, pois induz mudanças no parâmetro de ordem J/W . As correlações eletrônicas nos HF são muito sensíveis à separação entre os íons magnéticos f , e que podem ser explorados por efeito de pressão [5]. Além disso, a pressão externa é considerada um método limpo, pois a indução de defeitos e impurezas no material é mínima comparada ao método de pressão química (substituição de um átomo por outro com raio menor). Assim, o diagrama de Doniach, que representa o comportamento dos HF com a variação da temperatura e do parâmetro de ordem J/W [6], pode ser realizado experimentalmente considerando $J/W = p$. Desta forma, as propriedades físicas do QCP podem ser exploradas e a pressão crítica (p_c) determinada no QCP.

Este trabalho está focalizado no estudo das mudanças das propriedades físicas nas vizinhanças do ponto crítico quântico (QCP) em compostos de férmions pesados à base de terras raras (RE) de Ce e Yb: $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt e YbFe_2Ge_2 . Medidas de resistência elétrica AC sob pressão e a ultrabaixas temperaturas foram realizadas com o fim de explorar o comportamento crítico destes intermetálicos nas vizinhanças do QCP. Várias células de pressão foram usadas para atingir as diferentes regiões de pressão: 1) uma célula de pressão líquida (*Liquid cell*) ($p < 1.2$ GPa), 2) uma célula de pressão de Bridgman ($p < 13$ GPa) e 3) uma célula de pressão de diamante (*DAC-diamond anvil cell*, $p < 30$ GPa). Um sistema de diluição $\text{He}^3\text{-He}^4$ (dilute) foi usado para realizar as medidas de resistência elétrica a ultrabaixas temperaturas (desde 40 mK).

Da análise de resistência elétrica é possível obter a temperatura de ordem magnética (T_{mag}), e valor do gap da interação elétron-magnon (Δ), este último podendo ser usado para definir o tipo de ordem magnética no material [8, 9, 10]. Com estas duas grandezas físicas é possível construir um diagrama de fase para os compostos HF. Embora, todos estes intermetálicos possam ter suas propriedades físicas explicadas dentro do diagrama de Doniach, existem diferenças substanciais entre os cenários físicos, como será discutido mais adiante.

Esta tese está dividida nos seguintes capítulos.

O capítulo 1 apresentará a *Introdução* com o esquema da tese.

O capítulo 2 apresentará os *Fundamentos teóricos*, introduzindo conceitos básicos referentes aos férmions pesados, fenômenos críticos quânticos, além de outros modelos teóricos que serão usados para análise e interpretação das medidas de resistência elétrica AC em função da temperatura.

O capítulo 3 abordará as principais propriedades físicas apresentadas pelos compostos estudados: **CePd₂Al₂Ga**, **CePt** e **YbFe₂Ge₂**.

O capítulo 4 apresentará as *técnicas experimentais* usadas. As diferentes células de pressão utilizadas serão descritas brevemente, bem como o sistema de diluição He³-He⁴ usado para alcançar ultrabaixas temperaturas.

No **capítulo 5** será apresentada a discussão dos resultados do composto **HF CePd₂Al₂Ga**. Este composto apresenta à pressão ambiente ($p=0$), uma ordem ferromagnético (FM), com uma temperatura de Curie $T_C \sim 1.8$ K. Nossos resultados indicam que a influência da pressão externa leva este material para um ponto crítico quântico em $p_c \sim 3.7$ GPa. A pressões mais baixas o sistema muda de uma ordem FM para uma ordem magnética diferente, possivelmente antiferromagnética (AFM) em $p = 0.6$ GPa [7,8].

O capítulo 6 apresentará a discussão dos resultados obtidos para um composto Kondo ferromagnético **CePt**. Este composto possui uma temperatura de Curie (T_C) $T_C=5.8$ K em $p=0$ atingindo o QCP em $p_c = 12$ GPa, sem mudança na sua ordem FM. Este

comportamento é diferente do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ [9] e tem sido raramente observado nos HF a base de Ce, pois a maioria destes materiais atinge o QCP a partir de uma ordem AFM [11].

O **capítulo 7** apresentará os resultados preliminares do HF YbFe_2Ge_2 . Ao contrário dos dois intermetálicos anteriores com Ce, o composto YbFe_2Ge_2 não apresenta uma ordem magnética em $p=0$. Em altas pressões este composto apresenta uma ordem magnética o QCP, obtida de nossa proposta de diagrama de fase, sendo definida como $p_C \sim 12$ GPa. Os resultados para o HF YbFe_2Ge_2 serão discutidos num cenário físico um pouco diferente do usado para os compostos a base de Ce.

REFERÊNCIAS

- [1] See Book of abstract of International Conference on Strongly Correlated Electron Systems , July 2002, Cracow-Poland.
- [2] F. Steglich., G. Geibel, R. Modler, M. Lang, P. Hellmann and P. Gegenwart, *J.Phys. Chem. Solids* 59, (1998), 2190.
- [3] F. Steglich et al. *Phys. Rev. Lett.* 72, (1994), 3262.
- [4] S. Raymond and D. Jaccard. *Phys. Rev B.* 61, 13, (1999),8679.
- [5] J. P. Sanchez , M. M. Abd-Elmeguid. *Hyperfine Interactions* 128, (2000), 137.
- [6] S. Doniach, in *Valence Instability and Related Narrow Band Phenomena*, edited by R. D. Parks (Plenum, New York, 1977).
- [7] T. Burghardt, A. Eichler, S. Süllo, J. A., Mydosh. *Physica B* 259-261, (1999), 99.
- [8] J. Larrea J, A. Eichler, A. D. Alvarenga, M. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch .To be published
- [9] J. Larrea J., T. Burghardt, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, E. B. Baggio-Saitovitch. *J. Magn. Magn. Mat.* In press
- [10] M. A. Continentino, S. N. de Medeiros. M. T. D. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch. *Phys. Rev B*, 64, (2001), 012404.
- [11] M. A. Continentino. *Quantum Scaling in Many-Body Systems*. World Scientific Lecture Notes in Physics-Vol.67 (2001).

CAPITULO 2

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

2.1 *Férmions pesados (HF).*

Os férmions pesados (*heavy fermions* = HF) podem se definidos como sistemas eletrônicos que contêm elementos com camadas f instáveis, como os elementos do grupo dos lantanídeos ou actinídeos, por exemplo Ce, U e Yb [1]. As correlações eletrônicas nos HF proporcionam estados fundamentais diversos, magnético, não magnético ou supercondutor, coexistindo num regime de instabilidade magnética. As propriedades físicas destes sistemas numa transição de fase magnética quântica, quer dizer, magnético- não magnético em $T=0$, são descritas por fenômenos críticos quânticos, tornando estes sistemas atraentes como tema de trabalho.

De forma geral, as propriedades físicas dos HF são descritas pela competição entre duas interações: a interação Kondo (K) e a interação Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY), que escalam temperaturas características T_K e T_{RKKY} , respectivamente (Doniach [2]). A interação Kondo produz a blindagem dos momentos magnéticos locais, dos elementos f , enquanto que, a interação de troca RKKY favorece o ordenamento de longo alcance (ver fig. 2.1). Assim, uma situação interessante nos HF aparece próximo à instabilidade magnética, onde os graus de liberdade relevantes são as excitações magnéticas. Nesta situação, a aplicação de pequenas pressões, quer dizer, pequenas mudanças nos parâmetros, pode induzir ao desaparecimento do estado fundamental magnético nestes sistemas [3].

O hamiltoniano básico que descreve a física dos férmions pesados está baseado na rede de Kondo que considera a competição entre as interações Kondo e RKKY, reduzindo as flutuações de carga, e sendo dada por:

$$H = \sum_{k,\sigma} \varepsilon_k c_{k\sigma}^+ c_{k\sigma} + J \sum_{i \neq j} S_i \cdot \sigma \quad (2.1)$$

onde o primeiro termo descreve a banda dos elétrons de condução de spin σ e largura W e, o segundo termo descreve a interação entre os momentos magnéticos destes elétrons com os elétrons f localizados, S_i , situados no sítio i de uma rede regular [3].

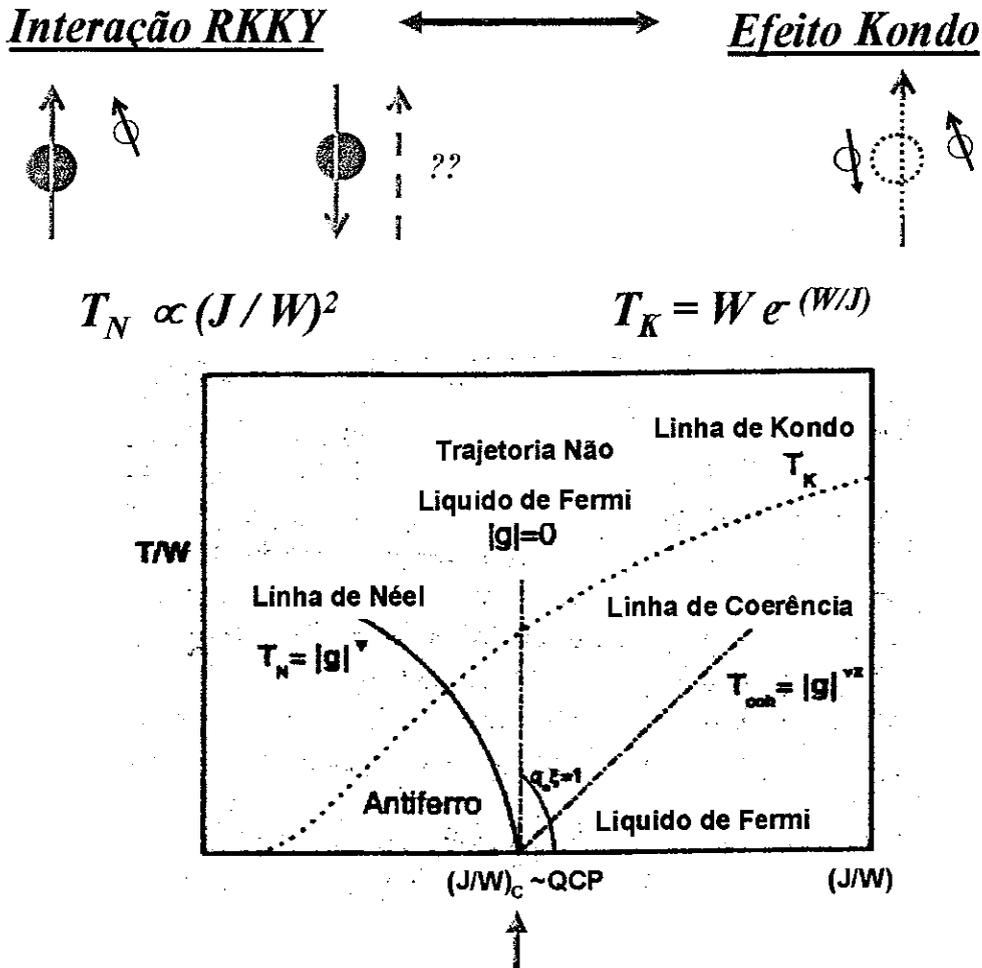


Figura 2.1 Diagrama esquemático dos sistemas férmions pesados (HF), proposto por Continentino, mostrando a linha de coerência (T_{coh}), a linha crítica (T_N no caso antiferromagnético) e a trajetória não líquido de Fermi. A linha $q_c \xi = 1$, separa o regime local do regime crítico real (ver ref. [3]).

A informação geral incluída no hamiltoniano (2.1) para sistemas HF tridimensionais pode ser resumida na seguinte forma; na temperatura zero, abaixo de um valor crítico da razão entre a constante de acoplamento J e a largura de banda W , quer dizer $(J/W) < (J/W)_c$,

a interação RKKY prevalece e o estado fundamental do sistema é magnético. Por outro lado, para $(J/W) > (J/W)_C$, a blindagem Kondo é dominante e o estado fundamental é não magnético. A transição de fase em $T=0$, $(J/W) = (J/W)_C$, é uma transição magnética desde um estado antiferromagnético (AF) com magnetização $m_S \neq 0$, para um estado não magnético $m_S = 0$. Esta transição é de segunda ordem e, o parâmetro de ordem da temperatura zero, m_S , diminui continuamente na proximidade do ponto críticoquântico (*quantum critical point* ~ QCP) como $m_S \propto |g|^\beta$, onde $g = (J/W) - (J/W)_C$ mede a distância ao QCP e, β é um expoente crítico. Do lado crítico do diagrama de fase, quer dizer $(J/W) < (J/W)_C$, existe uma linha crítica, que representa uma transição de fase de segunda ordem, associando uma temperatura de Néel (T_N) para um valor J/W . Esta linha diminui na proximidade do QCP como $T_N = |g|^\psi$, onde ψ é definido como o expoente de deslocamento (*shift exponent*).

Por outro lado, do lado não magnético, quer dizer $(J/W) > (J/W)_C$, os sistemas HF não apresentam transição de fase de segunda ordem mas, a existência das fortes correlações eletrônicas permitem ao sistema entrar num estado líquido de Fermi (*crossover*), observado abaixo de uma temperatura característica, conhecida como temperatura de coerência (T_{coh}) [3]. Abaixo de T_{coh} , o comportamento de muitas propriedades físicas com a temperatura caracterizam os sistemas HF; a susceptibilidade constante $\chi (T \rightarrow 0) = \chi_0$, o calor específico linear $C/T = m_T$ e; a resistividade $\rho = \rho_0 + AT^2$, onde os parâmetros χ_0 , m_T e A são fortemente renormalizados pelas interações. Por exemplo, a massa térmica m_T das quase partículas nos HF é 2 a 3 vezes maior que do que as quase partículas num simples metal de cobre. Alias, a temperatura que escala o comportamento FL nos férmions pesados é baixa comparada com as temperaturas críticas nos metais comuns.

De forma geral, a competição entre as interações Kondo e RKKY não fornece o cenário físico apropriado para descrever o desvio de um comportamento FL na proximidade do QCP. Em regiões muito próximas ao QCP, as propriedades físicas são descritas por um comportamento não líquido de Fermi (NFL), caracterizado pelas flutuações quânticas das excitações magnéticas. Porém, muitos modelos teóricos tem sido desenvolvidos visando entender os mecanismos que regulam os fenômenos críticos quânticos nas proximidades do

QCP [4]. Uma abordagem dos resultados relevantes de algum destes modelos teóricos será apresentada a seguir.

2.2 Teorias do Ponto crítico quântico (QCP).

Por um lado, o modelo de Landau para o líquido de Fermi prediz, em temperaturas baixas ($\leq 1\text{K}$), a dependência com a temperatura de certos observáveis físicos. O modelo líquido de Fermi descreve corretamente os parâmetros medidos em baixas temperaturas para sistemas metálicos, onde as interações elétron-elétron em $T \rightarrow 0$ são de curto alcance em espaço e tempo e, independentes da temperatura. Por outro lado, um desvio do comportamento líquido de Fermi (FL) ocorre quando o magnetismo é suprimido em $T=0$, caracterizando o QCP pelo estado não líquido de Fermi (NLF). No estado NLF, os parâmetros experimentais refletem as interações elétron-elétron de longo alcance que inibem o comportamento FL. Frequentemente, o comportamento NLF é encontrado na proximidades da fase magnética ordenada do diagrama de fase dos HF, indicando que o estado NLF destes sistemas está ligado a uma instabilidade magnética próximo a $T = 0$. Assim, o estado NLF pode ser alcançado pela aplicação de uma perturbação externa nos parâmetros de ordem do sistema, por exemplo mediante pressão, campo magnético ou dopagem química. No entanto, existem poucos sistemas, como o CeNi_2Ge_2 , que apresentam um comportamento NLF no estado fundamental. [6].

Transições de fase clássicas que ocorrem numa temperatura crítica e finita (T_C), tendo a temperatura como parâmetro de controle, podem ter as flutuações térmicas dominando o comportamento crítico na região próxima a T_C . Por outro lado, nas transições de fase quântica que ocorrem em $T=0$, conhecido como QCP, as flutuações de natureza quântica são relevantes no QCP e nas suas proximidades. Assim, os diferentes modelos teóricos para o QCP descrevem também a região crítica quântica, sendo que os cenários físicos envolvidos dependem do lado do diagrama de fase em relação ao QCP [7].

Na metodologia das integrais de fase para a formulação da mecânica quântica, um sistema quântico d dimensional ($T=0$) pode ser visto como um sistema clássico $(d+z)$ dimensional, onde z é um expoente que escala com as flutuações quânticas (expoente

associado à dinâmica). Ao contrário do problema clássico, para uma transição de fase quântica, a dinâmica e termodinâmica não podem ser separadas. Partindo disto podemos formular idéias gerais para descrever os fenômenos críticos quânticos envolvendo pontos críticos em temperaturas finitas. A seguir, diferentes modelos teóricos envolvendo flutuações de spin serão brevemente apresentados, nos quais se consideram a influência do ponto crítico quântico nas propriedades físicas de temperatura finita acessíveis experimentalmente.

2.2.1 Teoria das flutuações de spin (SFT) do comportamento não líquido de Fermi.

(a) Predições teóricas de Hertz e Mills

Os trabalhos teóricos reportados por Hertz (1976) [8] e Mills (1993) [9] constituem as primeiras contribuições relevantes no entendimento dos fenômenos críticos quânticos dos HF. O tratamento teórico em ambos os casos assume que, dentro da metodologia do grupo de renormalização, é possível integrar os elétrons de condução num sistema com dimensão física d e expoente crítico dinâmico z , sendo $z = 2$ para um antiferromagnético (AF) e $z = 3$ para um ferromagnético (FM) [8,9]. A teoria é aplicável a sistemas que se encontram acima da dimensão crítica $d_c^+ = 4 - z$ (quer dizer, as relações de hiperscala não são aplicáveis [3]), de maneira que a dimensão efetiva $(d+z) > 4$.

Por um lado, as predições de Hertz para um sistema conduzido para uma transição de fase magnética quântica, desde um estado FM com $z = 3$, revelam que o QCP é um ponto fixo Gaussiano com expoentes tipo Landau para $d > 1$ [8]. Para o caso particular de um ferromagneto Ising com $z = 1$, a abordagem clássica do problema dentro da teoria de campo de médio (MF) produz linhas críticas e de cruzamento no diagrama de fase, as quais obedecem a expoentes do tipo Wilson-Landau. Do lado magnético, a temperatura de ordem magnética $T_{\text{mag}} \propto |g|^{1/2}$ e do lado não magnético, a temperatura de cruzamento $T_{\text{cross}} \propto |g|^{1/2}$, onde $|g|$ mede a distância ao ponto crítico quântico. O resultado esperado para T_{cross} é o mesmo já sugerido por Continentino e col. [3] usando uma teoria de hiperescala com temperatura de coerência $T_{\text{coh}} \propto |g|^{vz}$, com $v=1/2$ no lado não magnético. Assim mesmo, no lado magnético se espera que o amolecimento dos modos das ondas de spin, leve o gap das excitações magnéticas a diminuir proporcionalmente com a distância ao QCP, quer dizer $\Delta \propto |g|$ [8].

Por outro lado, o tratamento de Mills assume que todos os sistemas conduzidos ao QCP a partir de um estado fundamental líquido de Fermi, com exceção do antiferromagneto bidimensional ($d=2, z=2$), se encontram acima de d_c^+ [9]. Quando o sistema se aproxima do QCP, o tempo da correlação (τ) diverge mais rápido do que o comprimento da correlação ξ , $\tau \propto \xi^z$. Os resultados dos diversos modelos dependem da dimensionalidade d , do expoente crítico z , da temperatura reduzida ($t = T/T^*$, sendo T^* uma temperatura característica) e, do parâmetro de controle $|g|$ que mede a distância ao QCP. A proposta de diagrama de fase para os HF apresentada por Mills é semelhante à proposta de Continentino na fig. 2.1 [9, 3]. Alguns aspectos relevantes sobre a natureza das flutuações são deduzidos deste diagrama. Abaixo da linha de cruzamento (T_{cross}), as flutuações sobre a escala de ξ tem energias maiores que $k_B T$. Portanto, a natureza das flutuações quânticas governam o comportamento líquido de Fermi, onde a linha de T_{cross} varia como $T_{\text{cross}} \propto |g|^{z/2}$ (T_{cross} é linear para o caso AF, ver fig. 2.1). Para a região entre a linha T_{cross} (ou de coerência segundo Continentino, ver fig. 2.1) e a linha crítica T_{mag} (T_N no caso AF) encontramos o comportamento NLF, definindo em particular a trajetória NLF ao longo do QCP. Na região NLF, os modos relevantes tem energias menores que $k_B T$ e, o comprimento da correlação é controlado por T e não mais por $|g|$. Do lado magnético uma lei de potência regula a linha crítica T_{mag} , dada por $T_{\text{mag}} \propto |g|^{z/(d+z-2)}$.

(b) Modelo de renormalização auto consistente de Moriya e Takimoto

Moriya e Takimoto (1995) desenvolveram um modelo alternativo para o estudo das flutuações de spin próximo à transição de fase magnética chamado de modelo de renormalização auto consistente (RAC) [10]. Este modelo é usado na descrição do comportamento crítico dos sistemas magnéticos itinerantes, proporcionando informações sobre o estado NLF. A interação fraca entre as flutuações de spin acima da transição de fase quântica constitui a base desta teoria. Em comparação com os cenários de Hertz e Mills [8,9], o modelo RAC proporciona um tratamento mais sistemático do acoplamento modo-modo entre as flutuações de spin no vetor de onda zero, $q=0$, e o vetor de onda para a ordem AF, $q=Q$. Este modelo tem descrito satisfatoriamente os sistemas com elétrons d itinerantes e, com menor sucesso os férmions pesados com momentos magnéticos

localizados. No entanto, muitas das predições do modelo RAC coincidem com os resultados de Mills e Hertz, como se observa na tabela 2.1.

Tabela 2.1 Dependências com a temperatura de parâmetros relacionados com as teorias das flutuações de spin para o comportamento não líquido de Fermi: (a) Mills/Hertz, (b) Moriya e col. (c) Lonzarich. A notação para a temperatura de ordem magnética é dada $T_{N/C}$ para os casos AF e FM, respectivamente.

(a)				
	AF, $d=3, \tau=2$	AF, $d=3, \tau=2$	FM, $d=3, \tau=3$	FM, $d=2, \tau=3$
C/T	$\gamma - a\sqrt{T}$	$c \log(T_0/T)$	$c \log(T_0/T)$	$T^{-1/3}$
$\Delta\chi$	$T^{3/2}$	$\chi_0 - dT$		
$\Delta\rho$	$T^{3/2}$	T	T	
$T_{N/C}$	$ g ^{2/3}$	$ g $	$ g ^{3/4}$	$ g $
T_{coh}	$ g $	$ g $	$ g ^{3/2}$	$ g ^{3/2}$
(b)				
	FM, 3-dim	FM, 2-dim	AF, 3-dim	AF, 2 dim
C_m/T	$-\log T$	$T^{-1/3}$	$\gamma_0 - aT^{1/2}$	$-\log T$
χ_Q	$T^{-4/3}$	$-T^{-1}/\log T$	$T^{-3/2}$	$-(\log T)/T$
$\Delta\rho$	$T^{-5/3}$	$T^{-4/3}$	$T^{-3/2}$	T
A		$1/ g ^{1/2}$		$1/ g ^2$
(c)				
	FM, 3-d ($d=\tau=3$)	FM, 2-d ($d=2; \tau=3$)	Antiferro. 3-d ($d=3; \tau=2$)	
C/T	$-\log T$	$T^{-1/3}$	$\gamma + a\sqrt{T}$	
$\Delta\chi$	$T^{-4/3}$	T^{-1}	$T^{-3/2}$	
ρ	$T^{-5/3}$	$T^{-4/3}$	$T^{-3/2}$	

Um dos resultados mais importantes do modelo RAC está em relacionado com o coeficiente A do comportamento líquido de Fermi na resistividade, quer dizer $\rho(T) = AT^2$. O modelo RAC prediz uma divergência de A ao se aproximar da instabilidade magnética, tal que, $A \propto 1/|g|^2$ para o caso de um sistema quase AF no regime local e, $A \propto 1/|g|^{1/2}$ para um sistema quase FM [3, 1]. A tabela 2.1 mostra os resultados das predições feitas pelos diferentes modelos teóricos das flutuações de spin propostos por Hertz, Mills, Moriya, e Lonzarich, este último partindo de uma instabilidade FM [4].

2.2.2 Ondas de spin no comportamento crítico

Os modos de excitação magnética coletiva (modos de onda de spin) são quantizados como magnons. Do comportamento do espectro dos magnons podemos obter informações relevantes sobre a dinâmica da ordem magnética de longo alcance [11].

Uma relação que vincula a magnetização (σ) com o espectro de ondas de spin (ε_k) para um sistema de N spins com $S=1/2$ é dada por [12]:

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{1}{N} \sum_k \cot gh \frac{\varepsilon_k}{2k_B T} \sigma \quad (2.2)$$

Na aproximação de baixas temperaturas e para um sistema com dimensão d , a eq. (2.2) pode ser expressa na forma integral:

$$\frac{1}{\sigma} = \frac{V}{N} \frac{1}{(2\pi)^d} \int dk \frac{2k_B T}{\varepsilon_k} \frac{1}{\sigma} \quad (2.3)$$

sendo V o volume do espaço nas coordenadas do vetor de onda de spin k .

Continentino e col. [12] estudaram o comportamento crítico de T_N para um férmion pesado AF através de uma teoria de onda de spin, onde o seu espectro AF inclui um gap anisotrópico (Δ) que é dado por: $\varepsilon_k = \sqrt{\Delta^2 + Dk^2}$, sendo D a rigidez das ondas de spin. Substituindo a relação de dispersão para o caso AF na eq. (2.3) se obtém uma relação entre T_N e Δ , que depende da dimensionalidade do espectro dos magnons, tal que:

$$\text{Caso AF, } d=3: \quad k_B T_N = \frac{\Gamma}{2\sqrt{1+\left(\frac{\Delta}{\Gamma}\right)^2} \left[1 - \frac{\sqrt{3}}{\pi} \frac{\Delta}{\Gamma} \arctan\left(\frac{\pi\Gamma}{\sqrt{3}\Delta}\right)\right]} \quad (2.4)$$

$$\text{Caso AF, } d=2: \quad k_B T_N = \frac{2\Gamma}{\sqrt{1+(\Delta/\Gamma)^2} \ln\left[1 + \frac{\pi^2}{2(\Delta/\Gamma)^2}\right]} \quad (2.5)$$

onde Γ é a constante de acoplamento magnético dos íons com momento local e proporcional a D [12].

Para analisar nossos resultados para uma rede Kondo ferromagnética CePt (13) buscamos uma nova relação baseada na teoria de ondas de spin. Considerando a relação de dispersão para o caso FM: $\varepsilon_K = \Delta + Dk^2$ e eq. (2.3) se obtém as seguintes expressões:

$$\text{Caso FM, } d=3 \quad k_B T_C = \frac{1}{6} \frac{E_0}{\left[1 - \sqrt{\frac{\Delta}{E_0}} \arctg\left(\sqrt{\frac{E_0}{\Delta}}\right)\right]} \quad (2.6)$$

$$\text{Caso FM, } d=2 \quad k_B T_C = \frac{1}{2} \frac{E_0}{\ln\left(\frac{\Delta + E_0}{\Delta}\right)} \quad (2.7)$$

Aqui E_0 é uma constante associada ao acoplamento FM que é proporcional à rigidez das ondas de spin.

Em princípio, nos sistemas férmions pesados podemos esperar que o amolecimento dos modos de excitação próximo ao QCP conduza ao desaparecimento da ordem magnética de longo alcance, de maneira que, quando $\Delta \rightarrow 0$, $T_{N/C} \rightarrow 0$. Além disso, considerando os momentos não extintos (*unquenched*) no QCP ($\Gamma, E_0 \neq 0$), a simples relação para os AF e FM em 3D não explicaria o desaparecimento de $T_{N/C} \rightarrow 0$ quando $\Delta \rightarrow 0$. Uma situação contrária ocorre para o espectro de magnons em 2D, onde das relações em (2.5) e (2.7) se deduz que $T_{N/C} \rightarrow 0$ quando $\Delta \rightarrow 0$.

REFERÊNCIAS

- [1] F. Steglich, C. Geibel, R. Modler, M. Lang, P. Hellmann, P. Gegenwart. *J. Low. Temp. Phys.* 99, 314, (1995), 267.
- [2] S. Doniach, in *Valence Instability and Related Narrow Band Phenomena*, edited by R. D. Parks (Plenum, New York, 1977).
- [3] M. A. Continentino. *Quantum Scaling in Many-Body Systems*, edited by World Scientific Lecture Notes in Physics-Vol. 67 (2001).
- [4] G. R. Stewart. *Rev. Mod. Phys.*, 73 (2001), 797. Mais referencias podem ser encontradas aqui.
- [5] A. J. Schofield. *Contemporary Physics*, 40, 2, (1999), 95.
- [6] S. R. Julian, C. Pleiderer, F. M. Grosche, N. D. Mathur, G. J. McMullan, A. J. Diver, I. R. Walker, G. G. Lonzarich. *J. Phys.: Condens. Matter* 8, (1996) 9675.
- [7] Uma classificação dos cenários físicos na proximidade do QCP é dado por P. Coleman. *Physica B* 259, (1999), 253.
- [8] J. A. Hertz. *Phys. Rev. B*, 14, 3, (1976), 1165.
- [9] A. J. Mills. *Phys. R. B*, 48, 10, (1993), 7183.
- [10] T. Moriya, T. Takimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* 64, 3, (1995), 960.
- [11] R. M. White. *Quantum Theory of Magnetism*. Springer Verlag (1993).
- [12] S. V. Tyablikov. *Methods in the Quantum Theory of Magnetism*. Plenum press (1967).
- [13] M. A. Continentino, S. N. de Medeiros, M. T. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch. *Phys. Rev. B*, 64 (2001), 012404-1.
- [14] J. Larrea J, T. Burghardt, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, E. Baggio-Saitovitch. To be published.

CAPITULO 3

COMPOSTOS FÉRMIONS PESADOS: $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt , YbFe_2Ge_2 .

3.1 Introdução

Como foi visto no capítulo anterior, os férmions pesados (heavy fermions =HF) podem ser descritos pelo diagrama de fase de Doniach [1]. Dentro deste contexto físico, os HF apresentam uma situação de instabilidade magnética quando as interações Kondo (K) e RKKY competem entre si com a mesma intensidade. Esta situação torna-se ainda mais interessante se a temperatura do sistema é reduzida até o zero absoluto (0 K). Nestas condições, os HF experimentam uma transição de fase quântica, caracterizado por o ponto crítico quântico (QCP). Na região crítica, vizinha ao QCP, as propriedades físicas são governadas unicamente por fenômenos críticos quânticos, o que toma estes sistemas muito atraentes como tema de pesquisa.

Este capítulo tem como objetivo resumir as principais propriedades físicas já conhecidas dos compostos: $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt e YbFe_2Ge_2 . Estes compostos encontram-se próximos da instabilidade magnética, sendo muito atrativos para o estudo dos fenômenos críticos quânticos. Embora os férmions pesados com base em Ce e Yb possam ser descritos dentro do diagrama de Doniach, seus cenários físicos podem apresentar diferenças substanciais quando se aproximam do QCP.

3.2 Composto CePd₂Al₂Ga

Em geral, de acordo com o diagrama de fase de Doniach, podemos esperar um estado fundamental magnético para os HF à base de Ce (Ce-HF), onde predomina o caráter local dos momentos magnéticos do íon do Ce ($4f^{d5}$) [1].

Os Ce-HF apresentam propriedades físicas muito interessantes no regime de instabilidade magnética, quer dizer, na transição de fase entre uma ordem magnética (MO) para uma não magnética (NMO). Este regime é particularmente atrativo pois perto desta transição, efeitos como comportamento não Líquido de Fermi (NFL), eventualmente coexistindo com a supercondutividade, podem ser induzidos, por exemplo, mediante a aplicação de pressão [2, 3].

Em geral, os compostos Ce-HF apresentam uma ordem antiferromagnética (AF) na pressão ambiente ($p=0$). Nos experimentos sob pressão externa (p), estes sistemas são conduzidos para o QCP, na pressão crítica p_C , onde a temperatura de Néel $T_N = 0K$. Na região crítica quântica, as propriedades magnéticas e de transporte se desviam do caráter líquido de Fermi (FL) convencional. Por exemplo, a resistividade elétrica (ρ) passa de uma dependência do tipo $\Delta\rho=\rho-\rho_0=AT^2$ (com $\rho_0 = a$ resistividade residual e $A = cte$), no estado FL, para uma dependência tipo lei de potência $\Delta\rho \propto T^\epsilon$, com $1 \leq \epsilon \leq 1.5$, no estado NLF [4], ocorrendo em um intervalo apreciável de temperaturas, em alguns casos maiores que 10 K [5].

Dentro da família de compostos Ce-HF, podemos encontrar os intermetálicos isoestruturais CePd₂Al₃ [6] e CePd₂Ga₃ [7], nos quais estudos sobre os efeitos de pressão externa tem sido amplamente divulgados na literatura [8, 9, 10]. Estes compostos cristalizam em uma estrutura hexagonal, do tipo PrNi₂Al₃ [11], mostrada na figura 3.1.

Por um lado, o intermetálico CePd₂Al₃ apresenta uma ordem AF com $T_N = 2.7$ K, em $p = 0$, observada só em amostras policristalinas, onde a indução de desordem em um dos sítios de Al favorece ao ordenamento de longo alcance [12, 13]. Sua estrutura magnética consiste de planos *ab* ferromagnéticos, com acoplamento AF ao longo do eixo *c* [14]. Estudos de resistividade elétrica e de susceptibilidade magnética sob pressão no CePd₂Al₃ mostram um comportamento esperado para os HF com ordem AF, onde a

diminuição de T_N com o aumento da pressão é observada [8, 9]. A extrapolação de $T_N(p) \rightarrow 0K$ define o QCP do sistema em $p_C \sim 20$ Kbar (fig. 3. 2(a)) [9].

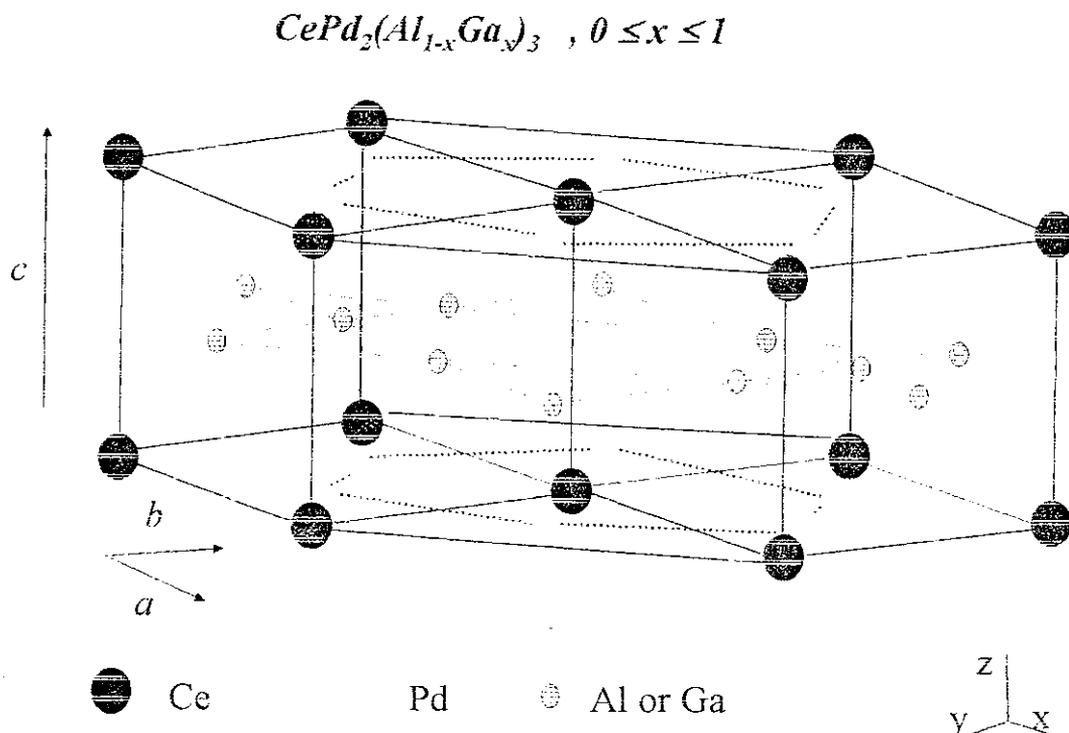


Figura 3.1. Estrutura cristalina do sistema $CePd_2(Al, Ga)_3$ do tipo $PrNi_2Al_3$. No caso do composto $CePd_2Al_2Ga$, os íons de Al e Ga encontram-se distribuídos estequiometricamente no plano (001).

Por outro lado, o intermetálico $CePd_2Ga_3$ apresenta uma ordem FM com temperatura de Curie $T_C = 6K$, em $p = 0$ [7]. A estrutura magnética deste composto é similar à estrutura do $CePd_2Al_3$, com a diferença de que os planos ab – FM continuam acoplados FM ao longo do eixo c [15]. Estudos anteriores de resistividade elétrica e susceptibilidade magnética sob pressão indicam que este composto sofre uma mudança de ordenamento magnético, passando de FM para, possivelmente, AF próximo de 24 Kbar [10]. Acima desta pressão, $T_N(p)$ segue um comportamento esperado para os férmions pesados, onde a extrapolação de $T_N \rightarrow 0K$ define o ponto crítico quântico em $p_C \sim 50$ Kbar (fig. 3.2(b)).

Para entender os mecanismos físicos que determinam o efeito da pressão no comportamento magnético nos compostos $CePd_2Al_3$ e $CePd_2Ga_3$, um estudo do sistema $CePd_2(Al_{1-x}Ga_x)_3$ foi realizado por R. Ludoph e colaboradores [13]. Neste trabalho foram

obtidas amostras policristalinas homogêneas nas concentrações $x \leq 0.2$, sendo que, em concentrações maiores, o único composto que apresenta uma fase homogênea é o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$. No intervalo de concentrações com $x \leq 0.2$, o sistema apresenta uma ordem AF como pode ser visto no diagrama de fase da figura 3.3. Na mesma figura, podemos observar que o T_N diminui com o aumento da pressão química (dopagem com x átomos de Ge) até atingir $T_N = 0\text{K}$ na concentração crítica $x_C \sim 0.25$, definindo o QCP do sistema.

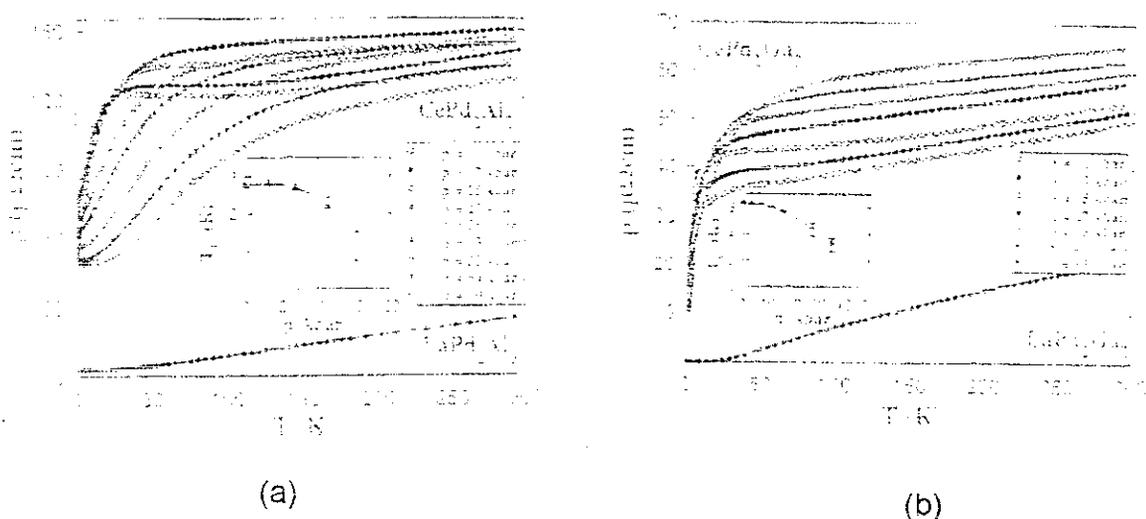


Figura 3.2. (a) Dependência da resistividade com a temperatura e a pressão $\rho(T, p)$ para o CePd_2Al_3 . O “insert” mostra a dependência de T_N com a pressão. (b) Dependência de resistividade com a temperatura e a pressão $\rho(T, p)$ para o CePd_2Ga_3 . O “insert” mostra a dependência com a pressão de T_C [9].

Comparando as figuras 3.2 (a) e 3.3, observamos que o comportamento de T_N com a dopagem de Ga é semelhante ao comportamento de T_N observado nos experimentos sob pressão hidrostática, como é o caso do CePd_2Al_3 . Os mecanismos físicos responsáveis pela diminuição de T_N com a pressão química, no sistema $\text{CePd}_2(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_3$, são os mesmos usados para explicar a dependência de T_N com a pressão externa. O modelo mais aceito para descrever este comportamento foi proposto por Mentink e colaboradores [16], que trata as interações intraplano e interplano de forma independente. A interação intraplano é governada pela hibridização entre os átomos Ce-Pd, enquanto que a interação interplano é vista como uma interação puramente RKKY, produzindo o ordenamento magnético de longo alcance. Dentro deste modelo, a dependência de T_N com a pressão é determinada pela competição de dois efeitos:

- (i) O crescimento da hibridização Ce-Pd com a contração no eixo a reduzindo T_N
- (ii) A diminuição da interação RKKY com expansão ao longo do eixo c produzindo um decréscimo no T_N . Este efeito também explica os diferentes tipos de ordem magnética adotados pelo sistema em concentrações extremas, quer dizer, AFM para o $CePd_2Al_3$, FM para $CePd_2Ga_3$, e na mudança na ordem de FM para AFM por efeito de pressão no $CePd_2Ga_3$.

Como se observa na fig.3.3, o $CePd_2Al_2Ga$ é o único composto do sistema $CePd_2(Al_{1-x}Ga_x)_3$ obtido com uma fase cristalina homogênea, para concentrações acima de $x \sim 0.2$. Além disso, o $CePd_2Al_2Ga$ é um fêrmion pesado ferromagnético na pressão ambiente, com estruturas cristalina e magnética semelhantes ao $CePd_2Ga_3$, sendo o $T_C \sim 1.3$ K.

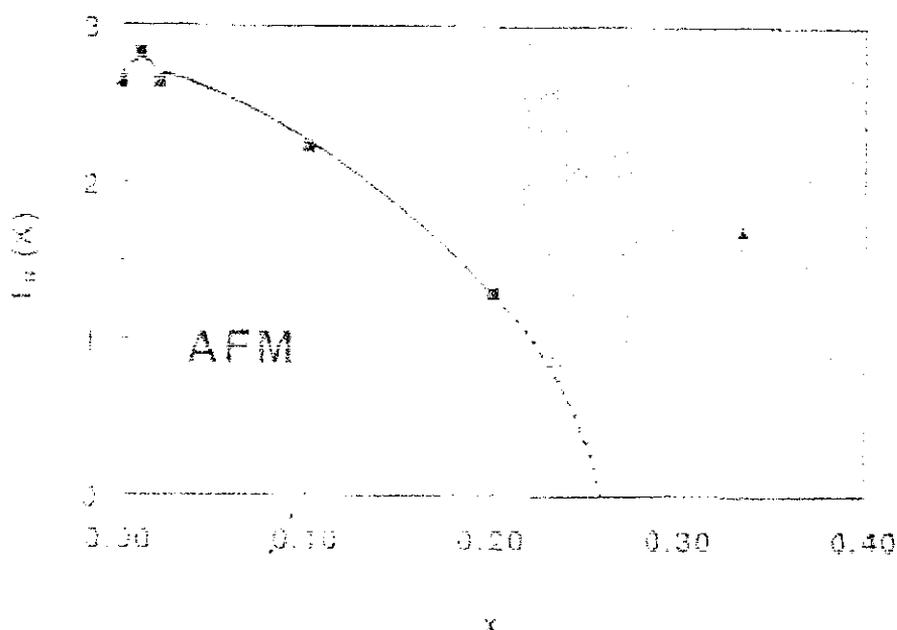


Figura 3.3. Diagrama de fase de T_N em função da concentração de Ga x para $CePd_2(Al_{1-x}Ga_x)_3$. Os quadrados representam as temperaturas de transição AF obtidas no experimento com dopagem, enquanto o triângulo denota a temperatura de transição FM para o $CePd_2Al_2Ga$. A área sombreada mostra a região de composições onde não é possível obter amostras homogêneas [13].

O estudo do composto $CePd_2Al_3Ga$ sob pressão se mostra muito interessante por dois motivos. Primeiro, existem poucos sistemas Ce-HF ferromagnéticos na pressão ambiente e a possibilidade de levar este composto a um QCP, sem mudança de ordem magnética, torna este composto um candidato para o estudo de fenômenos críticos próximo a um QCP

ferromagnético. O segundo e mais específico, reside no entendimento do diagrama de fase do sistema $\text{CePd}_2(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3$ pois, podemos observar na figura 3.4 (a), o diagrama de fase do sistema $\text{CePd}(\text{Al}, \text{Ga})_3$ fica indefinido na região intermediária, para a qual a inhomogeneidade na fase cristalina impede o estudo do sistema mediante a dopagem.

Estudos prévios de susceptibilidade magnética sob pressão hidrostática ($\chi(T,p)$) no composto $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ revelaram que a ordem magnética FM deste material muda para outra diferente, possivelmente AF, em torno de 4 kbar. A redução significativa na amplitude do sinal de $\chi(T,p)$ para pressões acima de 4 kbar, é atribuída à mudança da ordem de FM para AF, comparando com medidas de susceptibilidade no CePd_2Al_3 e CePd_2Ga_3 [17]. No entanto, nenhum resultado conclusivo sob o tipo de estrutura magnética pode ser extraído destas medidas para pressões até 8 Kbar, limite da técnica utilizada (ver fig. 3.4(b)).

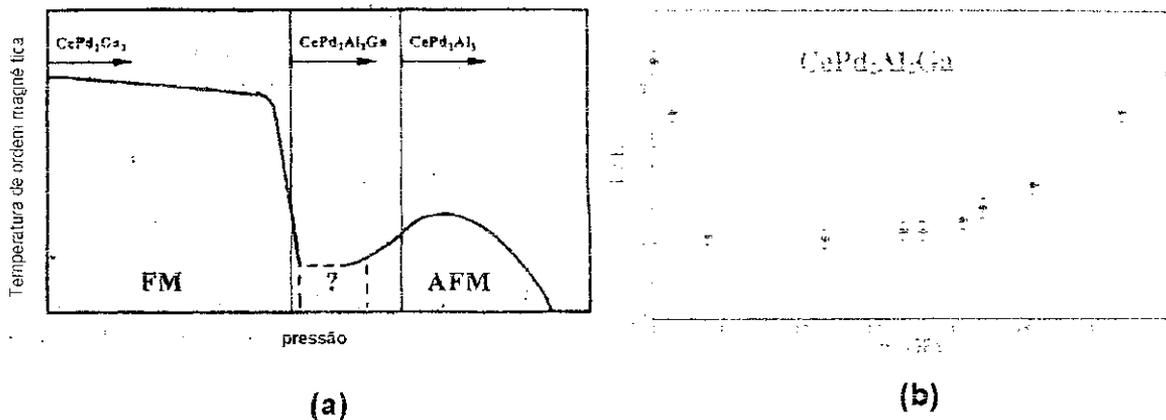


Figura 3.4. (a) Diagrama de fase proposto para o sistema $\text{CePd}_2(\text{Ga}_{1-x}\text{Al}_x)_3$. As linhas verticais e as setas definem o eixo de pressão para cada composto, respectivamente. (b) Dependência da temperatura de ordem magnética no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ obtida das medidas de susceptibilidade AC.

Por outro lado, recentemente, medidas de calor específico sob pressão ($C(T,p)$) no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, em $p < 25$ Kbar revelam a presença de uma fase ordenada magneticamente neste intervalo de pressões, mas nenhuma afirmação sobre o tipo de ordem magnética foi feita [18]. Da extrapolação da temperatura de ordem magnética $T_m(p) \rightarrow 0$ K, extraída das medidas de $C(T,p)$ para pressões < 25 Kbar (ver fig. 5), se obtém um QCP em $p_c \sim 28$ Kbar [18].

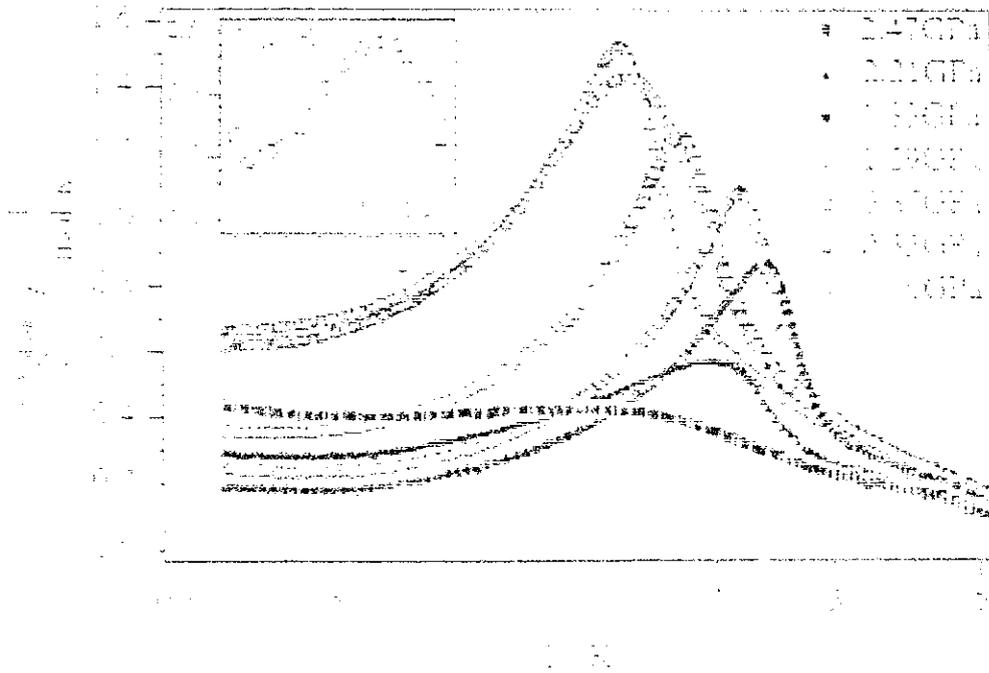


Figura 3.5. Medidas de calor específico no $CePd_2Al_2Ga$. A figura do "insert" mostra a dependência da temperatura magnética (T_m) com a pressão.

Ainda com os resultados experimentais obtidos nas medidas de $\chi(T,p)$ e $C(T,p)$, podemos encontrar duas questões principais que se mantêm em aberto:

- 1) Em baixas pressões ($p < 10$ Kbar) existem poucos dados experimentais que mostrem a mudança de ordem FM para AF.
- 2) Em altas pressões ($p > 10$ Kbar), as medidas de $C(T,p)$ mostram que o $CePd_2Al_2Ga$ é conduzido para o QCP. Porém a região crítica não foi explorada devido a limitação da técnica no intervalo de altas pressões (acima de 25 Kbar). Neste sentido, uma técnica experimental que consiga atingir o intervalo de altas pressões, como a resistividade elétrica, pode ser de grande utilidade. Além disso, o baixo valor do T_m ($< 2K$) requer que as medidas de resistividade elétrica sejam feitas em ultrabaixas temperaturas, permitindo estudar os fenômenos críticos quânticos quando $T \rightarrow 0K$.

Estes dois pontos descritos acima constituem a motivação principal do estudo do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ no presente trabalho, onde, a resistividade elétrica a altas pressões e ultrabaixas temperaturas é estudada.

3.3 Composto CePt

Em princípio, o cenário físico do ponto crítico quântico (QCP) é independente do tipo de ordem magnética. No entanto, as leis que descrevem o comportamento crítico das grandezas físicas em função da temperatura, são diferentes para as ordens magnéticas tipo FM ou AF, respectivamente [19, 20]. Contrariamente, um maior número de materiais HF com ordem AF têm sido estudados na região crítica quântica em comparação com poucos exemplos de HF com ordem FM [21]. Isto se deve não só ao pequeno número de sistemas de rede Kondo FM conhecidos, mas também pelo fato de que eles podem apresentar diagramas de fase muito particulares, onde fases AF coexistem ou se sobrepõem ao estado FM [10, 22]. Deste modo, uma transição de uma fase FM para um estado paramagnético (PM), passando pelo QCP, tem sido pouco observado.

Um dos poucos sistemas de rede Kondo, com ordem FM, candidato ao estudo de fenômenos críticos quânticos é o composto CePt [23]. O CePt é um intermetálico obtido em fase homogênea, e sua estrutura cristalina é ortorrômbica tipo CrB, grupo espacial $Cmcm$, com parâmetros de rede $a = 3.921 \text{ \AA}$, $b = 10.920 \text{ \AA}$, $c = 4.524 \text{ \AA}$ [24] (ver figura 3.6). Por sua vez, em $p = 0$, o estado fundamental do CePt é FM, com uma temperatura de Curie $T_c \sim 6 \text{ K}$ [23]. Este intermetálico, considerado como um sistema de rede Kondo FM denso, pode ser descrito no limite magnético dentro do cenário dos HF. No estado fundamental magnético, as interações de troca RKKY se sobrepõem a um fraco efeito Kondo, pelo fato do nível de Fermi (E_F) da Pt estar muito acima do nível de Fermi $4f(E_0)$ do Ce [25].

No entanto, medidas prévias de magnetização no CePt revelam uma considerável redução do valor da magnetização de saturação de $2.14 \mu_B$ (calculado para o íon livre de Ce = $gJ\mu_B$) para $0.73 \mu_B$ (obtido das medidas de magnetização) [25, 26]. Ginoux e colaboradores atribuíram esta redução na magnetização de saturação à alta anisotropia

magnetocristalina uniaxial [25]. Outros efeitos de menor contribuição como a blindagem Kondo, presença de campo cristalino (CF) e/ou polarização dos elétrons de condução são também relevantes no CePt.

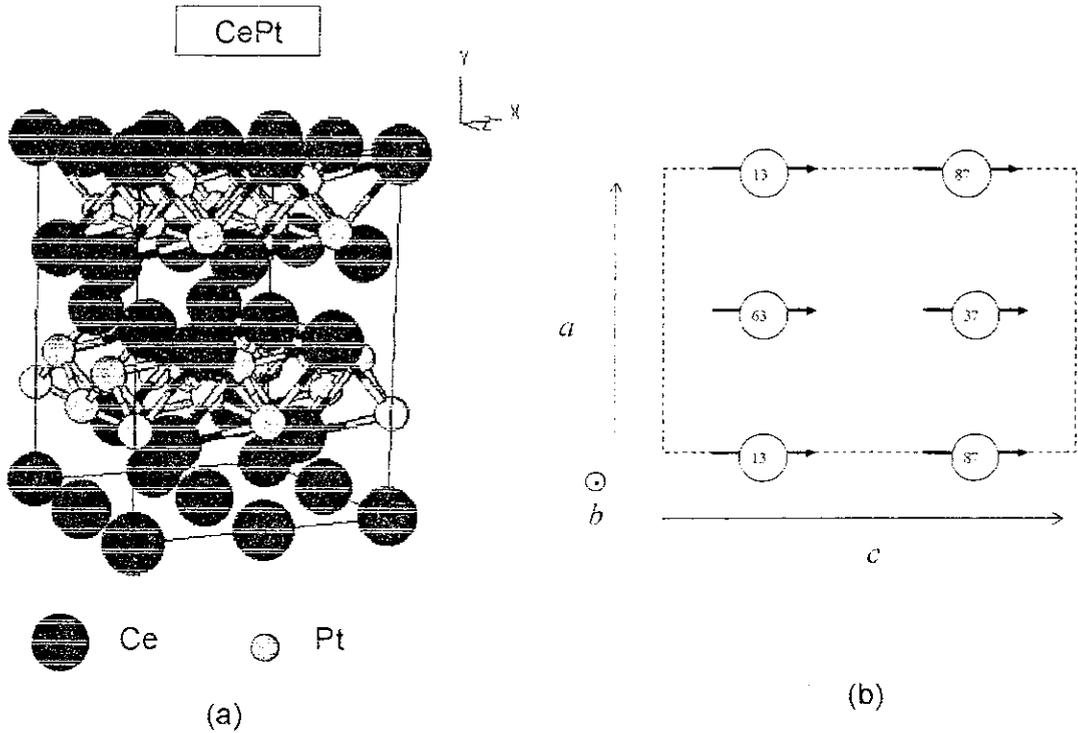


Figura 3.6 (a) Estrutura cristalina do CePt tipo CrB. (b) Estrutura magnética do ferromagnético CePt, vista ao longo do eixo b . Os números inscritos dentro dos átomos de Ce correspondem ao valor do parâmetro y proporcional a 100% do parâmetro de rede b . Os átomos de Pt não são mostrados porque eles têm as mesmas posições x, z dos átomos de Ce.

Por outro lado, em comparação com o composto isoestrutural PrPt, a estrutura magnética do CePt pode ser considerada como um arranjo colinear dos momentos magnéticos do Ce, paralelos a qualquer dos três eixos de simetria \bar{a} , \bar{b} ou \bar{c} [25, 27], como pode ser observado na figura 3.6 (b). Considerando que a contribuição da Pt ao magnetismo do CePt é desprezível, a competição do efeito Kondo com a interação de troca RKKY pode ser discutida considerando apenas os íons de Ce.

Ginoux e Gómez [25] foram os primeiros a apresentar um estudo no sistema $\text{CePt}_{1-x}\text{Ni}_x$, onde a substituição do Ni por Pt proporciona um ambiente eletrônico diferente para os íons de Ce, permitindo estudar a competição entre as interações Kondo e a de

troca RKKY. Ao contrário do CePt, o intermetálico CeNi apresenta um estado fundamental não magnético, tipo paramagneto de Pauli. Neste estado a interação predominante é o efeito Kondo, podendo haver coexistência com um estado de valência intermediária [28]. A figura 3.7 resume o comportamento característico do sistema $\text{CePt}_{1-x}\text{Ni}_x$, mostrando a evolução dos diferentes estados fundamentais, propostos por Ginoux e Gómez [25]. O estado do Ce^{3+} do FM CePt muda progressivamente de um estado férmion pesado magnético, para um estado de valência intermediária no CeNi, não magnético. Além disso, eles mostram que os compostos $\text{CeNi}_{0.85}\text{Pt}_{0.15}$ e $\text{CeNi}_{0.9}\text{Pt}_{0.1}$ apresentam um estado de valência intermediária coexistindo com o magnetismo. A substituição do Ni por Pt diminui o parâmetro de rede, de modo que o comportamento observado na figura 3.7, pode ser interpretado parcialmente como uma consequência da pressão química.

Por outro lado, Y. Itoh e colaboradores fizeram o primeiro e único estudo sob pressão externa no composto CePt, usando medidas de resistividade elétrica até pressões da ordem de 32 Kbar, limite da célula de pressão líquida [29].

As medidas de resistividade elétrica obtidas neste trabalho são mostradas nas figuras 3.8 (a) e 3.8 (b), no intervalo de temperaturas entre 1.5 K a 300 K. Na fig. 3.8 (a), a curva de resistividade do LaPt é incluída com a finalidade de subtrair a contribuição elétron-fonon da resistividade elétrica do CePt em função da pressão. Como poder ser visto na fig. 3.8 (a) esta contribuição quase não depende da pressão, sendo importante no intervalo de altas temperaturas.

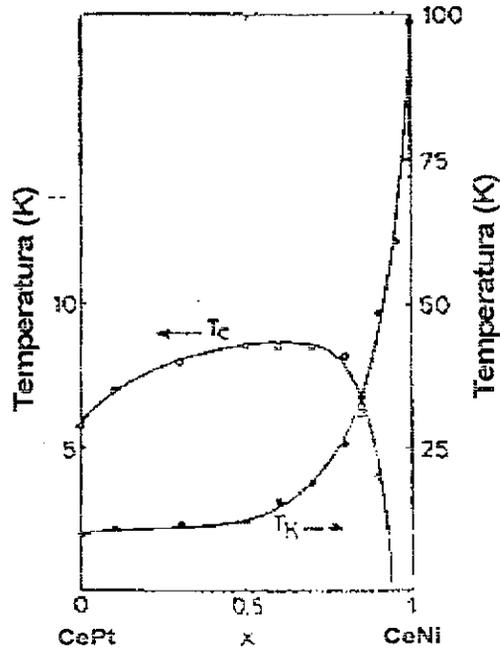


Figura 3.7 Temperatura de Curie T_C e temperatura Kondo T_K do sistema $CeNi_xPt_{1-x}$ em função do conteúdo x de Ni. Para o $CeNi_{0.95}Pt_{0.05}$ e $CeNi$, que apresentam comportamento paramagnético de Pauli e valência intermediária, T_K não pode ser definida [25].



Figura 3.8 (a) Resistividade elétrica em função da temperatura, em diferentes pressões, para o CePt e LaPt. (b) Resistividade elétrica em função da temperatura para o CePt, na vizinhança da temperatura de Curie T_C . A dependência de T_C com a pressão é mostrada no insert da figura [29].

A subtração da contribuição elétron-fonon das curvas de resistividade elétrica ressalta a contribuição magnética da mesma (ρ_m), de modo que $\rho_m = \{\rho(T)-\rho(0)\}_{\text{CePt}} - \{\rho(T)-\rho(0)\}_{\text{LaPt}}$. A figura 3.9 mostra a contribuição magnética da resistividade elétrica do CePt em função da pressão. Na 3.8 (b) podemos observar uma anomalia (“kink”) em baixas temperaturas (< 10 K) que se desloca progressivamente para temperaturas maiores com o aumento da pressão. Este kink é atribuído à temperatura de Curie, T_C , e sua evolução é representada no insert da figura 3.8 (b).

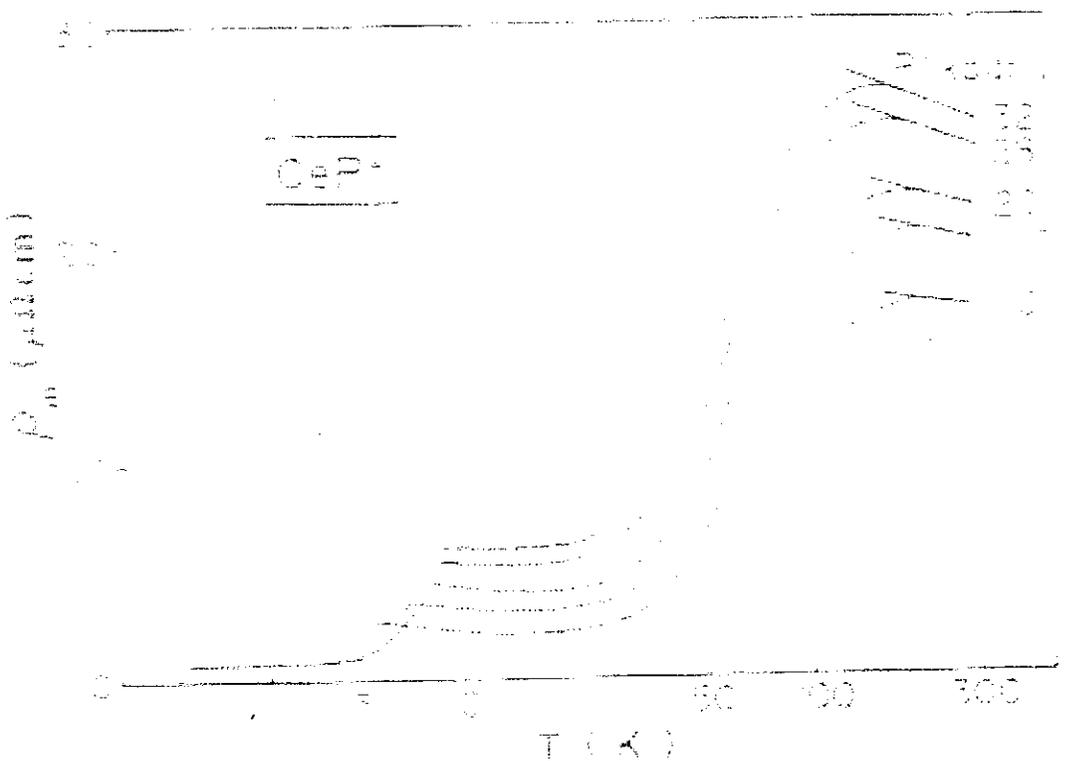


Figura 3.9 Curvas de resistividade elétrica ρ_m versus $\ln T$ para CePt em diferentes pressões [29].

A contribuição magnética das curvas de resistividade do CePt (fig. 3.9), para $p < 32$ Kbar, mostra as seguintes características:

- (i) ρ_m aumenta com a pressão até 30 Kbar, no intervalo acima de T_C .
- (ii) O valor absoluto da pendente da reta, em altas temperaturas, aumenta com P . A temperatura, acima do qual ρ_m mostra uma diminuição linear com $\ln T$ é

conhecida como T_{MAX} . Por outro lado a pendente da reta, definida entre T_c e 30 K, parece ser independente da pressão.

(iii) T_{max} desloca-se para temperaturas menores com o aumento de p .

A explicação dos itens (i) e (ii) é abordada dentro do modelo teórico proposto por Cornut e Coqblin [30]. Este modelo considera a influência do campo cristalino (CEF) no efeito Kondo em ligas do Ce com momento angular total J . A resistividade magnética (ρ_m) para temperaturas suficientemente baixas e altas, comparadas à temperatura do desdobramento do CEF, Δ , é dada pela relação:

$$\rho_m = A\Gamma^2 \frac{\lambda_n^2 - 1}{\lambda_n(2J+1)} + 2A\Gamma^3 n(E_F) \frac{\lambda_n^2 - 1}{2J+1} \ln\left(\frac{kT}{D_n}\right) \quad (3.1)$$

onde Γ (< 0) é a constante do acoplamento entre os elétrons $4f$ e de condução, $n(E_F)$ é a densidade de estados no nível de Fermi E_F , D_n é a energia efetiva de corte (*cutoff*). O fator λ_n é o número de estados ocupados, com diferentes valores em temperaturas baixas - λ_n (L.T) (acima de T_c) e em temperaturas altas - λ_n (H.T) (acima de T_{max}). Supondo que os valores de λ_n sejam independentes da pressão e, de acordo com a eq. (1), o item (i) pode ser explicado com base no aumento de Γ^2 com a pressão [29]. Além disso, ρ_m em baixas temperaturas deve considerar a contribuição do espalhamento devido à ordem magnética de curto alcance, de forma que a pendente em baixas temperaturas não deveria ser associada puramente ao efeito Kondo.

Por outro lado, considerando a eq. (1), o incremento do valor absoluto da pendente do $\ln T$ em altas temperaturas pode indicar que o termo Kondo, $|\Gamma^3 n(E_F)|$, aumenta com p . Para entender este fato podemos considerar os aspectos físicos relacionados com Γ . De acordo com a interação tipo Schrieffer-Woff [31], temos:

$$\Gamma = \frac{2|V_{Kf}|^2}{(E_{4f} - E_F)} \quad (2)$$

onde $|V_{Kf}|^2$ e E_{4f} são a hibridização $5d-4f$ e a energia do nível $4f$, respectivamente. Para o caso do CePt, pode ser considerado sistematicamente que E_F e E_{4f} se localizam na região de bandas de energia onde as bandas $5d$ da Pt e $5d$ do Ce estão superpostas

[25]. A pressão aplicada induz um alargamento da banda, produzindo um aumento da banda 5d do Ce e uma diminuição de seu nível de Fermi, E_F . Considerando que E_F encontra-se acima de E_{4f} , o aumento de Γ com a pressão pode ser explicado a partir da diminuição da grandeza $|E_{4f} - E_F|$, assumindo que E_{4f} não varia com p . A figura 3.10 mostra uma representação esquemática deste processo. O incremento de $|\Gamma|$ pode ser usado para explicar o aumento de T_C com a pressão.

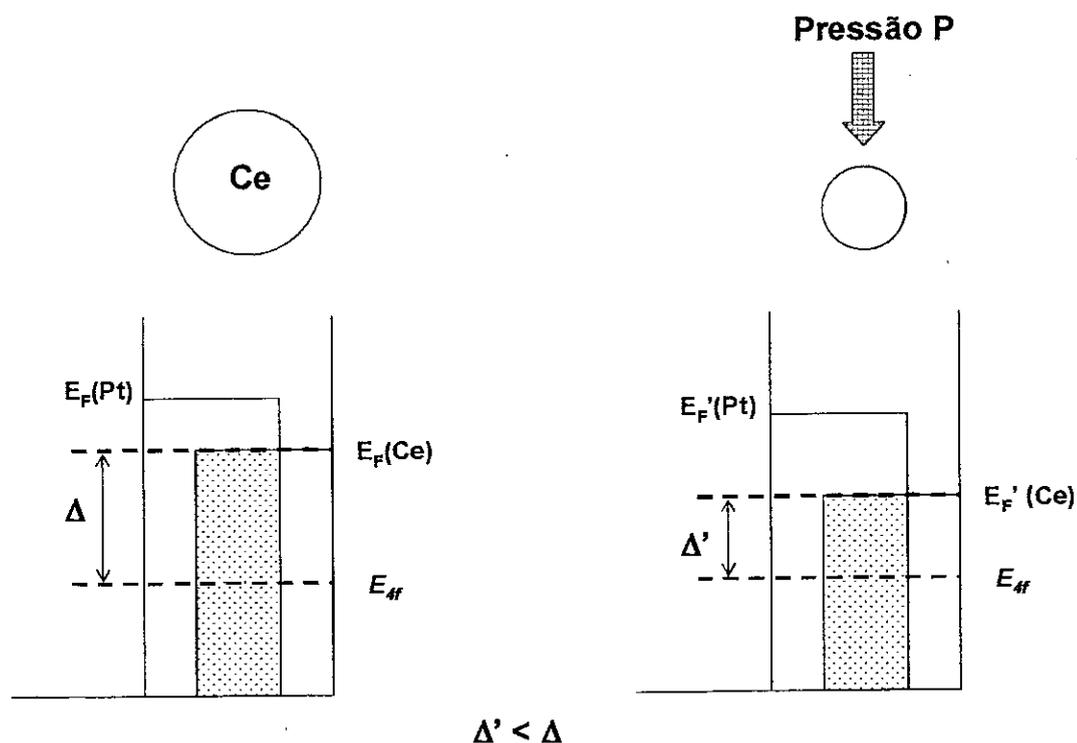


Figura 3.10 Proposta esquemática do processo de deslocamento do nível de Fermi E_F do Ce por efeitos da pressão.

Se T_{max} estiver relacionada ao desdobramento do campo cristalino (Δ), o fato em (iii), de T_{max} diminuir com a pressão, pode sugerir uma diminuição de Δ com p . Isto pode ser confirmado por cálculos teóricos do efeito da distância interatômica (r) sobre Δ [29].

Contudo, mantendo a analogia entre pressão química e a pressão externa, pode-se estabelecer uma comparação entre os resultados obtidos no sistema $CePt_{1-x}Ni_x$ [25] com

aqueles obtidos no composto CePt [29] (fig. 3.11). A pressão máxima obtida por Itoh e colaboradores [29], $p \sim 35$ Kbar, equivale a uma compressão de volume de $(-\Delta V/V) \sim 3.5 \times 10^{-2}$, que por sua vez, equivale a uma concentração $x = 0.6$ no sistema $\text{CePt}_{1-x}\text{Ni}_x$. Analogamente o composto CePt poderia ser conduzido ao ponto crítico quântico para pressões acima de 35 Kbar, possivelmente preservando sua ordem FM. O tipo de transição FM - QCP é raramente observado em sistemas de redes Kondo com Ce. Em particular, os compostos CePdSb e CeAg são os exemplos que tem sido reportados com uma transição FM-QCP, descrito dentro do diagrama de Doniach [32]. A maioria dos compostos Ce HF ferromagnéticos são conduzidos para o QCP com mudança no tipo de ordem magnética, tal como é reportado, por exemplo, no CeRu_2Ge_2 [33] ou $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ [18], onde a ordem muda de FM para AF antes de atingir o QCP.

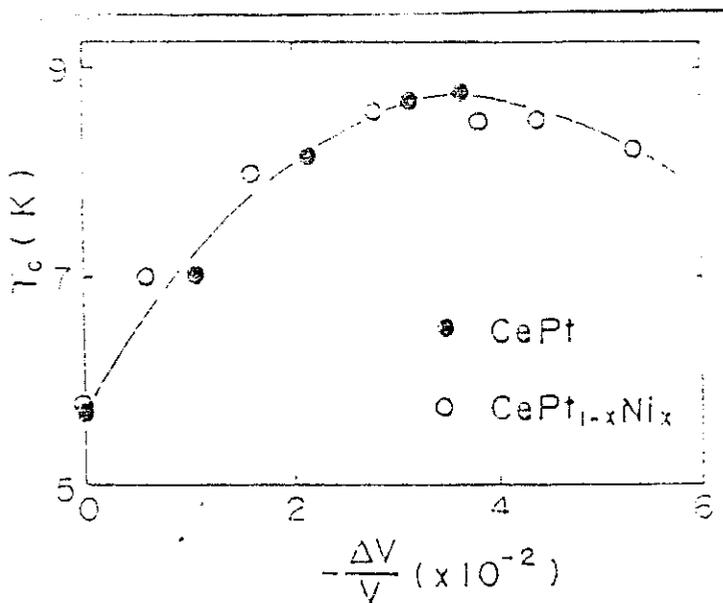


Figura 3.11. Valores de T_c como função da contração do volume, por efeitos de dopagem ($\text{CePt}_{1-x}\text{Ni}_x$) e de pressão p (CePt) [29].

Dentro deste cenário, o composto CePt se apresenta como excelente candidato para o estudo de fenômenos críticos em sistemas rede Kondo ferromagnéticos, pouco observado experimentalmente.

3.4 Composto YbFe_2Ge_2

Dentro da representação do diagrama de Doniach para os férmions pesados, podemos encontrar que um grande número HF de Ce é conduzido para o QCP a partir de um estado fundamental magnético (MO). Esta situação é particularmente diferente no caso dos HF de Yb, onde o estado fundamental é não magnético (NMO) ($\text{Yb} - 4f^{14}$), ou ainda coexiste com estado de valência intermediária [21]. Embora os estados fundamentais nos férmions pesados de Ce e Yb encontrem-se em lados opostos do diagrama de Doniach, os fenômenos críticos quânticos envolvidos nestes compostos podem ser discutidos no mesmo cenário físico, considerando a analogia elétron-buraco, como se mostra na figura 3.12.

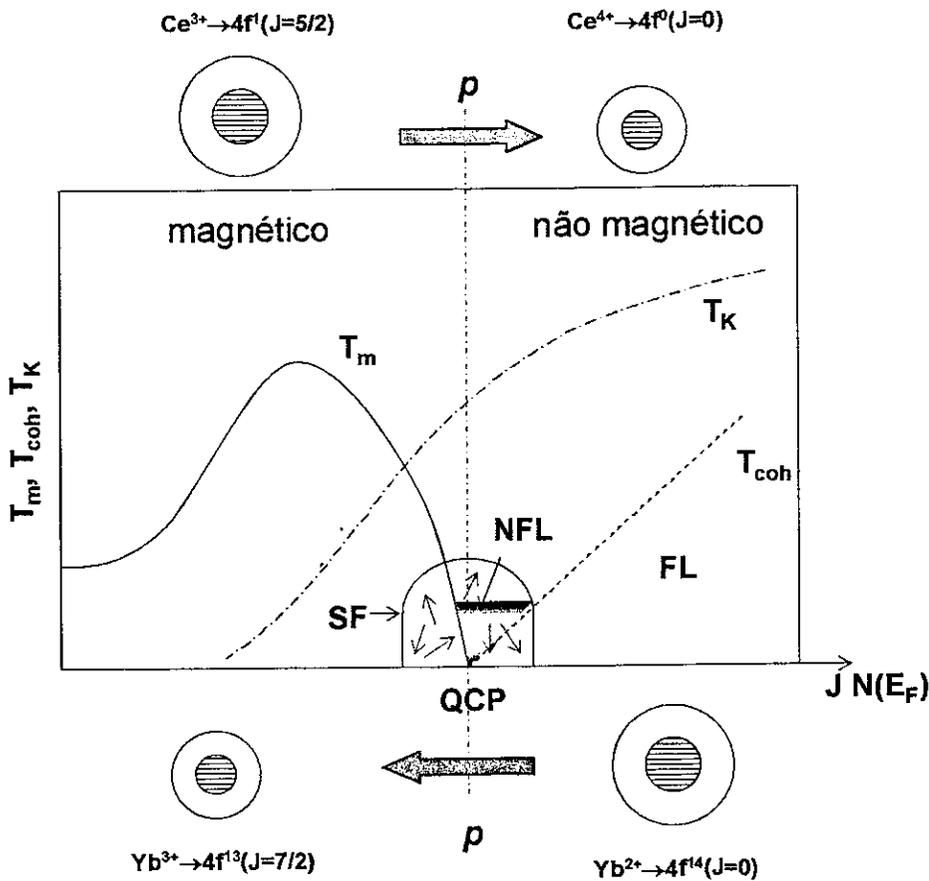


Figura 3.12 Representação esquemática da analogia elétron-buraco nos férmions pesados (HF) de Ce e Yb dentro do diagrama de fase. A região próxima do ponto crítico quântico é governada pelo cenário das flutuações magnéticas (spin fluctuations-SF).

Como pode ser observado na fig. 3.12, o estado fundamental NMO nos compostos HF de Yb apresenta o íon do Yb com a camada $4f$ completa ($4f^{14} \rightarrow J=7/2$). Neste lado do diagrama, as propriedades físicas apresentam um comportamento Kondo influenciado, em alguns casos, pela presença de campo cristalino, além de um comportamento líquido de Fermi (FL) em uma escala importante de temperaturas [21]. Em princípio é de se esperar que modificando o parâmetro de ordem $JN(E_F)$, por exemplo, mediante a redução do volume por pressão p , podemos conduzir o sistema a uma situação de instabilidade magnética, atingido o QCP na pressão crítica p_c . Nas vizinhanças do QCP deveríamos observar um comportamento NLF, onde a dimensionalidade das flutuações magnéticas seja fundamental para determinar o desvio das propriedades físicas de um FL convencional.

Ao contrário dos compostos HF de Ce, existem poucos compostos HF de Yb (Fig. 3.13) que encontram-se próximo da situação de instabilidade magnética. De fato, até a presente data, só o composto YbRh_2Si_2 apresenta um comportamento NLF à pressão ambiente ($p=0$) [34, 35]. Os primeiros experimentos sob pressão (O. Trovalli e colaboradores [34]) mostram que o estado fundamental ($p=0$) do YbRh_2Si_2 encontra-se perto da instabilidade magnética. A figura 3.13 (a) mostra que a resistividade elétrica é linear com a temperatura, pelo menos até algumas dezenas de graus Kelvin, comportamento característico de um estado NLF. A aplicação da pressão conduz o material YbRh_2Si_2 desde a situação de instabilidade magnética até uma situação magneticamente estável (ver fig. 3.13 (b)). Mais recentemente, J. Plessel e colaboradores [35, 36], da universidade Köln (Alemanha), mostraram resultados de espectroscopia Mössbauer sob pressão neste material, reportando uma transição de primeira ordem, de baixo momento magnético localizado (LM) para um alto momento magnético (HM), induzida em altas pressões $p > 10 \text{ GPa}$. O diagrama de fase para o YbRh_2Si_2 proposto por J. Plessel e col é mostrado na figura 3.14. Por sua vez, o estado LM é influenciado relevantemente pelas flutuações magnéticas, do tipo antiferromagnética bidimensionais (AF- 2 D SF), confirmando os primeiros resultados reportados na ref. [35]. Embora nenhuma conclusão sobre o tipo de ordem magnética induzida no YbRh_2Si_2 tenha sido obtida por estes autores, espera-se que, dentro do cenário do modelo das flutuações de spins, a ordem magnética induzida sob pressão seja do tipo antiferromagnética [34, 35].

Por outro lado, considerando a analogia elétron-buraco entre as configurações eletrônicas $Ce^{3+}(4f^1) \rightarrow Ce^{4+}(4f^0)$ e $Yb^{4+}(4f^0) \rightarrow Yb^{3+}(4f^1)$, aumentando p é possível levar o sistema Yb para um estado magnético ordenado. Este comportamento torna os compostos HF de Yb sistemas atraentes para o estudo dos fenômenos críticos próximos da transição NMO \rightarrow MO seguindo a evolução do magnetismo.

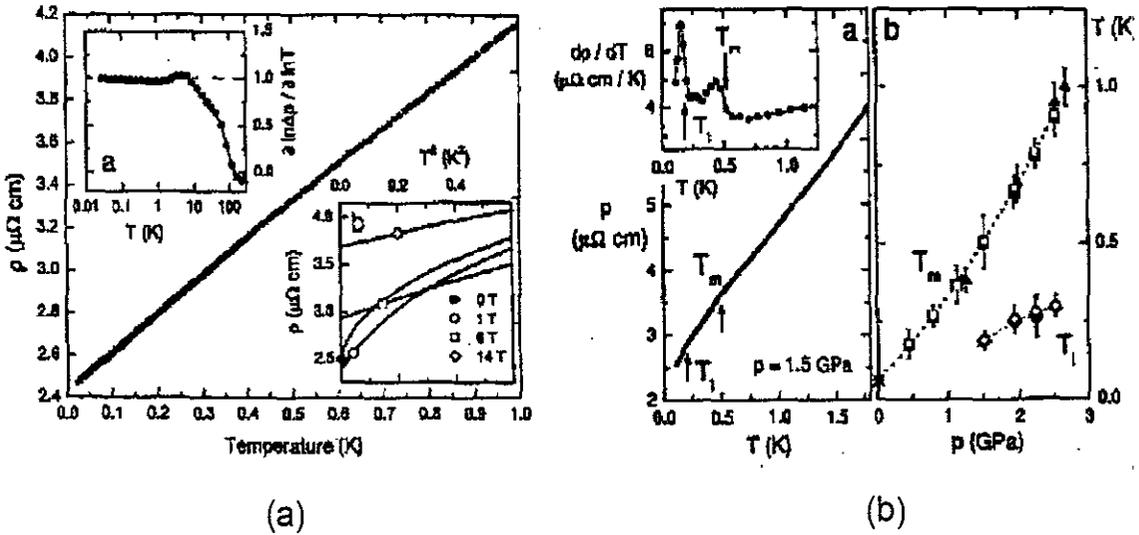


Figura 3.13. (a) Resistividade elétrica em baixas temperaturas do $YbRh_2Si_2$, medida ao longo do eixo a e em $p=0$, mostrando dependência $\rho(T)=\rho_0+bT^\epsilon$, com $\epsilon=1$. [a] Dependência com a temperatura do expoente efetivo ϵ , definido como $\frac{d \ln \Delta \rho}{d \ln T}$, onde $\Delta \rho = \rho - \rho_0$ [b] ρ vs T^2 , para $B \leq 14$ T aplicado ao longo do eixo c . A posição dos símbolos indica a temperatura de “crossover”, abaixo da qual $\rho \propto T^2$. (b) [a] Resistividade elétrica do $YbRh_2Si_2$ para $p = 1.5$ GPa. Anomalias em T_m e em ultrabaixas temperaturas (T_1) são observadas e desenvolvem uma dependência linear acima de T_m . Inset: derivada de $\rho(T)$ com T , mostrando que T_m e T_1 são transições de segunda ordem. (b). Dependência com a pressão de T_m e T_1 medida em três diferentes amostras. O símbolo em $p=0$ corresponde ao valor de T_N extraído da susceptibilidade magnética [34].

No entanto, estudos sobre os fenômenos críticos nestes materiais têm sido raramente investigados em comparação com os HF de Ce e U [21]. Isto se deve principalmente a razões experimentais. De um lado, a preparação de amostras intermetálicas de Yb com fase cristalina homogênea dificulta o estudo com experimentos sob dopagem (pressão química), devido à alta pressão do vapor do Yb [37]. Por outro lado, para estes materiais os experimentos necessários para induzir magnetismo tem que ser feitos a altas pressões, $p > 8$ GPa, tornando inacessível, até a presente data, o estudo dos fenômenos críticos através de medidas termodinâmicas [38].

Um das poucas técnicas experimentais utilizadas para investigar os HF de Yb sob altas pressões é a resistividade elétrica $\rho(T)$. Medidas deste tipo tem sido reportadas em compostos policristalinos como o $\text{Yb}_2\text{Ni}_2\text{Al}$ [39], YbCuAl [40], YbCu_2Si_2 [41], e no monocristal YbRh_2Si_2 [34, 35]. Em todos estes compostos, as curvas de resistividade mostram anomalias em baixas temperaturas (< 4 K), e em pressões $p > 8$ GPa. Estas anomalias são associadas à presença de uma ordem magnética induzida por pressão, que se faz mais estável à medida que a pressão aumenta. Embora as anomalias em $\rho(T)$ sejam associadas à presença de uma ordem magnética, as medidas de transporte não permitem definir o tipo de ordem magnética.

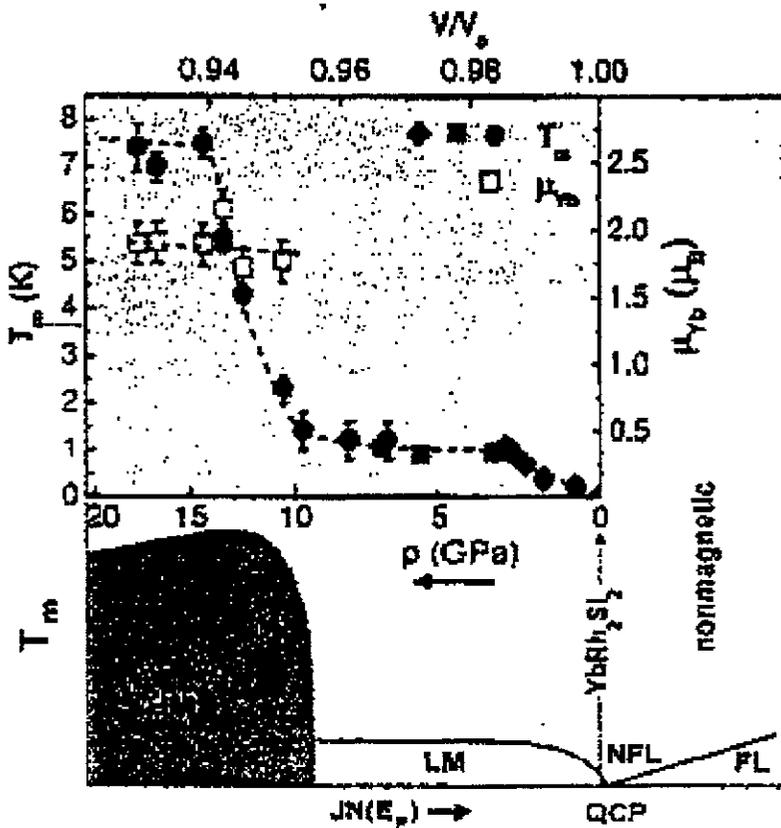


Figura 3.14. A parte superior mostra o diagrama de fase magnético do YbRh_2Si_2 baseado em dados experimentais da temperatura de ordem (T_m) determinado por (●)espectroscopia Mössbauer e (■, ◆) resistividade elétrica. Além disso, a dependência com a pressão do momento magnético μ_{Yb} é mostrada. A parte inferior ilustra o diagrama de fase $[JN(E_F), T]$ sugerido pelas ref. [35, 36]. $N(E_F)$ é a densidade eletrônica de estados no nível de Fermi.

Recentemente, a descoberta de um novo férmion pesado de Yb, o YbFe_2Ge_2 , foi relatada [42]. A estrutura cristalina deste composto, representada na figura 3.15, é do tipo tetragonal ThCr_2Si_2 , com parâmetro de rede: $a = 3.924 \text{ \AA}$ e $c = 10.503 \text{ \AA}$. As medidas de susceptibilidade ($\chi(T)$) e de calor específico ($C(T)$) à pressão ambiente, revelam que o YbFe_2Ge_2 apresenta um estado não magnético coexistindo com um estado de valência intermediária no Yb. O valor da constante $\gamma = 200 \text{ mJmol}^{-1}\text{K}^{-2}$ obtido nas medidas de $C(T)$ é comparável a outros valores encontrados nos férmions pesados de Yb, caracterizando ao YbFe_2Ge_2 como um férmion pesado moderado [39]. Além disso, recentes medidas de espectroscopia Mössbauer, na pressão ambiente, revelam a existência de uma impureza magnéticas no sitio do Fe [40].

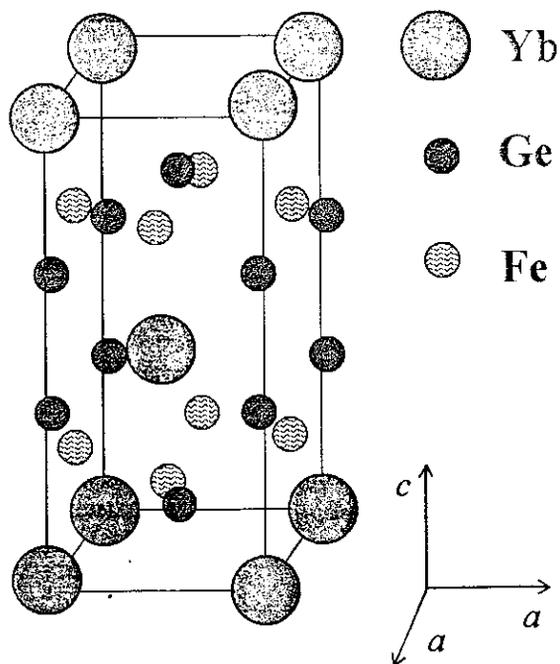


Figura 3.15. Estrutura cristalina do YbFe_2Ge_2 , tipo ThCr_2Si_2 .

Até o momento, as propriedades físicas do YbFe_2Ge_2 têm sido estudadas apenas em $p=0$. O nosso interesse é estudar este composto sob pressão para explorar a região crítica quântica, comparando os cenários físicos envolvidos nos HF de Yb com aqueles correspondentes ao Ce. Finalmente, o intervalo de pressões acima da região crítica quântica resulta atraente, posto que, em comparação com outros HF de Yb, poderíamos esperar o aparecimento de uma ordem magnética induzida por altas pressões.

REFERÊNCIAS

- [1] S. Doniach, in *Valence Instability and Related Narrow Band Phenomena*, edited by R. D. Parks (Plenum, New York, 1977).
- [2] S. Raymond and D. Jaccard, *Phys. Rev. B.* 61 (2000), 8679.
- [3] D. Jaccard, H. Wilhelm, K. Alami-Yadri, E. Vargoz. *Physica B*, 259 (1999), 1.
- [4] A. J. Schofield. *Contemporary Physics*, vol. 40, 2, (1999), 9.
- [5] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer, G. G. Lonzarich. *Nature*, Vol. 394, (1998), 39.
- [6] H. Kitazawa, C. Schank, S. Thies, B. Seidel, C. Geibel and F. Steglich. *J. Phys. Soc. Jpn*, 61, 5, (1992), 1461.
- [7] E. Bauer, R. Hauser, E. Gratz, G. Schaudy, M. Rotter, A. Lindbaum, D. Gignoux, D. Schmitt. *Z. Phys. B* 92, 411 (1993)
- [8] A. Drechsler, A. Eichler, *Z. Phys. B* 100, 343 (1996).
- [9] R. Hauser, E. Bauer, A. Galatanu, A. Indinger, M. Maikis, H. Kirchmayr, D. Gignoux, D. Schmitt. *Physica B* 206, 231 (1995).
- [10] T. Burghardt, E. Hallmann, A. Eichler. *Physica B* 230, 214 (1997).
- [11] A. Dönni, A. Furrer, E. Bauer, H. Kitazawa, M. Zolliker. *Z. Phys. B* 104, (1997), 403.
- [12] M. Scwerin, B. Becker, A. Eichler, J. A. Mydosh. *J. Mag. Mag. Mat*, 226, 176 (2001).
- [13] B. Ludoph, S. Süllow, B. Becker, G. J. Nieuwenhuys, A. A. Menovsky, J. A. Mydosh. *Physica B* 223, (1996), 351.
- [14] S. Mitsuda, T. Wada, K. Hosoya, H. Yoshizawa, H. Kitazawa. *J. Phys. Soc. Jpn*, 61, 12, 4667 (1992).
- [15] E. Bauer, G. Schaudy, G. Hilscher, L. Keller, P. Fischer, A. Dönni. *Z. Phys. B* 94, (1994), 359.
- [16] S. A. M. Mentink e colaboradores *Phys. Rev. B.* 49 (1994) 15759.
- [17] T. Burghardt, A. Eichler, S. Süllow, J. A. Mydosh. *Physica B* 259, 99 (1999).

- [18] H. Neemann, A. Eichler, S. Süllo, J. A. Mydosh. *Physica B*. In printed.
- [19] J. Hertz. *Phys. Rev. B* 14, 3, (1976), 1165.
- [20] A. J. Mills. *Phys. Rev.* 48, 10, (1993), 7183.
- [21] Revisão sobre férmions pesados ver G. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* 73 (2001) 797.
- [22] H. Wilhelm et al. *Sol. State Commun.* 106 (1998), 239.
- [23] J. G. Huber, C. A. Luengo. *J. Physique C6*, (1978), 781
- [24] A E. Dwight, R. A. Conner, Jr and J. W. Downey. *Acta Cryst* 18, (1965), 837.
- [25] D. Ginoux, J. C. Gomez-Sal. *Phys. Rev. B*, 30, 7, (1984), 3967.
- [26] D. Ginoux, J. C. Gomez-Sal. *Sol. State Com.* 45, 9, (1983), 779.
- [27] A. Castets, D. Gignoux, J. C. Gomez-Sal, and E. Roudaut, *Solid State Commun.* 44, (1983), 1329
- [28] J. A. Blanco, M. De Podesta, J. I. Espeso, J. C. Gómez Sal, C. Lester, K. A. McEwen, N. Patrikios, J. Rodríguez F. *Phys. Rev B*, 49, 21 (1994), 15126.
- [29] Y. Itoh, H. Kadomatsu, M. Kurisu, H. Fujiwara. *J. Phys. Soc. Japan*, 56, 3, (1987), 1159.
- [30] B. Comut e B. Coqblin, *Phys. Rev B5* , (1972), 4541.
- [31] J. R. Schrieffer and P. A Wolff. *Phys, Rev.*, 149, (1996), 3125.
- [32] A. L. Comelius, A. K. Gangopadhyay, J. S. Schilling, W. Assmus. *Phys. Rev. B.* 55, 21, (1997), 14109.
- [33] S. Süllo, M. C. Aronson, B. D. Rainford, P. Haen. *Phys. Rev. Lett.* 82, 14, (1999), 2963.
- [34] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhmmmer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Spam, and F. Steglich. *Phys. Rev. Lett* 85, 3, (2000), 626.
- [35] J. Plessel, M. M. Abd-Elmeguid, J. P. Sanchez, G. Knebel, C. Geibel, O. Trovalli and F. Steglich. *Phys. Rev. B.* 67 (2003), 180403.

- [36] J. Plessel. Tese de doutorado em física. Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität zu Köln, (2002). Köln (Alemanha).
- [37] Z. Fisk and M. B. Maple, *J. Alloys Compd.* 183, (1992), 303.
- [38] P. Gegenwart, F. Kromer, M. Lang, G. Spam, C. Geibel, F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.*, 82, 1293 (1999).
- [39] H. Winkelmann, M. M. Abd-Elmeguid, H. Micklitz, J. P. Sanchez, G. Geibel, F. Steglich. *Phys. Rev. Lett.* 81, 22, (1998), 4947.
- [40] J. M. Mignot and J. Wittig. *Valence Instabilities*, editado por P. Wachter and H. Boppert (North-Holland, Amsterdam, 1982), pag. 203.
- [41] H. Winkelmann, M. M. Abd-Elmeguid, H. Micklitz, J. P. Sanchez, P. Vulliet, K. Alami-Yadri. *J. Jaccard. Phys. Rev. B.* 60, 5, (1999), 3324.
- [42] J. Ferstl, *Abstract's Book of the Strongly Correlated electron Systems 02.*
- [43] J. Larrea J, D.R. Sánchez, Abd-Elmeguid, E. M. Baggio-Saitovitch. To be published.

CAPÍTULO 4

TÉCNICAS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo será feita uma apresentação do procedimento experimental usado nas medidas de resistência elétrica sob pressão, descrevendo os criostatos, o sistema de resistividade AC, as diferentes células de pressão, e o sistema de diluição $\text{He}^3\text{-He}^4$ (dilute), que permite alcançar as temperaturas de 40mK.

4.1 OS CRIOSTATOS

Foram dois os criostatos usados nas medidas de resistência elétrica sob pressão: um criostato comercial *Janis* (Fig. 4.1) para fazer medidas desde 1.6 K, e um criostato *Oxford* (Fig 4.2) para fazer medidas no sistema de diluição $\text{He}^3\text{-He}^4$ (dilute) desde 40 mK.

Ambos os criostatos consistem de uma câmara de vácuo de isolamento, um banho de nitrogênio líquido, outra câmara de vácuo de isolamento, que se encontra conectada à primeira, um banho de hélio líquido, e um compartimento onde é colocada a haste ou câmara do porta amostras.

No caso do *criostato Janis*, o compartimento está conectado ao banho de hélio por um capilar com uma válvula, que regula o fluxo do hélio para o seu interior, possibilitando o controle da temperatura. Um sistema de bombeamento de hélio é adaptado ao compartimento para reduzir a temperatura até 1.5 K. Este criostato é utilizado para realizar as medidas de resistência sob pressão de um intervalo de temperaturas entre 1.8 K e 300 K. As células de pressão são fixadas na parte inferior da haste e recobertas por um copo de cobre, que permite homogeneizar o fluxo do hélio sobre a célula (ver fig. 4.1). Um fio de manganina enrolado na célula de pressão foi usado como resistência para aquecer as amostras (*heater*, $R_{heater} \sim 50 \Omega$), e os sensores de temperatura do tipo resistor (carbon glass, com series C14646 e C16629) foram usados para monitorar a temperatura (ver fig. 4.1). Os

sensores *carbon glass*, previamente calibrados, são apropriados para trabalhar na região de temperaturas acima de 1.5 K [1].

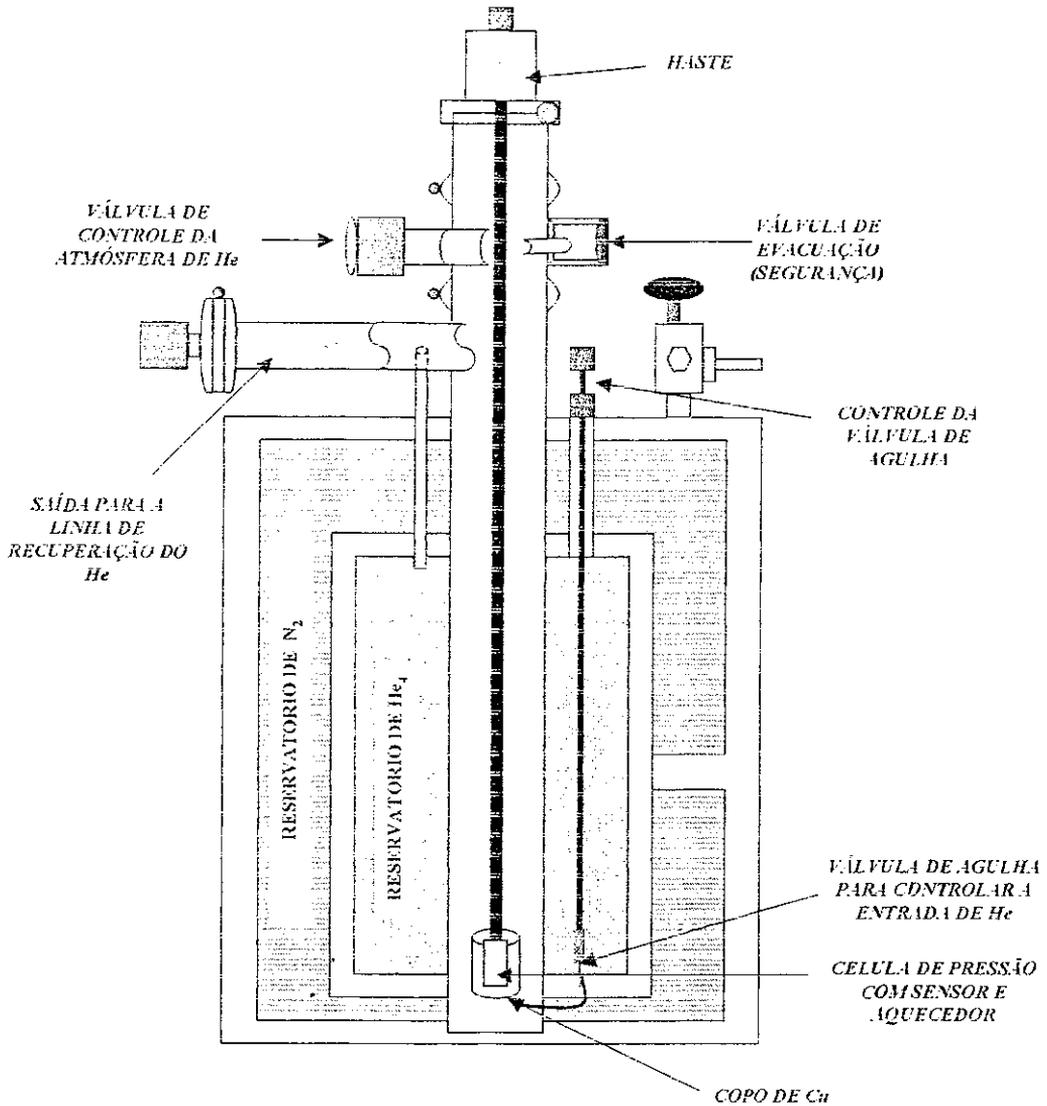


Figura 4.1 Criostato Janis usado nas medições de resistência elétrica AC sob pressão no intervalo de temperaturas entre 1.6K e 300 K.

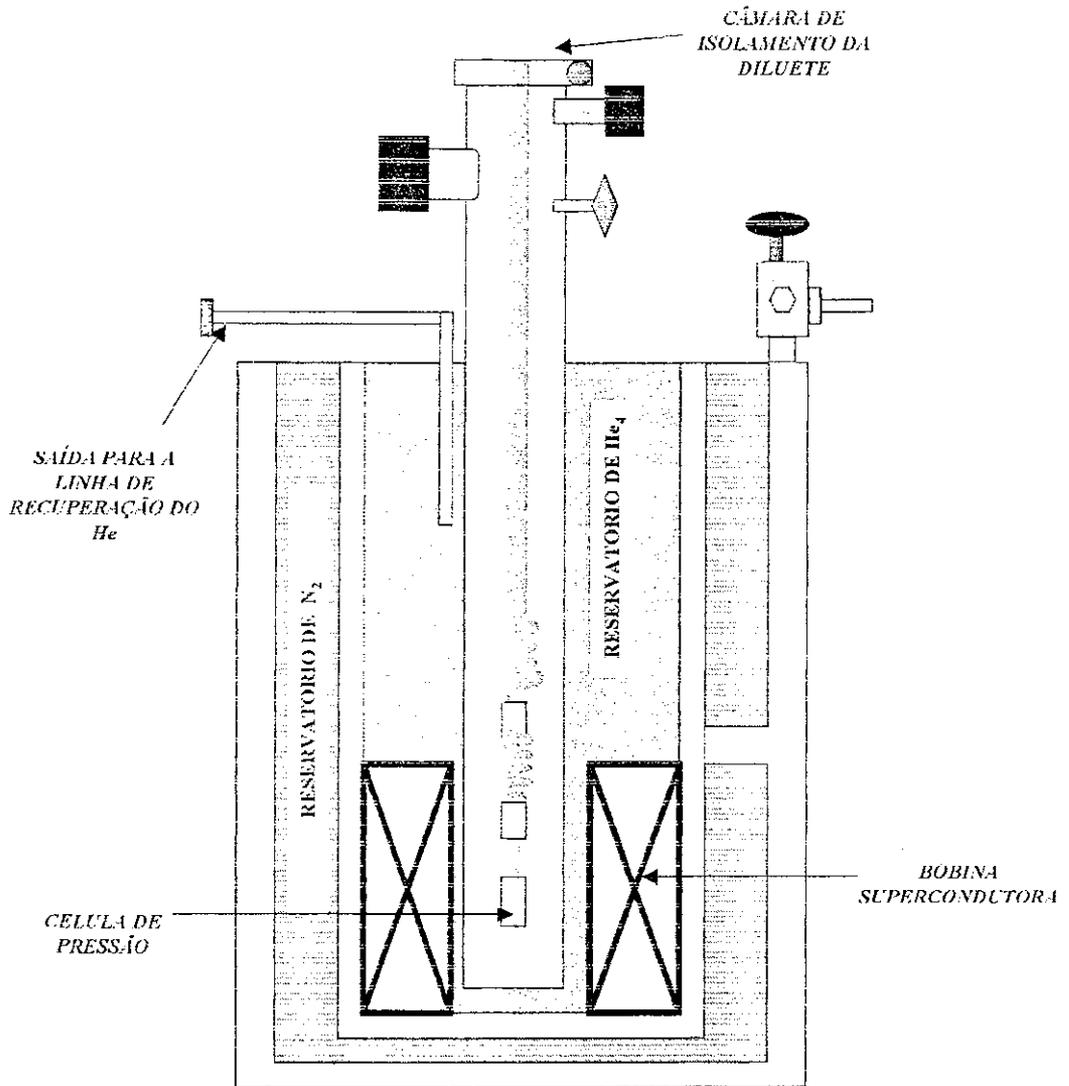


Figura 4.2 Criostato Oxford utilizado nas medidas de resistência elétrica AC sob pressão em ultrabaixas temperaturas [0,040 K–20 K]

No criostato Oxford, o compartimento do criostato contém a parte correspondente à câmara de isolamento da diluete, dentro da qual encontra-se a célula de pressão com a amostra instalada, como será visto mais adiante. Este criostato é utilizado para fazer medidas de resistência elétrica sob pressão em um intervalo entre 40 mK e 20 K, sendo este o limite máximo (serão discutido na seção 4.2 (diluete)). Além disso, este criostato possui no seu interior uma bobina supercondutora que alcança campos magnéticos até 5T, permitindo realizar medidas de magnetoresistência sob pressão [2]. Um sensor do tipo resistor RuO, previamente calibrado, que trabalha na região de ultrabaixa temperaturas

[0.040 K– 2K] [3] é utilizado. Para medidas de 2 K até 20 K foram usados os sensores *carbon glass* com número de série C14646 e C16629.

4.2 MEDIDAS DE RESISTIVIDADE AC SOB PRESSÃO

4.2.1 O sistema de resistividade AC

O sistema de resistividade AC utilizado neste trabalho, é composto basicamente de um porta amostras, uma *ponte* para medir a resistência dos sensores (controlador de temperatura), uma *ponte* para medir a resistência das amostras com uma fonte que fornece corrente AC para as amostras (modelo LR700 da Linear Research) [4] e, um programa para aquisição de dados e controle da medida. A figura 4.3 mostra o diagrama de blocos do sistema AC para as medidas de resistividade elétrica.

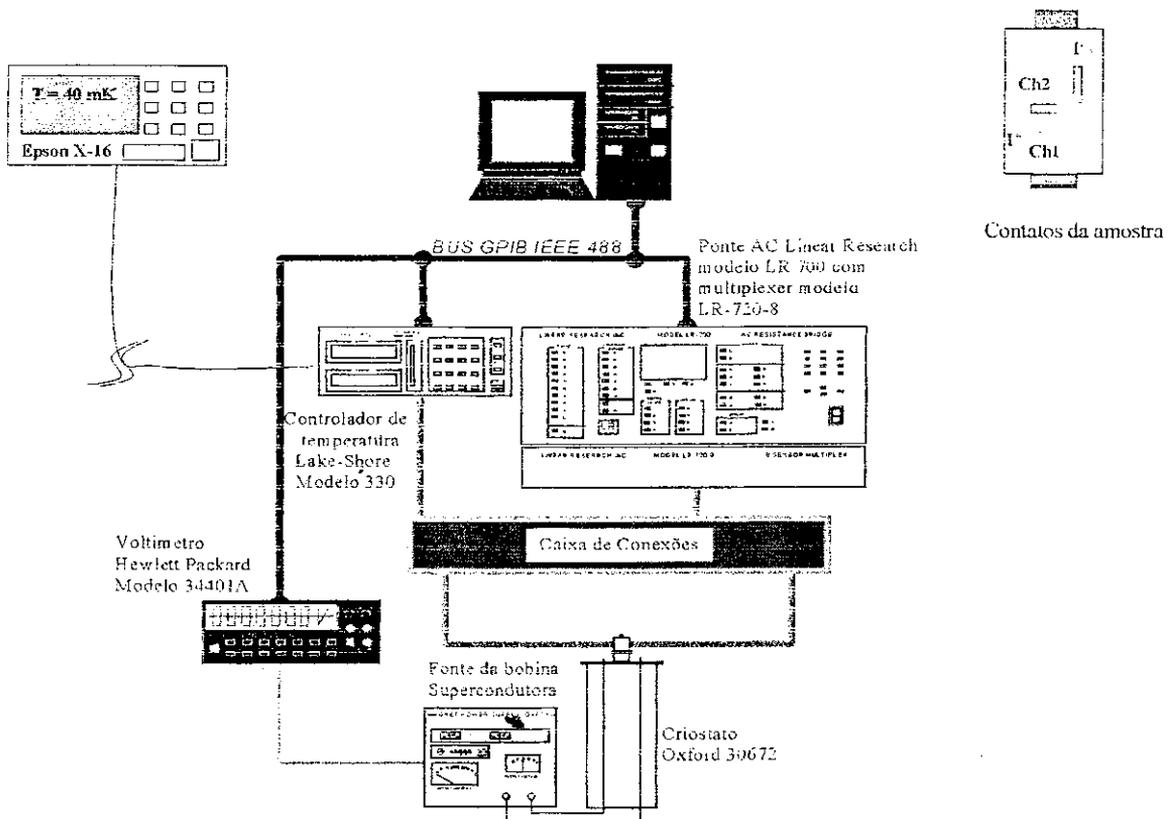


Figura 4.3. Diagrama de blocos do sistema usado nas medidas de resistividade AC sob pressão. A frequência utilizada foi de $\nu = 16$ Hz com corrente de excitação de $I = 1$ mA.

Para monitorar os intervalos de temperaturas, acima e abaixo de 1.6 K, dois diferentes modos de controle de temperatura foram usados. Para $T > 1.6$ K é usado um controlador de temperatura modelo LAKESHORE 340, enquanto que para temperaturas < 1.6 K é usado uma *ponte* modelo EPSON – 16X do Instituto de Baixas Temperaturas de Grenoble (CNRS).

As medidas de resistência elétrica sob pressão são realizadas usando o método de quatro pontas: dois contactos para aplicação de corrente e outros dois para a medida da voltagem, tal como podemos observar na figura 4.4. A principal vantagem deste método é minimizar a influência dos contatos na leitura da resistência da amostra. Usando o método AC, as resistências de contato podem ser observadas com clareza quando se avalia a componente imaginária da tensão lida. Esta componente reflete o comportamento da capacitância de contato com a temperatura, fornecendo um valioso subsídio para a interpretação dos dados obtidos. Qualquer tipo de erro oriundo dos contactos da amostra pode ser perfeitamente identificado [5].

Por outro lado, as medidas de transporte em altas pressões e baixas temperaturas requerem, muitas vezes, amostras em pó, dispostas em uma área muito pequena (diâmetro de 0.1-0.3 mm em uma célula de pressão de diamante -DAC). Este fato dificulta a obtenção de uma medida absoluta da resistividade elétrica da amostra (ρ_s), pois o cálculo de ρ_s depende, ou do formato da amostra, ou da distância entre os contactos e da espessura da amostra (método de Van der Pow: mais detalhes são encontrados na tese de doutorado de M. B. Fontes [6]).

No caso mais simples, tendo como geometria da amostra uma configuração apresentada na fig.4.4, o cálculo da resistividade é dado pela relação simples:

$$\rho_s = R \frac{Lc}{d} \quad (4.1)$$

onde R é obtido da lei de Ohm $R=V/I$. Em geral, este método exige que as amostras sejam suficientemente longas para que a corrente seja homogênea na região central, onde é medida a voltagem.

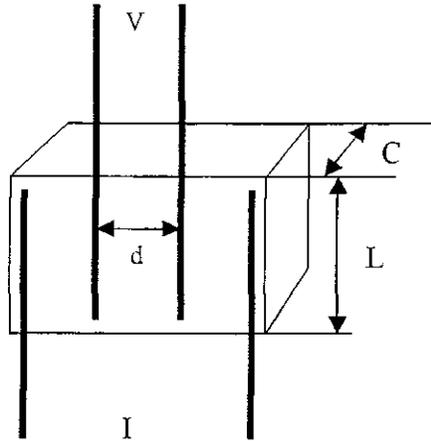


Figura 4.4 Configuração convencional dos contatos para o cálculo da resistividade em uma amostra poliedral [6].

Considerando que o interesse deste trabalho está centrado no estudo das mudanças nas propriedades físicas induzidas pela pressão nos compostos $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt e YbFe_2Ge_2 , os resultados de resistência elétrica em função da temperatura $R(T)$ normalizados pelo valor à temperatura ambiente TA ($R(T)/R_{300K}$), serão apresentados nos capítulos seguintes, em vez da resistividade $\rho(T)$. Deste modo, a influência das dimensões das amostras é eliminada e também é possível correlacionar as medidas de resistência elétrica feita nas diferentes células de pressão.

4.2.2 Células de pressão utilizadas nas medidas de resistência AC.

Na tecnologia de altas pressões existem diferentes possibilidades para alcançar condições de pressão estática e de valor muito alto. Partindo da definição de pressão $P = F/A$, onde F é a força aplicada sob uma superfície de área A , deduz-se que para alcançar altas pressões, é necessário uma área suficientemente pequena, ou uma força bastante alta. No primeiro caso, usam-se pequenas quantidades de amostra (μg) em pequenas dimensões (0.1–0.3 mm de diâmetro para amostras em uma DAC). No segundo caso, os experimentos requerem que as células de pressão sejam construídas oferecendo uma boa resistência mecânica, de forma a evitar todo tipo de deformação plástica induzida pela aplicação de forças intensas. Estes dois argumentos são levados em conta na construção de uma célula

de pressão mas, muitas vezes, o volume deve ser dimensionado de acordo com o tipo de experimento.

As medidas em baixas temperaturas exigem que o tamanho das células de pressão seja adequado ao espaço disponível dentro dos criostatos de helio. Isto limita, por exemplo, as medidas magnéticas e de calor específico sob altas pressões e ultra baixa temperatura [7, 8]. De fato, sabe-se que as células de pressão são maiores em medidas magnéticas e de calor específico que em medidas de transporte. Isto tem popularizado a realização de medidas de resistividade elétrica AC em altas pressões e ultrabaixas temperaturas.

Existem dois outros fatores importantes na construção de uma célula de pressão: o primeiro diz respeito à distribuição da pressão sobre a amostra, se a pressão é distribuída em condições hidrostáticas ou quase-hidrostática. O segundo atende ao grau de liberdade na aplicação da pressão sobre amostra, podendo ser isotrópica ou uniaxial (células uniaxiais são freqüentemente utilizadas no estudo de monocristais).

As células de pressão são consideradas hidrostáticas quando são construídas para transmitir a pressão homogeneamente na amostra [5]. A condição hidrostática ideal garante uma distribuição uniforme da pressão sobre a amostra, sendo desprezível qualquer tensão mecânica interna que provoque uma anisotropia na pressão.

No presente trabalho, o limite máximo de pressão foi de 20 GPa, alcançado com uma célula de pressão de diamante, diamant anvil cell (DAC). Como será visto mais adiante, as melhores condições de pressão hidrostática foram obtidas com pressões $P < 4$ GPa. Acima de 4 GPa, a influência do gradiente de pressões deve ser levada em conta na análise dos resultados. Este gradiente de pressão será considerado como o erro na precisão do valor da pressão, sendo que o limite máximo deste gradiente, para garantir as condições hidrostáticas, não pode ultrapassar os 10 % da pressão aplicada.

Uma breve descrição das células de pressão usadas no presente trabalho será feita e para uma apresentação didática, as células de pressão serão descritas atendendo ao limite do valor máximo da pressão que alcançam. Comentários sobre outros tipos de células de pressão podem ser encontrados na tese de M. T. Orlando [5], realizada no nosso grupo.

4.2.2.1 Célula de pressão líquida ($P < 1.2$ GPa)

A célula de pressão líquida (em inglês *liquid cell*), usada em nossas medidas de resistência elétrica AC, é feita de uma liga de CuBe não magnética. Em geral, esta célula consiste em um orifício cilíndrico num copo de CuBe onde, em uma das extremidades encontra-se a amostra, e, na outra, um pistão com vedação, com um líquido entre eles atuando como meio de transmissão da pressão hidrostática. Estas células de pressão são comumente usadas em experimentos realizados em condições hidrostáticas para pressões $P < 3$ GPa [9-11]. Uma representação esquemática da célula de pressão líquida é mostrada na figura 4.5.

Na figura 4.5 observam-se duas amostras instaladas nas faces opostas de um suporte retangular de teflon. Em uma das faces deste suporte de teflon (1) é colocada a amostra ($\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$); e no lado oposto uma fita de Pb para a calibração da pressão aplicada. Ambas as amostras são isoladas eletricamente com verniz e conectadas em série usando fios de Cu. Os contactos das amostras são feitos usando tinta de prata, que garante uma boa condutividade elétrica entre as amostras e os fios de Cu. O suporte de teflon é fixado com verniz a um tronco cônico de CuBe (2), que contém um orifício por onde passam os fios de Cu provenientes das amostras. Um copo de teflon (3) com um líquido no seu interior, é acoplado ao tronco cônico de CuBe pela parte superior, como mostra a fig.4.5. O líquido usado consiste em uma mistura de n-pentano com isoamil-álcool na proporção de 40 :60. A utilização do copo de teflon tem como finalidade a transferência da pressão pelo meio líquido, tornando a vedação mais eficiente.

Denominaremos as partes representadas pelos números (1), (2) e (3) na fig. 4.5 do corpo interno da célula de pressão líquida. Este corpo interno é inserido através da parte inferior do orifício cilíndrico (4), no interior da célula de CuBe, selando a parte inferior do orifício com um parafuso (5). Pela parte superior do orifício são colocadas as peças que possibilitam a aplicação da pressão externa, que consistem em um pistão interno de WC (6), um disco de CuBe, um parafuso superior (7), e outro pistão externo de WC (8). Com a ajuda de uma prensa hidráulica (máxima tonelagem ~ 10 Ton) é aplicada uma pressão sobre o pistão externo, que será transmitida para o pistão interno.

O parafuso superior é enroscado com a finalidade de segurar a pressão. Inicialmente, o copo de teflon sofre uma deformação, passando esta informação para o líquido. Como o teflon se deforma elasticamente nessa faixa de pressão (< 1.2 GPa), o processo pode ser reversível. Na extremidade inferior onde o suporte das amostras foi instalado, o teflon sofre uma expansão que aumenta o poder de vedação. No entanto, quando o teflon sai de seu regime elástico, a deformação plástica provoca o rompimento deste, causando um vazamento. Cabe destacar que a utilização de argolas nos extremos do copo de teflon melhora a vedação [6].

A montagem deste tipo de célula foi inicialmente utilizada no trabalho de Market et al. em medidas de resistividade elétrica sob pressão [10]. Incluindo bobinas magnéticas no interior da célula é possível a realização de medidas de susceptibilidade sob pressão, como foi mostrado por J. D. Thompson [11].

Com o fim de monitorar a pressão, foi instalada uma resistência de manganina ($\sim 30 \Omega$) enrolada no porta-amostra (ver fig. 4.5). A manganina apresenta uma relação entre a deformação sofrida e a pressão aplicada, observada pela variação da resistência elétrica do material. A variação da resistência elétrica deste material com a temperatura é pequena, tornando a manganina um sensor adequado para detectar variações de pressões com a temperatura. Para monitorar a pressão através da variação da resistência da manganina é utilizada a seguinte expressão [11]:

$$R_{mgn}(P) = R_{mgn}(0) + 2.5 \times 10^{-3} \times P \times R_{mgn}(0) \quad (4.1)$$

onde $R_{mgn}(0)$ e $R_{mgn}(P)$ são as resistências à pressão ambiente e à pressão aplicada P , respectivamente.

A expressão acima, no entanto, tem um limite de validade (< 3 GPa) [12]. Isto tem sido confirmado por experimentos, quando comparamos os valores da pressão obtida através da manganina ao da pressão obtida, com maior precisão, através da transição supercondutora do chumbo T_C (Pb). A dependência de T_C (Pb) com a pressão aplicada pode ser determinada com uma precisão de 3% [12, 13]. Nestes experimentos, a transição do T_C (Pb) será adotada como critério para a determinação da pressão aplicada, sendo que a manganina é utilizada para uma primeira estimativa durante a aplicação da pressão.

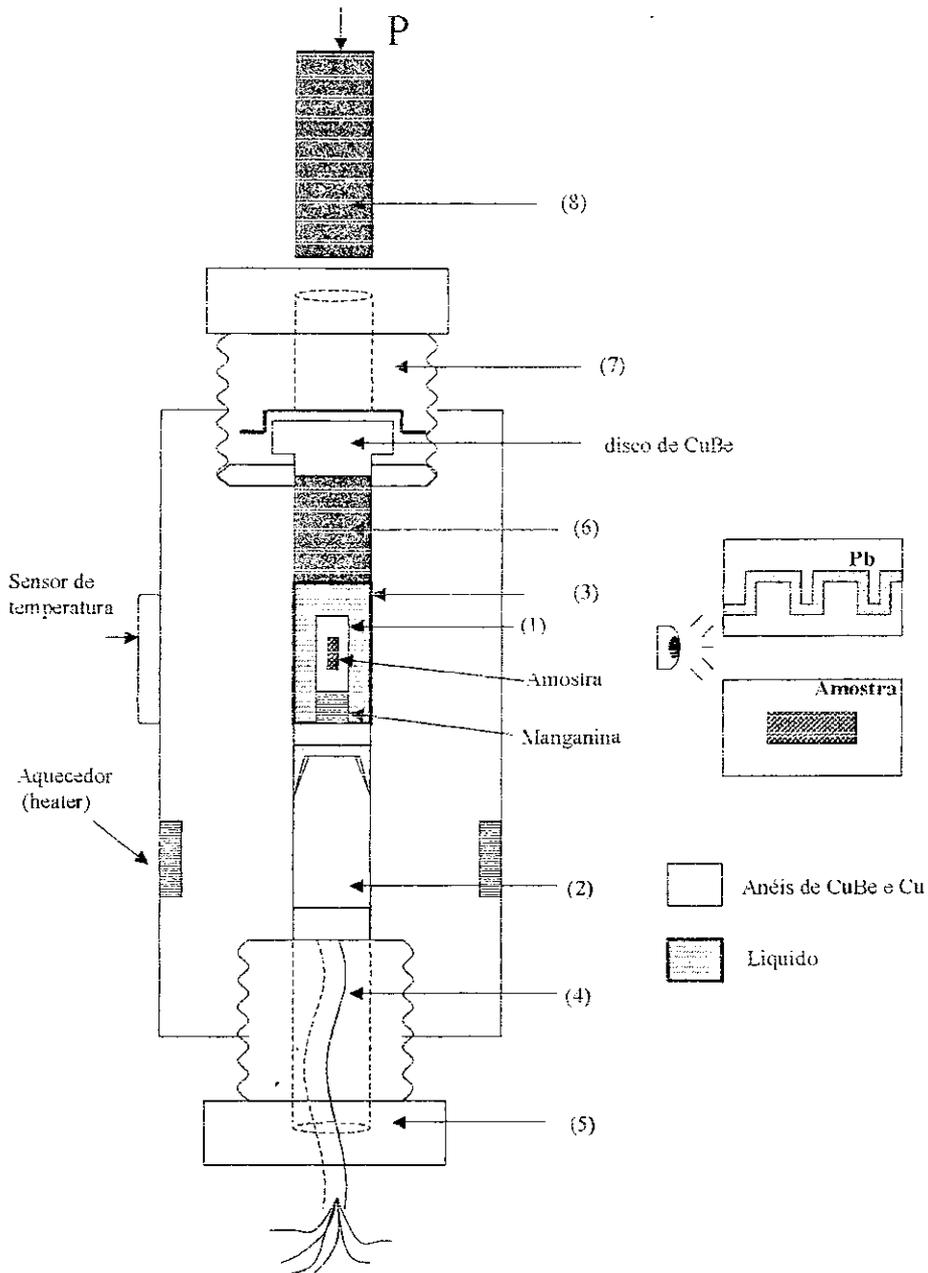


Figura 4.5 Representação esquemática da célula de pressão líquida utilizada no presente trabalho ($< 1.2 \text{ GPa}$): (1) Porta amostra, (2) Base cônica, (3) Copo de Teflon, (4) Orifício cilíndrico, (5) Parafuso inferior, (6) Pistão interno, (7) Parafuso superior, (8) Pistão externo.

4.2.2.2 Célula de pressão de Bridgman ($P \leq 14 \text{ GPa}$)

A célula de Bridgman pode ser descrita como uma câmara cilíndrica feita de uma liga de CuBe, não magnética, com um orifício cilíndrico concêntrico, onde são colocados dois *anvils* truncados, com as faces menores opostas, pressionando entre eles um material e um pó sólido (meio hidrostático), confinados dentro de um anel circular. A montagem deste tipo de célula de pressão foi proposta em 1941, pela primeira vez, por P. W. Bridgman.[12], para estudar a resistência mecânica dos materiais sob altas pressões (< 15 GPa). A célula de Bridgman pode ser condicionada para realizar experimentos de resistividade elétrica AC sob altas pressões e baixas temperaturas.

A figura 4.6 mostra uma representação esquemática da célula de Bridgman utilizada em nossas medidas de resistência elétrica AC, que foi construída no Insitut fuer Technische Physik da Technische Universität Braunschweig, na Alemanha. O corpo cilíndrico e as peças acessórias da célula de Bridgman são feitas de CuBe e os *anvils* cônicos truncados são feitos de WC. A preparação da célula de Bridgman, para medidas de resistividade elétrica AC, apresenta maior complexidade na montagem das amostras sob os *anvils*. A célula de Bridgman foi utilizada em dois experimentos diferentes para amostras de $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ ($p < 5$ GPa) e CePt ($p < 15$ GPa). Uma amostra de chumbo (Pb) em forma de fita foi instalada para monitorar a pressão aplicada, segundo a dependência da transição supercondutora do Pb $T_c(\text{Pb})$ com a pressão [13].

A instalação das amostras sob os *anvils* requer um cuidado especial na preparação do isolamento elétrico, do meio de transmissão quase hidrostático, e dos contatos elétricos das amostras. O primeiro passo é isolar eletricamente os dois *anvils*, superior e inferior (ver fig. 4.7). Para tal efeito, uma mistura de epóxi (araldite), com um pó fino de diamante é usada, recobrando a superfície dos dois *anvils*. Além de isolar eletricamente, isto melhora o atrito da superfície dos *anvils*.

A seguir, um anel de pirofilita (*em inglês pyrofilite*) com diâmetro ligeiramente menor que o diâmetro da base do anvil, é colocado sob a superfície do *anvil* inferior. A espessura deste anel de pirofilita é tal que, consegue confinar o meio de transmissão de pressão, assim como as amostras. O anel de porfilita também ajuda a compensar as tensões mecânicas radiais que se transmitem através do meio hidrostático, quando altas pressões são aplicadas sobre a amostra [12, 13]. Quando a pressão aplicada ultrapassa o atrito

mecânico do anel de pirofilita, tanto a amostra como os anvils podem sofrer danos irreversíveis, em muitos casos causando a fratura dos mesmos.

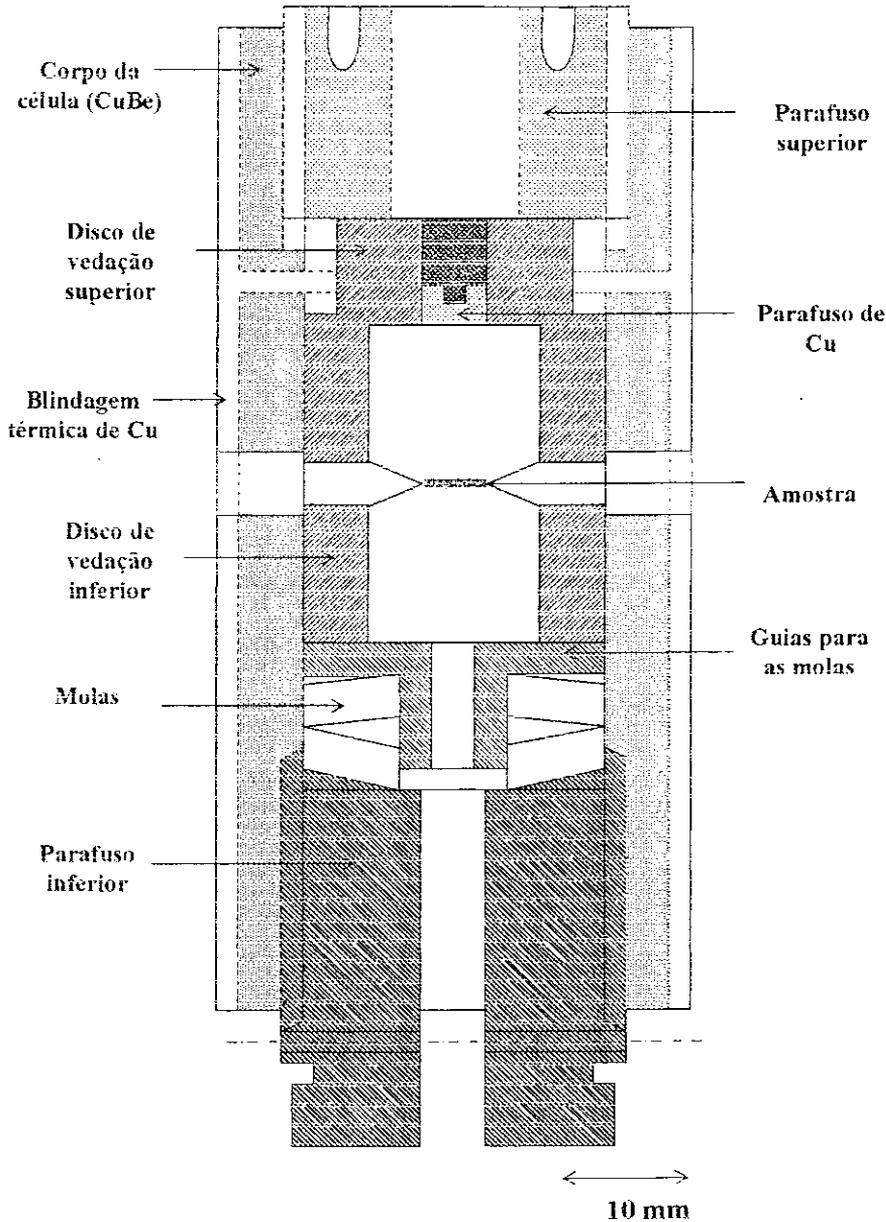


Figura 4.6 Representação esquemática da célula de Bridgman usada nas medidas de resistência elétrica AC ($\leq 14 \text{ GPa}$)

O meio de transmissão de pressão nas células de Bridgman é uma substância sólida especial, que garante as condições quase hidrostáticas. Neste caso, foi usado como meio de

pressão, dois discos de pedra-sabão branca (pó de pedra-sabão branca devidamente compactada, pode também ser usada). O primeiro disco é colocada na base inferior do *anvil*, dentro da superfície interna do anel de pirofilita, como mostra a figura 4.7 (a). A seguir, são colocadas a amostra a ser estudada e a fita de Pb que servirá como manômetro.

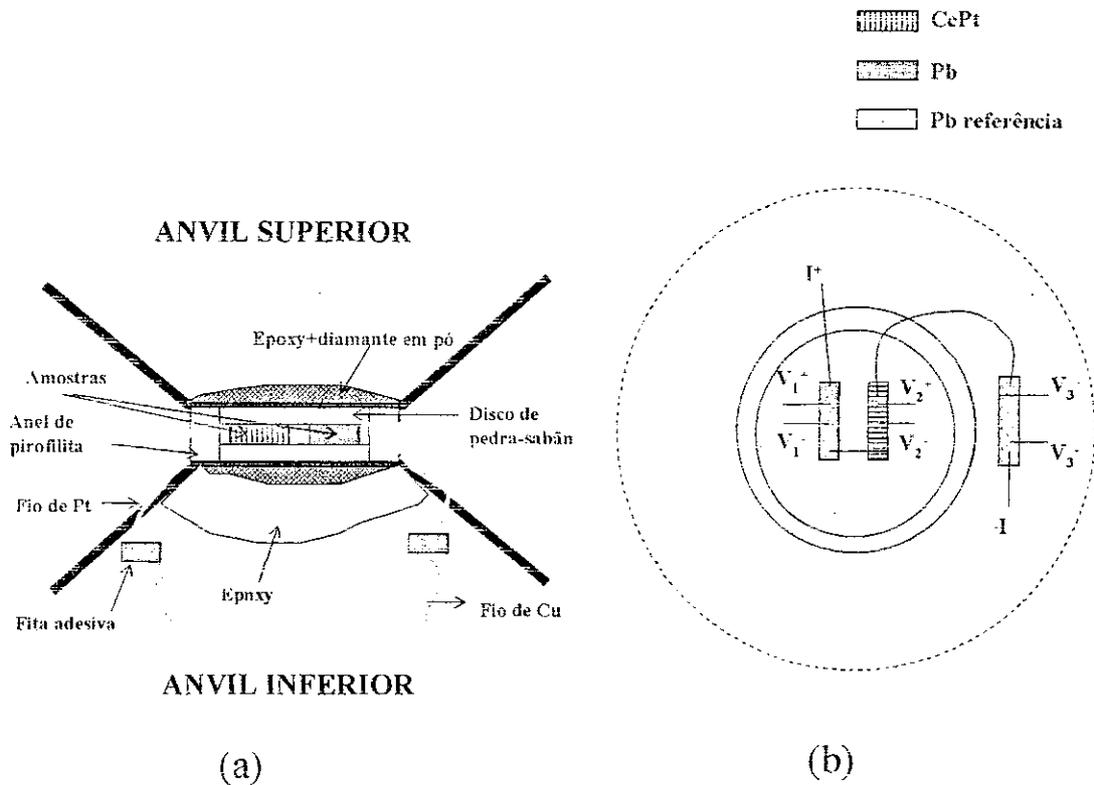


Figura 4.7 Representação esquemática da montagem das amostras no anvil dentro de uma célula de Bridgman (a) Corte lateral, (b) Corte transversal.

As amostras são posicionadas sobre o disco de pedra-sabão no *anvil* inferior, e suas dimensões devem se encaixar dentro do volume disponível dentro do anel de pirofilita. Fios de platina (Pt) (50 μm de espessura) são usados como contactos elétricos sobre as amostras, sendo fixados na superfície lateral do anvil inferior com fitas adesivas. Na célula de Bridgman, os contactos dos fios com as amostras são feitos quando se aplica pressão. A amostra a ser estudada e o Pb, são conectados em série, podendo incluir ainda em série uma segunda fita de Pb, fora da área circular da pirofilita, a qual pode ser usada como referência da temperatura (ver fig. 4.5 (b)). Os fios de Pt devem ser posicionados sobre as amostras, evitando que haja contacto entre eles, causando curto circuito. Pequenas aberturas

concêntricas são feitas no anel de pirofilita, para dar saída aos fios de Pt até a parte lateral do anvil inferior, onde serão soldados aos fios de cobre (Cu).

Depois da instalação das amostras e de seus contactos elétricos, elas são cobertas pelo outro disco de pedra-sabão branca e a base do *anvil* superior. Os dois anvils, previamente alinhados, são montados no interior do orifício cilíndrico do corpo da célula de Bridgman, como é mostrado na fig. 4.6. Finalmente, com uma prensa hidráulica aplica-se pressão sobre um pistão externo, pressão que será retransmitida para os *anvils*.

4.2.2.3 Célula de Compressão com Diamantes (DAC ~ *diamond anvil cell*).

A célula de pressão com diamantes (DAC) tem o mesmo princípio físico que a célula de Bridgman, discutida no 4.2.2.2. A figura 4.8 mostra uma representação esquemática da célula de compressão com diamante (DAC) utilizada nas medidas de resistência elétrica AC. Na DAC há dois diamantes em forma cônica truncada, fazendo pressão sobre uma amostra em pó, confinada dentro de uma área do porta-amostra, conhecido como *gasket*. O meio de transmissão da pressão quase hidrostática usada neste tipo de célula é um polímero amorfo, chamado de epóxi. O corpo da célula de pressão, feito de liga de CuBe (não magnético), consiste de dois cilindros, onde são posicionados os diamantes, para posteriormente serem comprimidos entre si por parafusos, até alcançar uma determinada pressão. As células de compressão com diamantes são freqüentemente utilizadas em experimentos em condições físicas extremas, podendo atingir pressões de até 50 GPa em medidas de resistividade elétrica AC [15].

A construção original desta DAC foi feita pelo grupo de altas pressões do II Physikalisches Institut – Universität Zu Köln [14]. O corpo da DAC possui um diâmetro ~ 23 mm e uma altura ~13 mm, tendo um volume que facilita a rápida termalização da célula dentro do criostato. Em princípio, a construção desta DAC foi desenhada para alcançar pressões até 30 GPa. No entanto, devido aos cuidados com os diamantes, a máxima pressão atingida em nossos experimentos de resistência elétrica AC, no composto YbFe_2Ge_2 , foi 19 GPa.

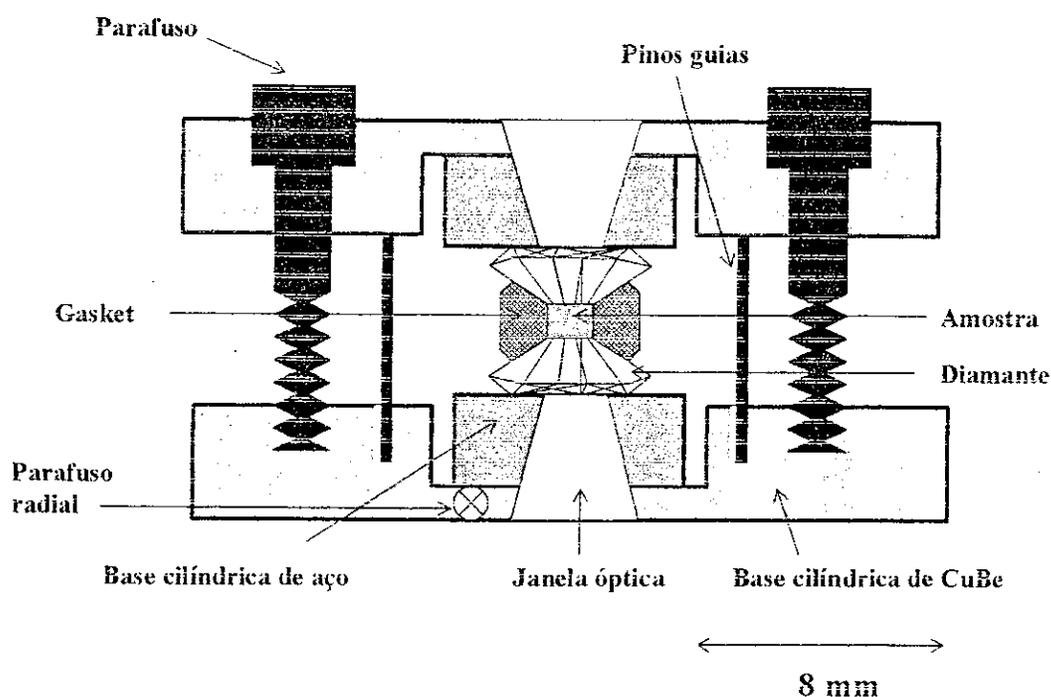


Figura 4.8. Representação esquemática de uma célula de compressão com diamantes (DAC) utilizada nas medidas de resistência elétrica AC ($p < 30$ GPa).

Os procedimentos necessários para a montagem de nossa DAC podem ser descritos em quatro etapas: 1) O alinhamento entre as faces menores dos diamantes, localizadas nos cilindros de CuBe; 2) paralelismo entre as faces menores dos diamantes; 3) a preparação do *gasket* e 4) preparação dos contactos elétricos da amostra.

Dois diamantes com lapidação tipo brilhante, especiais com 16 lados e com diâmetro da superfície menor ≈ 0.8 mm, foram utilizados na montagem da DAC. À medida que a superfície dos diamantes se torna menor, a força aplicada para alcançar as altas pressões diminui.

A figura 4.9 (a) apresenta um esquema dos passos seguidos para alinhar os diamantes. Inicialmente, cada diamante é colado sobre uma base cilíndrica de aço, cujo diâmetro é menor que o cilindro de CuBe ($d_{\text{CuBe}}/d_{\text{aço}} \sim 3:1$). Um pequeno orifício é feito em cada uma destas bases, servindo como janela óptica para observar os diamantes através do microscópio. Os cilindros de CuBe, superior e inferior, podem ser atravessados transversalmente até por 6 parafusos, sendo, inicialmente, usados 3 parafusos para a aplicação de pressões menores e 6 parafusos quando é necessário pressões maiores. O

cilindro inferior de CuBe possui, além dos parafusos transversais, três parafusos radiais. O papel destes parafusos radiais, no cilindro inferior de aço, é controlar o alinhamento do diamante da base inferior em relação ao diamante da base superior. Apenas o cilindro superior de aço deve estar completamente fixo ao cilindro superior de CuBe. A figura 4.9 (a) mostra a situação onde os diamantes ficam completamente alinhados entre si. Uma vez, alcançado o alinhamento, o passo seguinte é a busca do paralelismo entre os as faces dos diamantes.

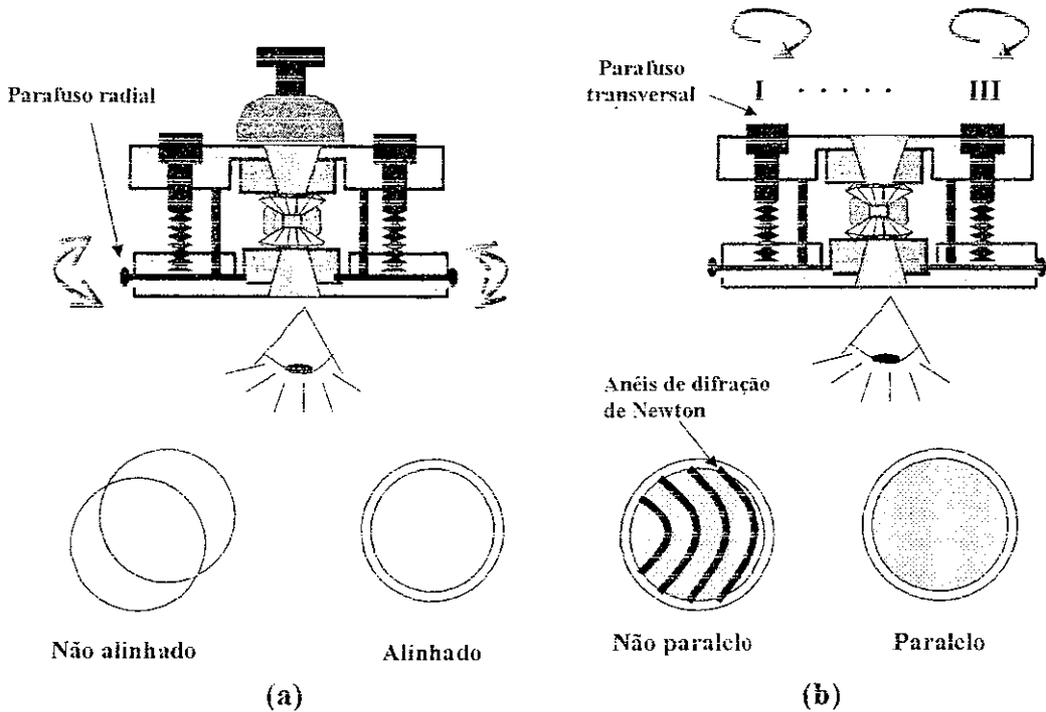


Figura 4.9: (a) Alinhamento entre os diamantes (b) Paralelismo entre os diamantes.

A figura 4.9 (b) mostra uma representação esquemática da obtenção do paralelismo entre as faces dos diamantes. Os diamantes são pressionados entre si, muito ligeiramente, usando três parafusos. Quando o paralelismo entre os diamantes não existe, anéis de difração de Newton podem ser observados através do microscópio. O paralelismo é conseguido ajustando os parafusos transversais, até que os anéis de difração de Newton desapareçam. A condição de paralelismo é mantida pela distância constante entre os extremos dos cilindros, nas posições onde os parafusos se encontram, e deve ser mantida durante todo o experimento, caso contrário, pode haver fratura dos diamantes.

A próxima etapa é a preparação do *gasket*. Uma pequena lâmina de Inconel ou de Ta₉₀W₁₀ é usada como *gasket* (espessura 200 µm), podendo também ser usado outro tipo de material, como Thyroder ou CuBe [14]. Um tratamento térmico na lâmina de Inconel é feito em um forno convencional, a uma temperatura de 800 °C durante 3 hs, para aumentar a dureza do material. A seguir, a área da amostra é formatada. Para isto, o *gasket* é introduzido entre os diamantes, que atuam como folha cortante quando são pressionados, chegando a produzir impressão, como mostra a fig.4.10 (a), com profundidade ~1/4 da espessura original do *gasket*. A seguir, é feito um orifício na impressão deixada pelos diamantes, usando uma broca fina (*drill* de diâmetro 200 µm). O isolamento elétrico é feito colocando-se dois pedaços de folhas de Kapton, de espessura ~12.5 µm, aderidas em ambos os lados do *gasket*. A cola usada consiste em uma mistura de epoxy com um pó de Al₂O₃, que além de servir como adesivo, serve como meio de transmissão hidrostática da pressão. Para endurecer a mistura, o *gasket* dentro da célula de pressão DAC é aquecido no forno, a uma temperatura de 120°C, durante 20 min. Finalmente, usa-se uma broca mais fina (um *drill* de 100 µm) para fazer um orifício menor na região central, onde a amostra e fragmentos de rubi serão depositados, tal como podemos observar na figura.4.10 (b1).

Após o isolamento elétrico do *gasket*, o último passo antes de fechar completamente a célula, envolve a colocação dos contactos elétricos. Cinco fios de ouro (Au) são utilizados como contactos elétricos, e colocados, concêntricamente, na base de um dos diamantes, sem se tocar entre si para evitar curto circuito. Os fios são presos na face lateral do diamante com pequenas fitas adesivas e na base dos discos de CuBe, com epoxy, como mostra a figura 4.10 (b2). Posteriormente, estes fios de Au são conectados aos fios de Cu, usando tinta de prata convencional.

Fragmentos de rubi são colocados na amostra em pó para monitorar a pressão e o gradiente de pressão. Isto é feito através do monitoramento do deslocamento da linha de fluorescência R₁ do rubi com a pressão [16]. Foi usado um espectrômetro Raman Jobin Yvon HR320 e um Laser de Hélio-Neônio, com potência máxima de 30 mW. Maiores detalhes sobre a montagem deste experimento podem ser encontrados na ref. [14]. Para determinar o gradiente de pressão a altas pressões, diversos espectros Raman são coletados dos diferentes fragmentos de rubi espalhados na amostra. As análises Raman destes

espectros, através da linha de fluorescência R_1 para os fragmentos de Rubi localizados no centro e em posições extremas da amostra, determinam o gradiente de pressão máximo de 5 GPa em $p = 19$ GPa.

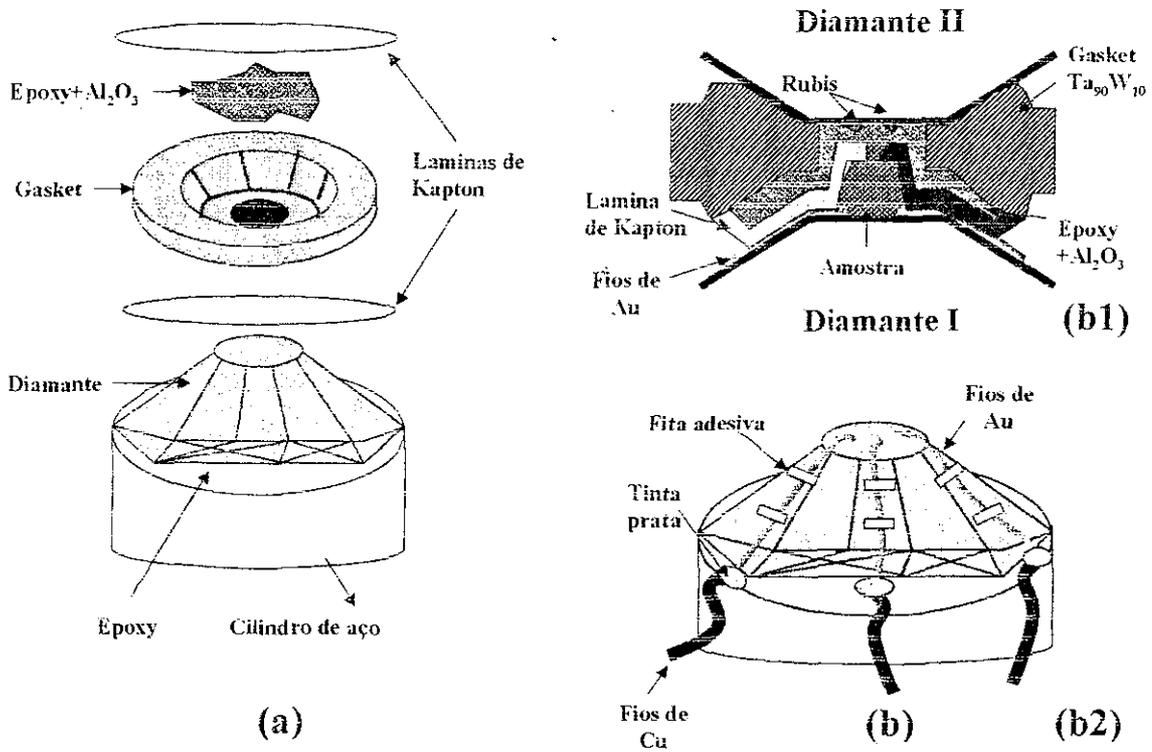


Figura 4.10: (a) Representação esquemática na preparação do isolamento elétrico do gasket e do meio de transmissão hidrostático em uma célula de compressão com diamantes (DAC). (b) Vista transversal da DAC mostrando: (b1) a DAC completamente preparada para medir resistividade elétrica AC e, (b2) Os contatos elétricos.

4.2.3 Sistema de diluição ^3He - ^4He (dilute)

O estudo dos fenômenos críticos quânticos que ocorrem nos férmions pesados com Ce e Yb pode ser feito com base em medidas de resistência elétrica AC em função da temperatura, perto do zero absoluto. Para isto, foi utilizado um sistema de diluição da mistura de gases isotópicos ^3He - ^4He (dilute), que é um método de refrigeração para alcançar temperaturas da ordem dos 40 mK. Antes de explicar o funcionamento da diluidora, faremos uma breve introdução do princípio físico que leva este sistema a alcançar as ultrabaixas temperaturas ($T < 1\text{K}$).

Pode-se explicar a física do processo de diluição a partir do diagrama de fases da mistura líquida ^3He - ^4He com base na pressão de vapor de saturação, mostrado na figura 4.11. Este diagrama de fases depende da concentração do isótopo ^3He (x) em função da temperatura (T), sendo $x = x_3 = n_3/(n_3+n_4)$, onde n_3 (n_4) é o número de átomos ou moléculas do ^3He (^4He).

Em primeiro lugar, considera-se os líquidos dos isótopos ^3He e ^4He , nas suas fases puras. Na fig. 4.11 observa-se que a mistura na fase pura de ^4He se torna um líquido superfluido em $T \sim 2.177\text{ K}$, onde o sistema de átomos (ou moléculas) de ^4He , dentro da teoria da mecânica quântica-estatística, pode ser considerado como um líquido de Bose. Do lado direito extremo do diagrama, na fase pura de ^3He , não se observa uma transição de fase para um líquido superfluido, pelo menos até temperaturas da ordem de dezenas de milikelvins. No entanto, estudos no intervalo $T < 10\text{ mK}$, mostram que o ^3He se torna um líquido superfluido próximo de 2 mK , na pressão de vapor de saturação. Para simplificar a explicação deste diagrama, levando-se em conta que nosso sistema de diluição trabalha a $T > 40\text{ mK}$, não será considerada a transição de fase do ^3He para líquido superfluido. Neste cenário, o líquido ^3He , na fase pura, é considerado como um líquido de Fermi [17].

Saindo das fases puras, a temperatura de transição para a fase superfluida do líquido ^4He diminui quando o líquido de Bose ^4He é diluído no líquido de Fermi ^3He . Eventualmente, a fase superfluida de ^4He deixa de existir para concentrações maiores que 67% de ^3He . Nesta concentração, e à temperatura de $\sim 0.87\text{ K}$, se encontra a linha λ de separação de fases; abaixo desta linha, os dois isótopos se tornam miscíveis para certos limites de concentrações e de temperatura. A região sombreada no diagrama de fases da fig.

4.11 mostra o intervalo de concentrações e temperaturas não acessíveis para as misturas de Hélio. Quando a mistura de Hélio (com $x > 6.5\%$) é resfriada a temperaturas menores que 0.87 K, o líquido se separa em duas fases, uma rica em ^4He e a outra rica em ^3He . Devido à baixa densidade do ^3He , o líquido rico em ^3He flutuará sobre o líquido rico em ^4He . Se a temperatura descer para perto do zero absoluto, a fase rica em ^3He se tornará uma fase pura de ^3He . A grande surpresa ocorre no lado rico em ^4He : a concentração do isótopo diluído ^3He não vai a zero quando T se aproxima de zero, porém alcança uma concentração constante de 6.5% de ^3He em ^4He , na pressão de vapor de saturação, ainda em $T \sim 0\text{K}$. Esta solubilidade finita de ^3He em ^4He é o princípio físico básico da tecnologia de refrigeração por diluição da mistura $^3\text{He} - ^4\text{He}$.

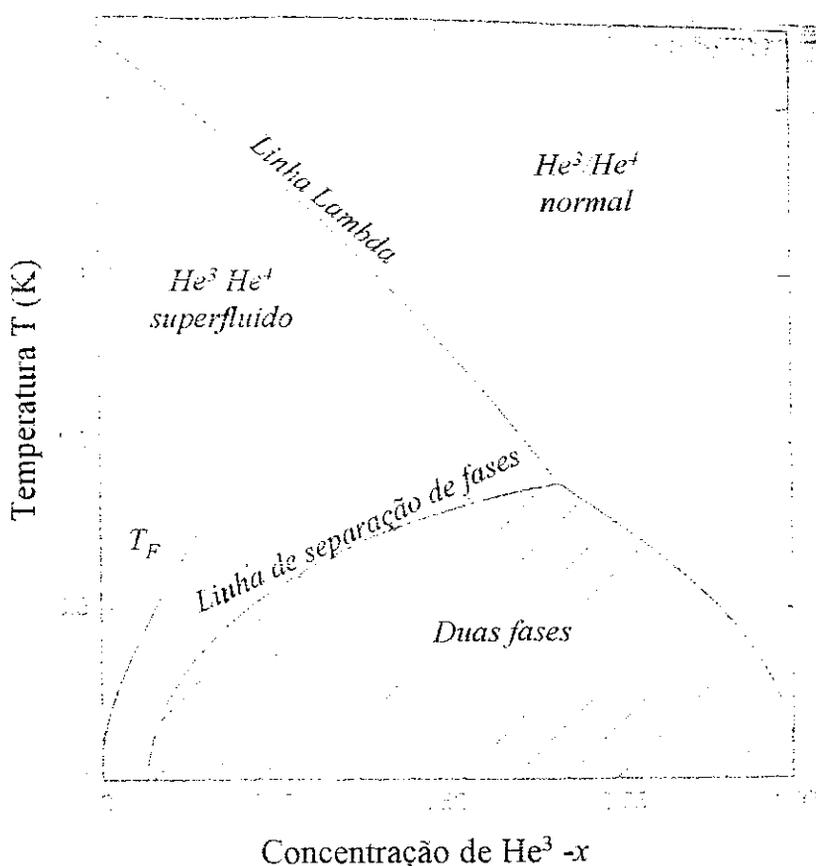


Figura 4.11. Diagrama de fase da mistura líquida $^3\text{He}-^4\text{He}$ à pressão de vapor de saturação. O diagrama mostra a linha lambda para a transição superflúida de ^4He , a linha de separação de fases da mistura, abaixo da qual se separam em uma fase rica em ^3He e em uma fase rica em ^4He , e a linha da temperatura de Fermi (T_F) correspondente à componente ^3He [17].

A diminuição da temperatura na ordem dos milikelvins é alcançada quando a fase líquida de ^3He se dilui com solubilidade finita na fase pura de ^4He . Previamente, deve ocorrer a separação de fases da mistura líquida $^3\text{He} - ^4\text{He}$; isto de fato acontece quando a mistura é resfriada a temperaturas menores que 1 K. É necessário proporcionar ao sistema um ciclo de resfriamento otimizado, que lhe permita alcançar a separação de fases e a posterior diluição das mesmas.

A figura 4.12 mostra um esquema de um sistema ideal de refrigeração por diluição da mistura $^3\text{He} - ^4\text{He}$. Esta figura apresenta as componentes principais de um refrigerador de diluição, e o diagrama de fluxo para a mistura. Inicialmente, o gás de ^3He , que provém da saída do compressor à temperatura ambiente (TA), é pré-resfriado por um banho líquido de ^4He a 4.2 K. A seguir, este gás é condensado ao circular por um segundo banho de ^4He na temperatura ~ 1.5 K (esta temperatura pode ser obtida bombeando continuamente o refrigerador ^4He). A área superficial da transferência de calor é feita de um metal tipo Cu, Ag ou Pt, previamente sinterizado, permitindo ter uma grande área de contato para absorver o calor que se dissipa na condensação do ^3He [17]. Este evaporador de ^4He é também utilizado como um dissipador de calor para os tubos e contatos ligados às partes mais frias do refrigerador, as quais devem estar termicamente ancoradas. Abaixo do refrigerador de ^4He , encontra-se a impedância principal que fornece a pressão necessária para que o gás de ^3He seja efetivamente condensado em 1.5K, nesta etapa do processo temos o ^3He na fase líquida

A etapa seguinte do processo é conseguir a separação das fases. O líquido de ^3He é forçado a circular através de um trocador de calor, o mesmo que está em contato térmico com um destilador (*em inglês, still*) a uma temperatura próxima de 0.7K. Abaixo do destilador, temos a impedância secundária que evita a evaporação do ^3He . Depois de passar pela impedância secundária, o líquido de ^3He circula através de alguns trocadores de calor para realizar um pré-resfriamento a temperaturas suficientemente baixas até produzir dentro da câmara de mistura (*em inglês, mixing chamber*) a fase diluída rica em ^3He e, a cima dela, a outra fase concentrada.

Como se observa na figura 4.12, um tubo de maior largura sai da parte inferior da câmara de mistura, por onde é recuperada a fase diluída de ^3He e logo circula através de um

trocador de calor para pré-resfriar o ^3He que chega. Depois que o líquido diluído atravessa o trocador de calor, ele entra no destilador, onde teremos uma concentração do líquido ^3He $< 1\%$. O vapor acima da fase líquida diluída, dentro do destilador, tem uma concentração típica de 90% de ^3He devido à alta pressão de vapor do ^3He na temperatura em que se encontra o destilador. Se o destilador é bombeado em seguida e realimentamos a linha de condensação com ^3He teremos um circuito fechado, onde o ^3He é circulado para a linha de condensação novamente. Assim, se repetirá todo aquele processo explicado acima, de liquificação, pré-resfriamento, entrando na fase concentrada na câmara de mistura. Isto atravessará a fronteira de fase para produzir a fase diluída e portanto o resfriamento do sistema e, eventualmente, será puxado para o destilador por pressão osmótica, onde será evaporado. A circulação do ^3He é mantida por um sistema de bombeamento à TA.

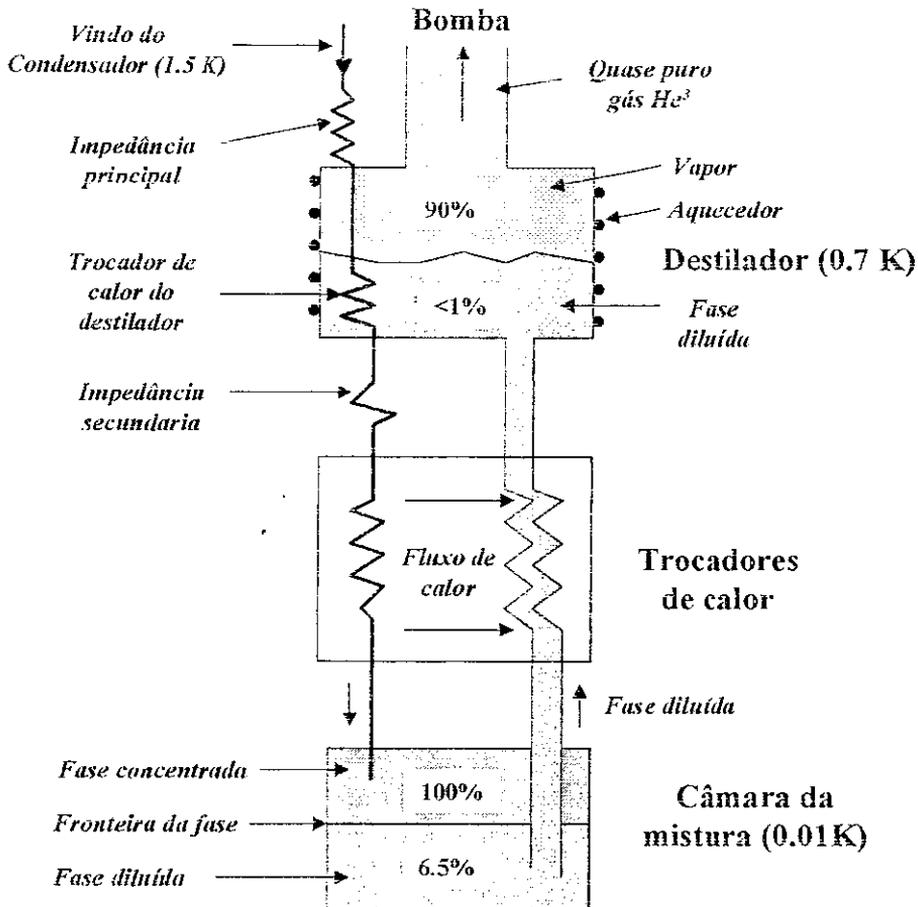


Figura 4.12. Representação esquemática de um refrigerador de mistura ^3He - ^4He [17].

Cada componente do refrigerador de diluição tem que ser cuidadosamente elaborado para otimizar seu funcionamento em baixas temperaturas, sendo mais crítica a manipulação dos trocadores de calor. Maiores detalhes sobre as propriedades das componentes do refrigerador de diluição são encontrados na referência [17]. Uma foto do sistema de resfriamento, usado em nossos experimentos, é mostrado na figura 4.13.

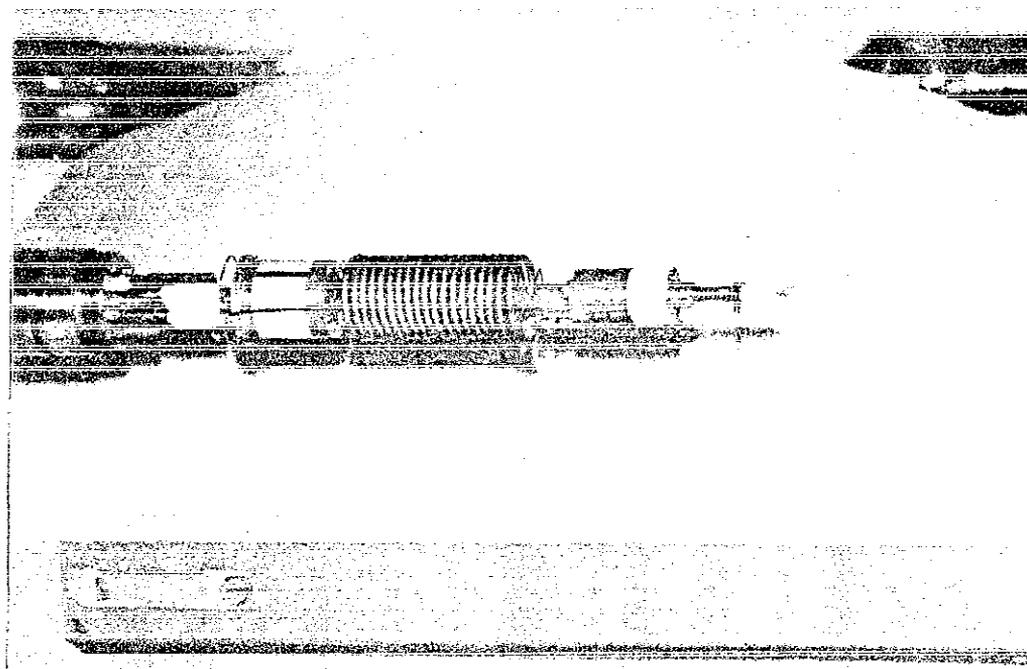


Figura 4.13 Foto do refrigerador, de mistura ^3He - ^4He (diluete) utilizado em nossas medidas de resistência elétrica AC, mostrando as componentes principais.

A figura 4.14 mostra o sistema de resfriamento completo, ou seja, o sistema de resfriamento propriamente dito e estação de bombamento, onde encontramos o reservatório da mistura He^3 - ^4He , as linhas de circulação e as bombas. Em nosso sistema diluete, encontramos dentro do reservatório uma mistura de gás ^3He - ^4He na proporção de 25 % de ^3He e 75% de ^4He , seguindo as recomendações dos fabricantes deste sistema do Instituto de Baixas temperaturas de Grenoble (França). Esta concentração deve ser mantida para alcançar as ultrabaixas temperaturas, evitaremos qualquer pequeno vazamento nas linhas de circulação ou nas bombas.

Para otimizar o funcionamento de nosso refrigerador diluete, seguimos em cada experimento os seguintes passos:

1. Instala-se o porta-amostra, ou célula de pressão, de maneira que em contato térmico com a câmara de mistura, perto da qual se instala um aquecedor para variar a temperatura.
2. Todo o sistema é fechado pois um “copo”, selado com uma cola especial de silicone (para resistir a ultra-baixa temperatura e o alto vácuo), e preenchido com gás de troca ^4He .
3. O *insert* é, então, mergulhado, lentamente, dentro do banho de He líquido, para pré-resfriamento.
4. A 4.2 K, bombea-se o gás de troca para fora até atingir o melhor vácuo possível, dentro do inserte.
5. Tem início o processo de injeção da mistura do reservatório (que está a temperatura ambiente) para a câmara de mistura do diluete (a qual está a 4.2 K). O compressor injeta a mistura através do *trap* resfriado por N_2 líquido, onde as impurezas ficam condensadas.
6. O processo é feito lentamente, circulando através das linhas de circulação permitidas para a mistura (linhas de injeção e aspiração), como se observa na fig. 4.12. O primeiro fato a se observar é a condensação do gás ^3He ($T \sim 1.2\text{K}$), depois ocorre a separação de fases em torno de 0.8K, para logo depois iniciar-se a circulação da fase diluída, quando, então, a temperatura começa a descer para a região dos milikelvins. Este processo leva aproximadamente, 4 horas.

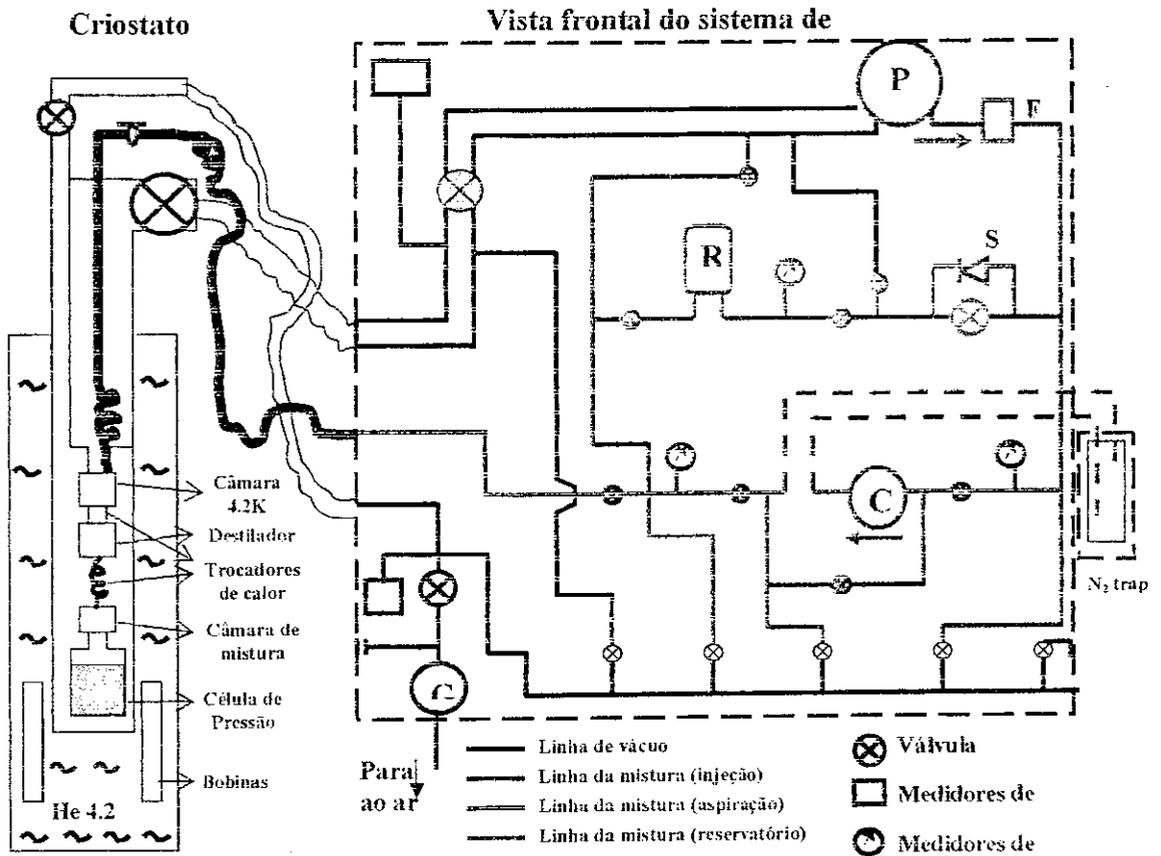


Figura 4.14 Vista esquemática do sistema completo de diluição He^3 - He^4 utilizada nas medidas de resistência elétrica (criostato e sistema de controle de bombeamento). No sistema de controle: G= Grupo de bombas de alto vácuo, P= Bomba, C= Bomba Compressora, R= Reservatório da mistura He^3 - He^4 , F= Filtros, S= Válvula de segurança.

REFERÊNCIAS

- [1] LakeShore. Temperature Measurement and Control. Part 1 (1995).
- [2] Embora o presente trabalho não apresente medidas de magnetoresistividade sob pressão na região de ultrabaixas temperaturas, experimentos recentes com esta técnica vem sendo desenvolvidos em nosso Laboratório de Supercondutividade e Férmions Pesados.
- [3] Sensor RuO veio calibrado do Instituto de baixas temperaturas (C. N. R. S) de Grenoble.
- [4] San Diego University. User Manual. LR-700 AC resistance bridge, Version 1.1.
- [5] M. T. D'Azeredo Orlando. Tese de doutorado (CBPF) (1999).
- [6] M. B. Fontes. Tese de doutorado (UFF) (1995). Mais referências são dadas nesta tese.
- [7] H. Neemann, A. Eichler, S. Süllow, J. A. Mydosh. *Acta Phys. Polonica B*, 34, 2, (2003), 1085.
- [8] T. Burghardt, A. Eichler, S. Süllow, J. A. Mydosh. *Physica B* 259-261, 99 (1999).
- [9] S. L. Bud'ko, A. N. Varonovski, A. G. Gapotchenko, and E. S. Itskevich. *Sov. Phys. JETP* 59 (2), 1984.
- [10] J. T. Market et al, *Phys. Rev. Lett* 64 (1990) 80.
- [11] J. D. Thompson. *Rev. Sci. Instrum.* 55, 2, (1984).
- [12] P. W. Bridgman. *J. Appl. Phys.* 12, 461 (1941).
- [13] B. Bireckoven and J. Wittig. *J. Phys. E.: Sci. Instrum.* 21, 841 (1988)
- [14] J. Plessel. Tese de doutorado. Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Unersität zu Köln (2002).
- [15] K. Shimizu, H. Ishikawa, D. Takao, T. Yagi, K. Amaya. *Nature* 419, 597 (2002).
- [16] H. K. Mao, P. M. Bell, J. W. Shaner, D. J. Steinberg. *J. Appl. Phys.* 49 (6), 3276 (1978).
- [17] Frank Pobell. *Matter and Methods at Low Temperatures*. Springer-Verlag Berling Heidelberg (1992).

CAPÍTULO 5

CePd₂Al₂Ga: SUPRESSÃO DOS MAGNONS NA VIZINHANÇA DO PONTO CRÍTICO QUÂNTICO

5.1 Introdução

As mudanças de propriedades magnéticas em altas pressões tem sido estudadas nos fêrmions pesados (HF) isostructurais, CePd₂Al₃ e CePd₂Ga₃ [1] e, recentemente, no CePd₂Al₂Ga [2]. Na pressão ambiente ($p = 0$), eles se distinguem pelo tipo de arranjo dos momentos magnéticos do Ce. Assim, temos um ordenamento antiferromagnético (AF) para o CePd₂Al₃ ($T_N = 2.7$ K [3]) e ferromagnético (FM) para os compostos CePd₂Ga₃ ($T_C = 6$ K [1]) e CePd₂Al₂Ga ($T_C = 1.8$ K [4]).

A ordem magnética no CePd₂Ga₃ é suprimida no ponto crítico quântico (QCP), estimado em $p_C \sim 5$ GPa [5], porem antes da transição quântica há uma mudança do tipo de ordem magnética, passando de FM para AF próximo de 2.3 GPa [6]. Por outro lado, o composto policristalino AF CePd₂Al₃ é conduzido para o QCP em $p_C \sim 2$ GPa, sem mudança na sua ordem magnética [5]. Os diferentes diagramas de fases apresentados pelos compostos CePd₂Ga₃ e CePd₂Al₃ sugerem uma delicada competição entre as interações Kondo e RKKY. Dentro deste cenário, o estudo sob pressão do composto intermediário CePd₂Al₂Ga é muito atraente, por um lado porque permite entender melhor a competição entre as interações Kondo e RKKY no sistema CePd₂(Ga, Al)₃ e; por outro, e mais importante, é poder estudar uma transição FM-QCP, se é que existe no CePd₂Al₂Ga.

➤ Neste capítulo apresentam-se resultados de medidas de resistência elétrica no CePd₂Al₂Ga sob altas pressões e ultrabaixas temperaturas. O desaparecimento da ordem magnética na região de instabilidade magnética será abordado dentro do cenário físico das flutuações de spin (*SF-spin fluctuations*) bidimensionais correlacionada com uma teoria de onda de spin (*SW-spin wave*).

5.2 Medidas de resistência elétrica sob pressão.

5.2.1 Definição do regime magnético do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$.

A figura 5.1 mostra medidas de resistência elétrica $R(T)$ do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ para algumas pressões representativas, dentro de um intervalo de temperaturas entre 1.5 - 120 K. Estas medidas foram feitas num primeiro bloco de amostra (A1), usando o método de quatro pontas dentro da célula de pressão líquida ($p < 1.2$ GPa) (ver capítulo 3).

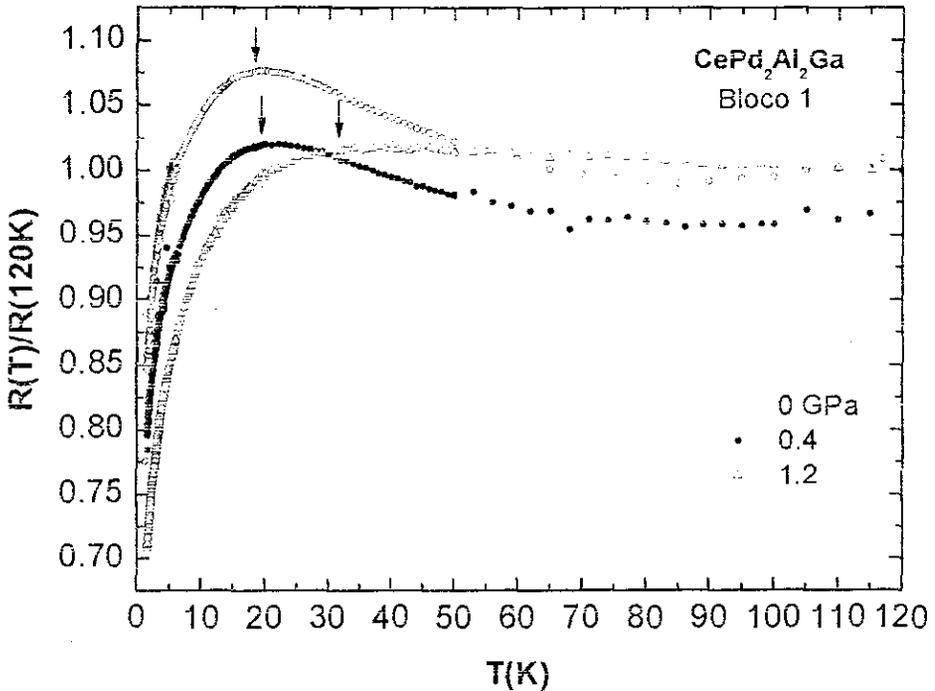


Figura 5.1. Curvas de resistência elétrica em função da temperatura e da pressão para um primeiro bloco de amostra do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$. As curvas estão normalizadas aos valores das resistências em $T = 120\text{K}$, e as setas indicam a temperatura onde a resistência tem seu máximo valor (T_{max}^R).

As nossas medidas de $R(T)$ no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ mostram o comportamento esperado para a série de férmions pesados $\text{CePd}_2(\text{Al,Ga})_3$, reportados em outros trabalhos, indicando a boa qualidade da nossa amostra [4]. Pode se observar na fig. 5.1 que $R(T)$ alcança um valor máximo a uma certa temperatura, chamada de T_{max}^R , a qual se desloca para temperaturas maiores com o aumento da pressão. Do modelo teórico para as redes de Kondo proposto por Fischer [7], T_{max}^R é proporcional à temperatura Kondo T_K . Assim, o aumento do valor de T_K com a pressão segue o comportamento típico dos compostos HF de Ce com ordem magnética, predito no diagrama de Doniach [8]. Dentro da simples descrição do diagrama de Doniach, a competição entre as interações Kondo e RKKY é controlada pela redução do volume do íon

de Ce (aumento da pressão). Dentro deste cenário físico, o aumento T_{max}^R com a pressão aplicada, observado na fig. 5.1 para o FM $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, é uma indicação do aumento da escala de energia da blindagem Kondo ($\sim T_K$). Como neste capítulo estamos interessados em estudar os fenômenos críticos quânticos, que acontecem perto do QCP e em baixas temperaturas ($T \rightarrow 0\text{K}$), a análise quantitativa do efeito Kondo não será abordada.

Por outro lado, medidas de resistência elétrica foram feitas num segundo bloco da amostra A1, dentro de um intervalo de temperaturas $0.04 < T/\text{K} < 20$ e pressões $0 < p/\text{GPa} < 4.7$. As curvas de resistência elétrica normalizadas a 20 K ($R(T)/R(20\text{K})$) são mostradas na figura 5.2. Estas medidas não serão transformadas para resistividade elétrica $\rho(T)$ devido à forma geométrica irregular da amostra $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$.

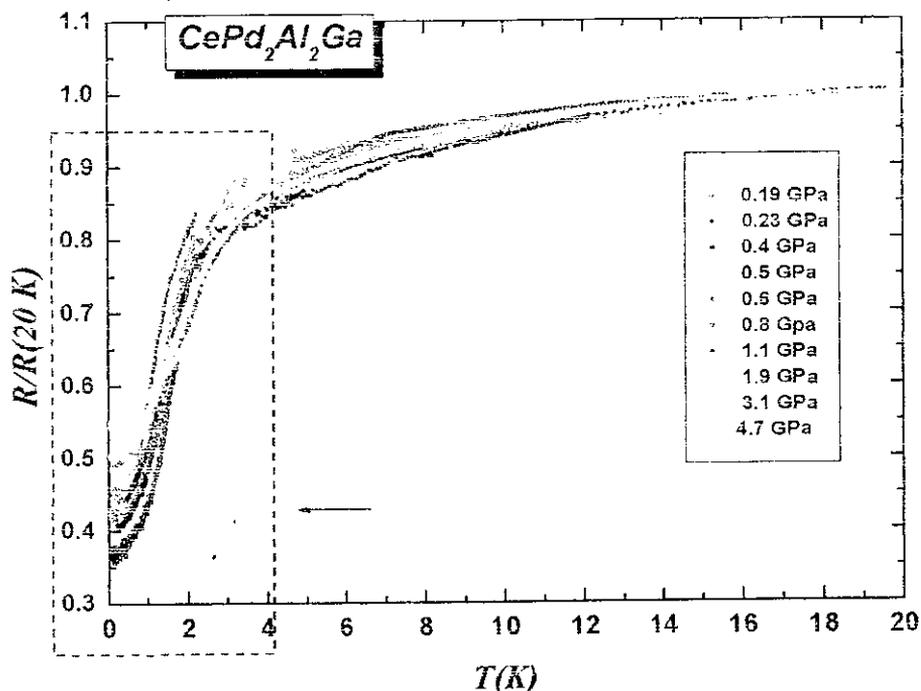


Figura 5.2. Medidas de resistência elétrica normalizadas a 20 K ($R/R(20\text{K})$) em diferentes pressões. O retângulo mostra o regime de temperaturas estudado que é apresentado na Fig. 5.3.

A figura 5.3 mostra as medidas de resistência elétrica $R(T)$ para algumas pressões representativas, no regime de baixas temperaturas que nos interessa estudar ($< 4\text{K}$). As curvas sólidas representam os ajustes com lei exponencial e de potência, considerando o espalhamento dos elétrons de condução pelas ondas de spin e a contribuição líquido de Fermi, respectivamente. Isto será abordado com detalhe mais adiante.

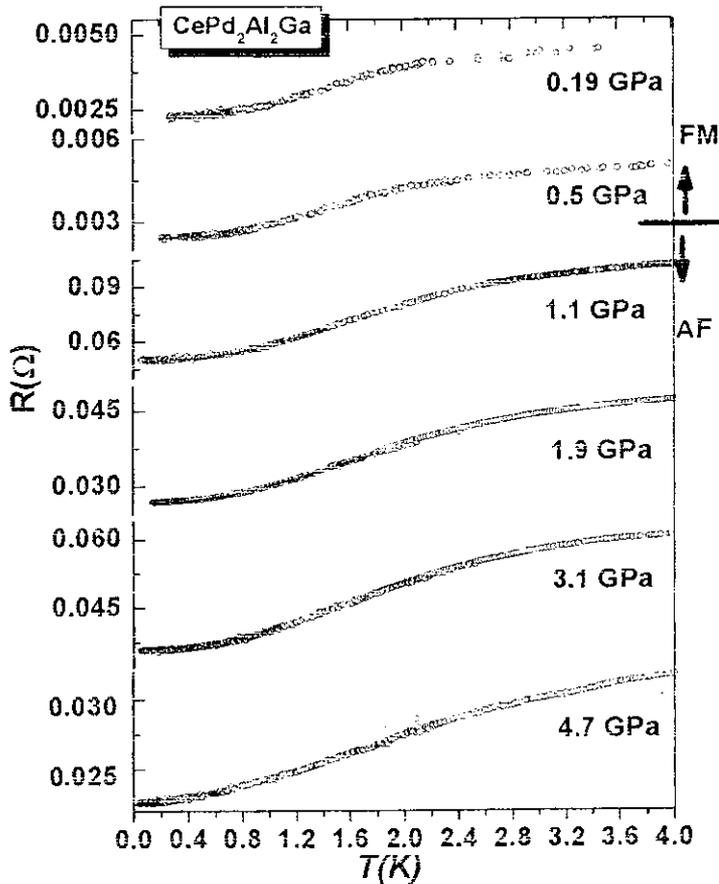


Figura 5.3. Medidas de resistência elétrica no intervalo de baixas temperaturas, para algumas pressões representativas. As linhas sólidas representam os ajustes considerando as contribuições do espalhamento elétron-magnon e líquido de Fermi (FL), as quais serão abordadas mais adiante.

Nas figuras 5.2 e 5.3 observa-se que todas as curvas de $R(T)$ apresentam uma concavidade para baixo, bastante alargada, se estendendo desde 1K até, pelo menos, o limite de temperatura das medidas (20 K). Este fato impede determinar a temperatura de ordem magnética pelo método gráfico, onde geralmente, inflexões (*bends*) nas curvas de resistividade elétrica são associadas às transições magnéticas. Todos os dados existentes sobre os valores das temperaturas de ordem magnética (T_{mag}), em função da pressão, obtidos por medidas de susceptibilidade $\chi(T)$ e de calor específico $C(T)$ são reportados nas ref. [6] e [9], respectivamente. O valor de T_{mag} varia entre 1K e 2.5 K num intervalo de pressões menores que 2.7 GPa [9]. Neste intervalo de temperaturas, as medidas $R(T)$ (ver fig. 5.3) não mostram, de forma clara, indicações associadas a uma possível transição magnética. Sendo assim, outro critério para extrair T_{mag} das medidas de resistividade deve ser utilizado. Este critério considera T_{mag} como o mínimo na segunda derivada da resistência d^2R/dT^2 [10]. Antes de continuar com a discussão sobre a influência da pressão sobre T_{mag} , uma estimativa da contribuição elétron-fônon em baixas temperaturas será apresentada (a seguir).

Uma análise rigorosa da contribuição magnética para a resistência elétrica a baixas temperaturas, requer subtrair a contribuição por espalhamento de fônons. Com a finalidade de estimar a contribuição elétron-fonon na resistividade (ρ_{ph}) para o composto $CePd_2Al_2Ga$, no limite de baixas temperaturas, usou-se a relação conhecida de Bloch-Grüneisen, tal que $\rho_{ph} = 4R \Theta_D (T/\Theta_D)^5$ quando $T \rightarrow 0$ K [11]. Das medidas de $C(T)$ no $CePd_2Al_2Ga$, o valor estimado para a temperatura de Debye $\Theta_D \approx 164$ K [12], e o parâmetro R proporcional à intensidade da interação elétron-magnon é obtido do composto isoestrutural FM $CePd_2Ga_3$; $R = 0.088 \mu\Omega cm K^{-1}$ [9]. Assumindo uma forma regular para amostra, tipo paralelepípedo, com comprimento $L = 3$ mm e área transversal $A = 2$ mm², podemos estimar aproximadamente a contribuição por espalhamento de fônons à resistência elétrica (R_{ph}), abaixo de 5K, dado por $R_{ph} \leq 2 \cdot 10^{-3} \mu\Omega$. Este valor obtido é o mesmo para ambas células de pressão, a líquida e a de Bridgman (ver cap. 3). Considerando que o valor da resistência residual R_0 no $CePd_2Al_2Ga$ é maior que 2 m Ω para todas as pressões, teremos que R_{ph} não influencia a nossa análise de $R(T)$ em baixas temperaturas.

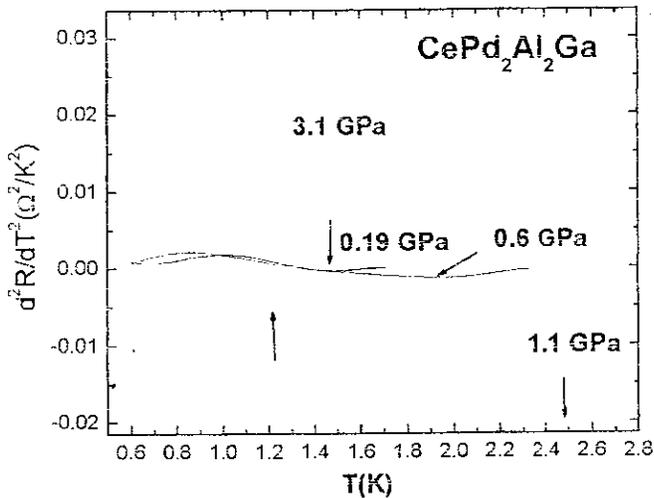


Figura 5.4 Segunda derivada da resistência elétrica, d^2R/dT^2 (Ω^2/K^2), no $CePd_2Al_2Ga$ para algumas pressões.

A figura 5.4 mostra as curvas de d^2R/dT^2 para algumas pressões, do mínimo destas curvas podemos estimar T_{mag} . O erro em T_{mag} está associado à dispersão de T_{mag} encontrada em diferentes intervalos de temperatura. A figura 5.5 mostra a dependência com a pressão de T_{mag} obtida dos nossos dados de $R(T)$ comparada com os valores de T_{mag} obtidos por medidas de calor específico $C(T)$ [9]. T_{mag} pode representar, tanto a temperatura de ordem de Curie (T_C) como a temperatura de Néel (T_N), para o caso FM e AF, respectivamente. As medidas de $C(T)$ reportadas na ref. [9] foram feitas usando uma célula líquida até pressões $p \sim 2.5$ GPa.

Em princípio, observa-se na fig. 5.5 um comportamento semelhante de T_{mag} obtida a partir da medida de $R(T)$ e $C(T)$, onde os valores são mais próximos na região de baixas pressões. Este fato pode estar relacionado com as condições experimentais da pressão aplicada. Nas medidas de resistência elétrica foi usada uma célula Bridgman para pressões $p > 1.2$ GPa, este tipo de célula não proporciona as mesmas condições hidrostáticas que a célula líquida (ver cap.4). Assim, podemos esperar que o gradiente de pressões induzido em altas pressões influencie na estimativa da pressão, manifestando-se, também, num alargamento da barra de erro. Isto explica porque dentro no regime hidrostático os valores de T_{mag} obtidos em $R(T)$ e $C(T)$ são próximos, ao contrário da tendência que eles seguem fora deste regime. Argumento semelhante foi usado para explicar as diferentes dependências com a pressão de T_N perto do QCP no $CePd_2Si_2$, reportadas entre as medidas de $C(T)$ (usando uma célula líquida) e $R(T)$ (usando uma célula de Bridgman) [13]. O segundo fator, menos relevante, mas que não pode ser descartado, está baseado no cálculo de T_{mag} através da derivada segunda, d^2R/dT^2 . Na fig. 5.3 observa-se que a concavidade em $R(T)$ é bastante larga e lisa, portanto, o ponto de inflexão em $R(T)$ associado a T_{mag} poderia levar a uma incerteza maior na determinação da d^2R/dT^2 e também de T_{mag} .

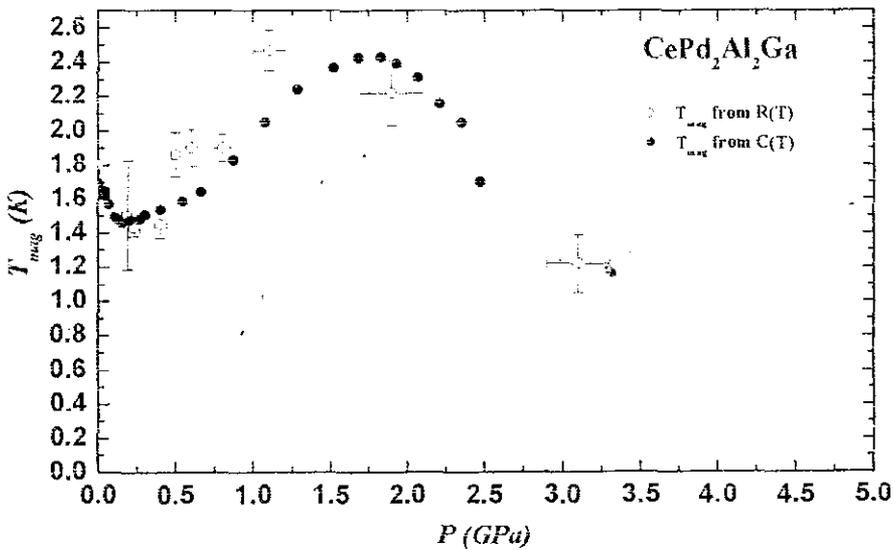


Figura 5.5 Dependência com a pressão da temperatura de ordem magnética, T_{mag} , extraída das medidas de resistência elétrica $R(T)$ e calor específico $C(T)$ (ref. [9])

Os dados de resistência elétrica a baixas temperaturas no $CePd_2Al_2Ga$, na fase de ordem magnética, podem ser descritos, aproximadamente, pela fórmula:

$$R(T) = R_{SW}(T) + mT^2 \quad (5.1)$$

Aqui, (R_{sw}) é a contribuição do espalhamento dos elétrons de condução pelas ondas de spin, que depende, essencialmente, do tipo de espectro de excitação; e o segundo termo, T^2 , está relacionado ao comportamento líquido de Fermi (FL).

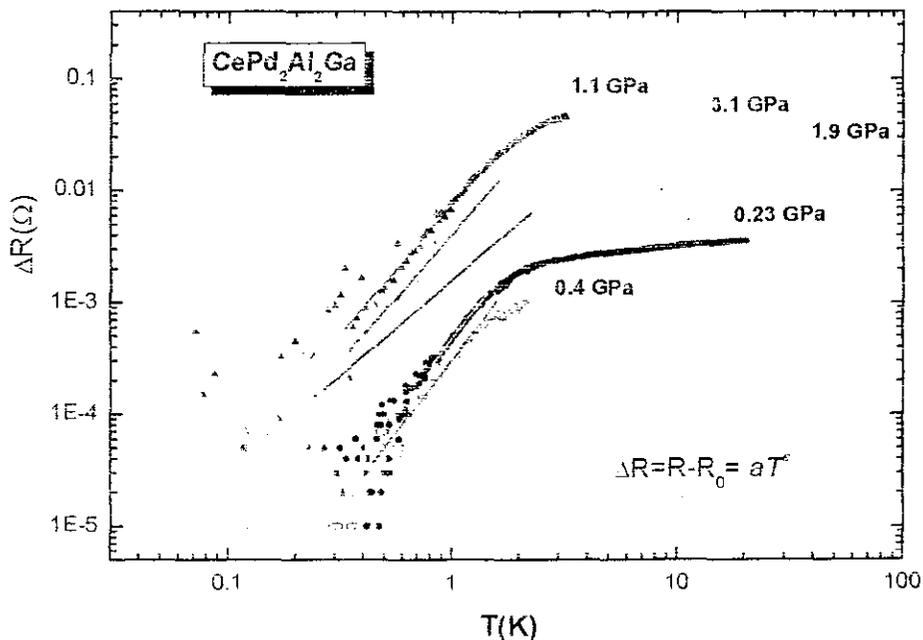


Figura 5.6. $\Delta R=(R-R_0)$ vs. $\ln T$. As linhas retas, de pente ε , são construídas a partir da relação $\Delta R=R-R_0=aT^\varepsilon$.

Usualmente, na fase magnética ordenada e em baixas temperaturas, $R(T)$ mostra uma contribuição mais importante das onda de spin do que do comportamento FL [13]. Assim mesmo, como o espectro de onda de spin depende do tipo de ordem magnética, a dependência com a temperatura da resistência elétrica deveria, em princípio, permitir extrair alguma informação sobre o tipo de ordenamento magnético de longo alcance [14].

Para uma análise mais rigorosa dos dados de $R(T)$, a dependência com a pressão da contribuição por espalhamento elétron-elétron deve ser considerada. Assim, partindo da relação para esta contribuição, na sua forma geral $R(T) = R_0 + aT^\varepsilon$, pode-se chegar ao cálculo do valor de ε através da pente do gráfico $\ln(R-R_0)$ vs. $\ln T$. Em princípio ε , conhecido como *expoente efetivo*, pode adotar valores como $\varepsilon > 2$ no caso de uma fase magnética ordenada [15], $\varepsilon = 2$ para o caso puramente FL e, $1 \leq \varepsilon < 2$ para o caso *não Líquido de Fermi (NFL)* [16].

A figura 5.6 mostra o gráfico $\ln(R-R_0)$ vs. $\ln T$ para distintas pressões. A primeira vista, uma reta pode ser traçada para tomar conta da dependência linear de $\ln(R-R_0)$ com $\ln T$, dentro de um apreciável intervalo de temperaturas, ainda considerando o espalhamento dos

dados em $T < 1\text{K}$. A partir da pendente de cada uma dessas retas podemos estimar o valor de ε para cada pressão, cuja variação com P é mostrada na figura 5.7, que apresenta a dependência com a pressão do expoente efetivo $\varepsilon(p)$, com $\varepsilon > 2$ para pressões menores que 3.1 GPa, enquanto que, $1 < \varepsilon < 2$ em $p = 4.7$ GPa. No primeiro caso, o valor $\varepsilon > 2$ para $p \leq 3.1$ GPa, é uma indicação que o material encontra-se em uma fase magnética ordenada, porém é necessário considerar no intervalo de baixas temperaturas, ambas contribuições, R_{SW} e AT^2 à resistência elétrica. No segundo caso, o valor de $\varepsilon < 2$ indica que em $p = 4.7$ GPa, o material $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ encontra-se fora do regime magnético. Isto é consistente com o fato de não ser possível calcular o valor T_{mag} nesta pressão. Contudo, devido à grande incerteza no valor da pressão para este ponto, nenhuma afirmação conclusiva sob o estado do material pode ser feita. A discussão deste problema será abordada mais adiante.

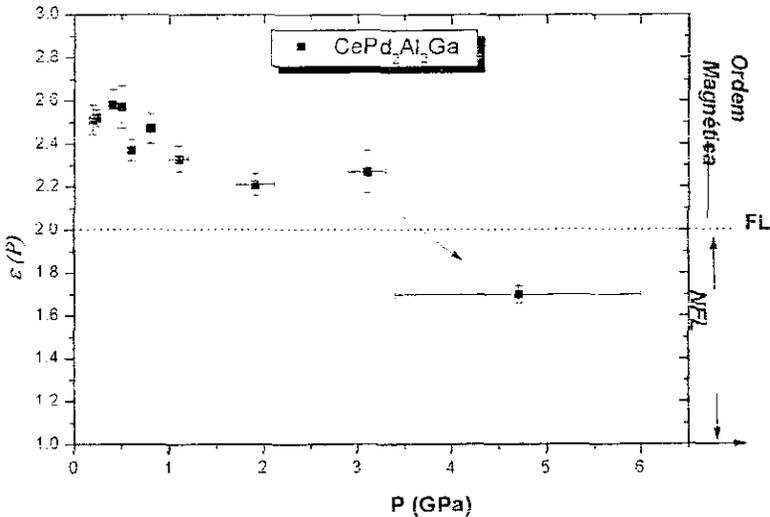


Figura 5.7. Dependência com a pressão do expoente efetivo ε . A seta indica a transição de uma fase magnética para uma paramagnética

5.2.1.1 Mudança na ordem magnética do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ induzida por pressão hidrostática.

Estando definido o regime magnético, é possível extrair os valores do gap dos dados de $R(T)$. Inicialmente, consideremos o caso do material ferromagnético anisotrópico, com relação de dispersão dos magnons dada por $\omega = \Delta + D k^2$ (no limite de vetores de onda pequenos); onde Δ é o gap anisotrópico e D a velocidade da onda de spin [17, 18]. Em ferromagnetos anisotrópicos, como é o caso do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, o gap Δ presente no espectro de excitação está associado ao espalhamento elétron-magnon em baixas temperaturas, como é reportado no RNiBC ($R =$ terra rara) [17]. Portanto, a resistência elétrica em baixas temperaturas terá uma dependência de acordo com uma lei exponencial, dada por [17]:

$$R_{sw}(T) = R_0 + b\Delta T e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \left[1 + 2 \frac{k_B T}{\Delta} \right] \quad (5.2)$$

onde R_0 é a resistência residual e b é uma constante que depende do material. A expansão em série dentro dos colchetes é válida para $k_B T \ll \Delta$.

Por outro lado, em antiferromagnetos com anisotropia magnética, existe uma relação de dispersão diferente para as ondas de spin, dada por $\varpi = \sqrt{\Delta^2 + D^2 k^2}$; que leva a uma dependência da resistência elétrica com a temperatura diferente, dada por [15, 19]

$$R_{sw}(T) = R_0 + A \left(\frac{\Delta}{k_B} \right)^{3/2} T^{1/2} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \left[1 + \frac{2}{3} \left(\frac{k_B T}{\Delta} \right) + \frac{2}{15} \left(\frac{k_B T}{\Delta} \right)^2 \right] \quad (5.3)$$

O coeficiente A está relacionado com a velocidade de onda de spin, D , dada por $A \propto 1/D^3$ ou $A \propto 1/\Gamma^3$, onde Γ é o acoplamento magnético efetivo entre os íons de Ce [15]. Este coeficiente A pode também ser relacionado com a rigidez (*stiffness*) das ondas de spin φ por $A \propto 1/\varphi^{3/2}$ [19]. A relação entre colchetes na eq. (5.3) é válida só para $k_B T < \Delta$.

Ambas equações, (5.2) e (5.3), foram usadas para ajustar os nossos dados de resistência do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ num intervalo apropriado de temperaturas onde a expansão é válida ($T_{\text{fit}} \leq 0.65 T_{\text{mag}}$, sendo T_{fit} o limite máximo na temperatura do ajuste). Se encontrou, que ambas funções, para os casos FM e AF ajustam muito bem os dados para pressões menores que 0.5 GPa. Acima desta pressão, o ajuste FM piora, gerando valores de gap fisicamente muito pequenos, ou pela ausência de convergência do ajuste. No entanto, a função (5.3) para o caso dos antiferromagnetos, ainda produz ajustes de boa qualidade e com gap fisicamente razoáveis em pressões maiores que a 0.5 GPa. A tabela 5.1 mostra os valores do gap (Δ) e T_{mag} obtidos da análise das medidas de resistência elétrica, usando a combinação das equações (5.1), (5.2) e (5.3), para as ordens magnéticas FM e AF. Os valores apresentados na tabela 5.1 reproduzem, satisfatoriamente, a dependência com a temperatura da resistência elétrica até temperaturas próximas a T_{mag} , tal como pode ser visto na fig. 5.3.

As medidas de magnetização mostram que o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ é ferromagnético na pressão zero [4]. Assumiremos que os valores do gap extraídos em pressões $p \leq 0.5$ Ga correspondem a um espectro de onda de spin FM, enquanto que, será AF para pressões acima de 0.5 GPa até $p = 3.1$ GPa. Os argumentos físicos serão abordados a seguir.

Tabela 5.1 Valores dos parâmetros obtidos do ajuste de dependência da resistência elétrica com a temperatura, usando as equações (5.1), (5.2) e (5.3) para o cálculo do gap para as regiões com diferentes ordens magnéticas. O número entre parêntese representa o erro em cada valor calculado.

	P (GPa)	T_{mag} (K)	R_0 (Ω)	b ($10^{-4}\Omega/\text{K}^2$)	A (10^{-4} Ω/K^2)	Δ/k_B (K)	m (10^{-4} Ω/K^2)
FM	0.19	1.5(3)	0.00225	3.0 (2)	-	1.03(7)	1.1(3)
	0.23	1.43(5)	0.00268	2.8(2)	-	0.95(17)	1.4(2)
	4	1.45(8)	0.00115	2.2(1)	-	1.37(10)	2.2(1)
	5	1.86(13)	0.00243	4.6 (9)	-	1.40(26)	1.8(2)
	6	1.90(11)	0.00243	-	5.0(1)	1.50(22)	1.8(7)
AF	8	1.90(8)	0.00096	-	2.3(2)	1.70(8)	1.0(5)
	11	2.47(12)	0.05021	-	53.6(9)	2.09(18)	52(2)
	19	2.22(19)	0.0269	-	19.8(2)	1.58(10)	20(2)
	31	1.21(17)	0.03571	-	19.0(2)	0.80(25)	27(3)

A figura 5.8 mostra a dependência com a pressão da temperatura magnética $T_{\text{mag}}(P)$, o gap $\Delta(p)$ e, os coeficiente A e b , calculados da eq. 5.3 e mostrados na tabela 5.1. Nesta figura se observa-se que tanto $T_{\text{mag}}(P)$ como $\Delta(P)$, seguem o mesmo comportamento em todo o regime de pressões. Isto é uma indicação que ambas grandezas estão correlacionadas.

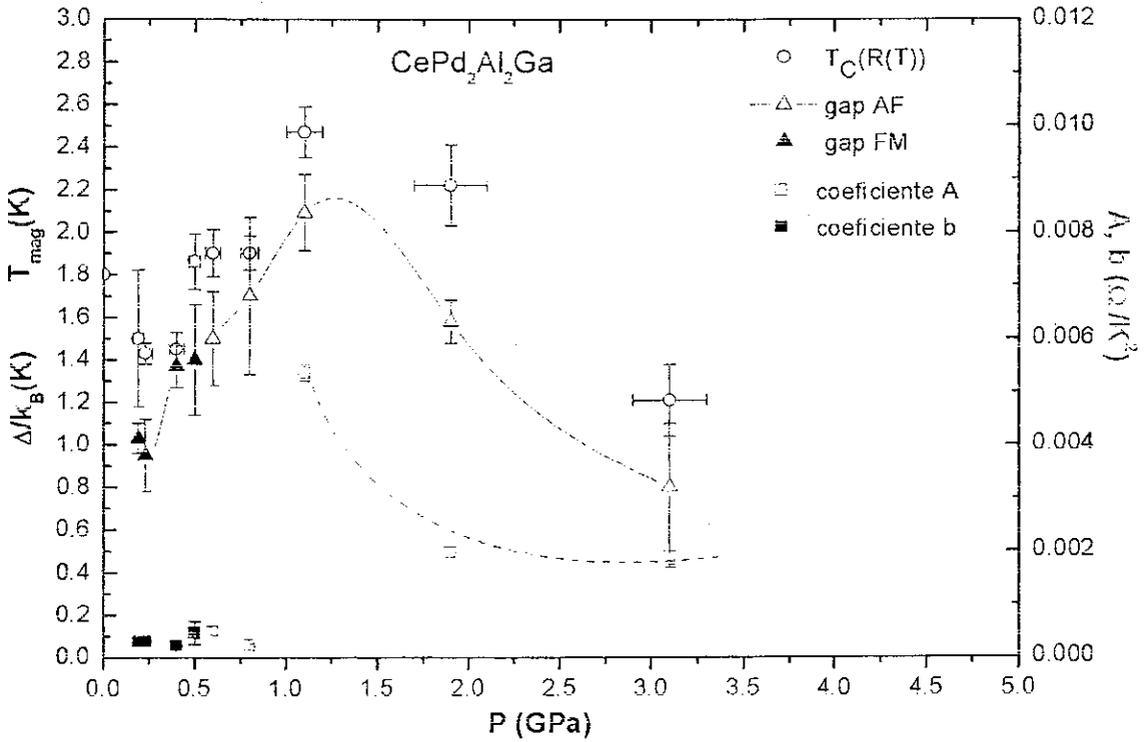


Figura 5.8 Temperatura de ordem magnética (T_{mag}), gap das ondas de spin FM e AF e, coeficientes A e b (calculados das eq. 5.2 e 5.3) em função da pressão. As linhas pontilhadas são usadas como guia.

Iniciando a nossa discussão para as pressões menores, observamos na fig. 5.8 que ambas grandezas $T_{\text{mag}}(p)$ e $\Delta(P)$ diminuem rapidamente até 0.2 GPa; acima desta pressão a tendência é se manter constante até 0.5 GPa, para depois experimentar um aumento até ~ 1.2 GPa. Este mesmo comportamento monótono de T_{mag} com a pressão, foi reportado em medidas de susceptibilidade AC (χ_{AC}) a baixas pressões (< 0.7 GPa) por Süllo e colaboradores [4]. Estes autores assumem a existência de um ordenamento magnético em todo o regime de pressões investigado (ver cap. 4). Mais recentemente isto foi confirmado por medidas de calor específico, onde o ordenamento magnético é observado até $p \sim 2.7$ GPa (ver fig. 5.5) [9].

Süllo e col. [4] reportam uma mudança na pente de $T_{\text{mag}}(p)$ próximo de 0.4 GPa, acompanhado por um decréscimo na amplitude do sinal de χ_{AC} . Este fato é usado para extrair conclusões indiretas. O rápido decréscimo na amplitude do sinal de χ_{AC} para $p > 0.4$ GPa estaria associado à mudança da ordem FM para AF. Isto é deduzido da comparação entre as diferentes sinais na amplitude de χ_{AC} , encontrados nos compostos CePd_2Ga_3 (FM) e CePd_2Al_3 (AF) [4]. Por outro lado, considerando nossos dados de $R(T)$, a mudança da ordem

FM para AF estaria associada ao fato de que só existe uma equação consistente para obter Δ acima de 0.5 GPa, que corresponde ao espectro AF da eq. (5.3).

A física envolvida na mudança da ordem magnética do composto $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ sob pressão pode ser discutida em analogia com a influência da pressão química no sistema $\text{CePd}_2(\text{Al}_{1-x}\text{Ga}_x)_3$, onde a estrutura cristalina é do tipo PrNi_2Al_3 [9]. Embora não se saiba nada sob a estrutura magnética do composto FM $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, em $p=0$, assumiremos uma estrutura magnética semelhante ao composto isoestrutural FM CePd_2Ga_3 . Partindo desta suposição, espera-se que no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ e em $p=0$, os momentos de Ce encontrem-se alinhados ferromagneticamente na direção das bases planares ab da rede cristalina hexagonal [13]. O acoplamento entre os planos FM, a longo do eixo c , reproduzirá uma estrutura magnética tridimensional (3D).

Segundo Mentik e col. [20], em sistemas com grande anisotropia magnética, tipo $\text{CePd}_2(\text{Ga},\text{Al})_3$ ou UPdAl_3 , os acoplamentos magnéticos em cada direção podem ser tratados independentemente, ou seja, aqueles que acontecem dentro dos planos (intraplanar) e aqueles que acontecem em diferentes planos (interplanar). Pode ser assumido no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ que o acoplamento magnético intraplanar é mediado pela hibridização Ce-Pd (J_{f-d}), enquanto que o acoplamento interplanar é visto como uma interação puramente RKKY ao longo do eixo c (J_z) mediada pelas camadas intermediárias de Al/Ga, sendo este último, o responsável pelo ordenamento de longo alcance. Assim temos, inicialmente, a aplicação de baixas pressões produz uma diminuição no parâmetro de rede c , modulando a interação RKKY que toma conta da mudança da ordem FM para AF. Este mesmo cenário físico é usado para explicar as diferentes ordens magnéticas adotadas pelos compostos CePd_2Ga_3 , $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ (FM) e o CePd_2Al_3 (AF). Posteriormente, assim como a pressão aplicada aumenta na nova fase AF do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, a competição entre, a interação RKKY ao longo do eixo c e o aumento da hibridização do Ce-Pd pela redução do parâmetro a , será responsável pelo comportamento de T_N . Isto explicaria o aumento de T_{mag} para $p > 0.5$ GPa ($J_z > J_{f-d}$) e, sua posterior diminuição acima de 1.5 GPa ($J_{f-d} > J_z$), conforme é observado na fig. 5.5.

O cenário físico discutido acima para o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ pode descrever, satisfatoriamente o diagrama de fase do sistema $\text{CePd}_2(\text{Ga}, \text{Al})_3$. Além disso, medidas de calor específico excluem a presença de estados vidro de spin no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ [9].

5.2.1.2 AF CePd₂Al₂Ga conduzido ao QCP. Supressão dos magnons anisotrópicos.

Nesta seção discutiremos a análise dos dados de $R(T)$ no regime de pressões onde o composto CePd₂Al₂Ga apresenta uma ordem AF, portanto, T_{mag} será substituído pela temperatura de Néel (T_N). A fig. 5.8 mostra que acima de 0.5 GPa, $T_N(p)$ e $\Delta(p)$ aumentam com a pressão até $p \sim 1.2$ GPa. Acima desta pressão, ambas quantidades diminuem, pelo menos até $p \sim 3.1$ GPa. Como $T_N(p)$ apresenta um comportamento típico de HF de Ce com ordem AF [21], se esperaria que T_N passasse a zero numa determinada pressão crítica (p_C) indicando o ponto crítico quântico (QCP) do CePd₂Al₂Ga. De acordo com a fig. 5.8, esta pressão crítica estaria localizado acima de $p \sim 3.1$ GPa. Do mesmo modo, o desaparecimento de Δ numa determinada pressão crítica p_C^{Gap} seria uma indicação da supressão da anisotropia das ondas de spin.

Por outro lado, a fig. 5.8 revela que para pressões superiores a 1.9 GPa, T_N é reduzida enquanto que o coeficiente A permanece quase constante. Considerando a barra de erro no coeficiente A , pode-se assumir que A permanece constante desde pressões 3.1 GPa até p_C , acima da pressão crítica espera-se o colapso de todo tipo de ordem magnética. Considerando a relação entre o coeficiente A e Γ ($A \propto 1/\Gamma^2$), em princípio, T_N pode ir a zero ainda tendo $\Gamma \neq 0$. Este comportamento é pouco observado em materiais magnéticos convencionais, onde o desaparecimento de T_N é explicado pela perda do acoplamento magnético de longo alcance. No entanto, a diminuição de T_N com a pressão pode ser correlacionada com a diminuição do gap anisotrópico das ondas de spin. Assim, podemos esperar que na vizinhança do QCP, o colapso de $T_N \rightarrow 0\text{K}$ esteja associado ao desaparecimento de Δ . Um comportamento similar foi relatado para o composto CeCoGe_{2.25}Si_{0.75}, com $T_N = 5\text{K}$ em $p=0$ e conduzido para o QCP ~ 0.75 GPa [16,19]. O cenário físico para explicar o comportamento crítico deste composto está baseado numa teoria de onda de spin e as flutuações de spin bidimensionais (2D). Um cenário físico semelhante será considerado na discussão dos resultados apresentados na fig. 5.8 para o CePd₂Al₂Ga, após estimar o ponto crítico quântico (QCP) que segue.

A figura 5.9 mostra as linhas críticas $T_N(p)$, calculadas a partir da lei de potência $T_N(p) \propto |\delta|^\psi$, onde $|\delta| = |p - p_C|$ mede a distância ao QCP e, ψ é o expoente de deslocamento (*shift exponent*). As linhas $T_N(p)$ são reproduzidas, de maneira que passem pelos dois últimos pontos de T_N e, a extrapolação destas, para $T_N \rightarrow 0\text{K}$, definam diferentes valores de pressões críticas. Por um lado, a teoria das flutuações de spin (SF) prediz uma linha crítica com $\psi = z/(d+z-2)$, sendo d a dimensão efetiva das flutuações de spin e z o expoente dinâmico [22, 23].

Assim, para um material quase AF ($z=2$) perto do QCP, $T_N \propto |\delta|^{2/3}$ ou $T_N \propto |\delta|^1$ no caso em que a transição AF-QCP seja governada pelas flutuações de spin 3D ou 2D, respectivamente [21, 23, 24]. Deste modo, usando a extrapolação para o caso 3D se obtém um QCP em $p_C^{3D-SF} = 4$ GPa, enquanto que para o caso 2D, o QCP é estimado em $p_C^{2D-SF} = 3.6$ GPa. Por outro lado, a teoria de campo médio (MF) prediz um expoente $\psi = 1/2$ para um material quase AF, no caso $d=3$ e expoente dinâmico $z=1$, associado com os modos das ondas de spin amolecidas no regime da instabilidade magnética, tal que, $\Delta \propto |\delta|$ [24]. Usando as previsões do MF se estima um QCP em $p_C^{MF} = 3.6$ GPa.

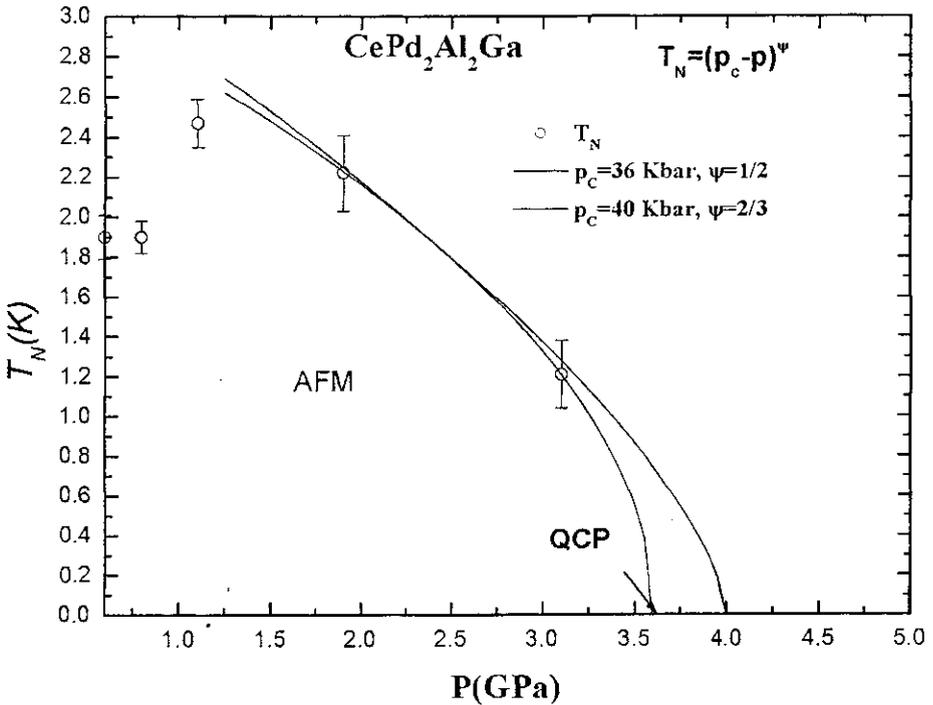


Figura 5.9 Linhas críticas para diferentes expoentes efetivos ψ associados a transição AFM-QCP no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$.

Contudo, a escolha do QCP no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, extraída das nossas medidas de $R(T)$, depende de dois aspectos:

- i) Os resultados das medidas de $C(T)$ estimam o QCP no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ em $p_C^{C(T)} = (2.8 \pm 0.2)$ GPa [9]. Em comparação com nossos resultados, o valor mais próximo a $p_C^{C(T)}$ corresponde a p_C^{MF} . Considerando que a análise das nossas medidas de $R(T)$ mostram evidências de ordem magnética até 3.1 GPa, podemos estimar o QCP na pressão crítica $p_C \sim (3.6 \pm 0.5)$ GPa. A diferença entre os valores do QCP, estimados das medidas de $C(T)$ e $R(T)$, pode ser atribuída

às condições experimentais da aplicação de pressão. Nos experimentos de $C(T)$ sob pressão foi usada uma célula líquida que garante as condições hidrostáticas, enquanto que, em nossos experimentos de $R(T)$ sob pressão, usou-se além de uma célula líquida, uma célula de Bridgman para alcançar as pressões maiores. Considerando as condições de pressão quase hidrostáticas na célula de Bridgman (ver cap.3), podemos esperar que a distribuição de pressões influencie os resultados de $R(T)$. Isto explicaria o deslocamento $T_{\text{mag}}(P)$ nas medidas de $R(T)$ em relação as de $C(T)$, no intervalo de pressões onde a célula de Bridgman é usada (ver fig. 5.5). O argumento sobre os diferentes meios de transmissão de pressão também foi usado por Demuer e col. [13] para explicar os diferentes QCP e intervalos de supercondutividade, obtidos em experimentos de $R(T)$ e $C(T)$ no composto CePd_2Si_2 .

ii) A escolha de $p_C \sim 3.6$ GPa como QCP do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ sugere adotar as predições do MF na descrição do comportamento crítico, que de fato, é a mais apropriada devido à escassez de pontos T_N experimentais na região próxima ao QCP. Embora MF possa dar uma boa estimativa do QCP no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, esta teoria não pode fornecer informação sobre a natureza e a dimensionalidade das flutuações de spin bidimensionais (2D-SF) [22,23]. Considerando a limitação de usar as predições da teoria SF, o comportamento crítico quântico e sua relação com a dimensionalidade das flutuações de spin devem ser abordados dentro de um cenário físico diferente, como será discutido a seguir. Contudo, no que segue na discussão deste capítulo, o QCP do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ será considerado na pressão crítica $p_C \sim 3.6$ GPa.

O comportamento crítico quântico do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ na fase magnética pode ser abordado dentro de um cenário físico que contemple a modificação do espectro das ondas de spin pela dimensionalidade das flutuações magnéticas. Usando a teoria de SW, Continentino e col.[14] mostraram que existe uma relação entre T_N e Δ , que depende da dimensionalidade do espectro das excitações magnéticas. Assim, temos para um sistema 3D com $S=1/2$:

$$k_B T_N = \frac{\Gamma}{2\sqrt{1 + \left(\frac{\Delta}{\Gamma}\right)^2} \left[1 - \frac{\sqrt{3}}{\pi} \frac{\Delta}{\Gamma} \arctan\left(\frac{\pi \Gamma}{\sqrt{3}\Delta}\right) \right]} \quad (5.4)$$

onde Γ é o acoplamento efetivo entre os momentos locais de spin S , diretamente proporcional à velocidade D . Por exemplo, para um sistema cúbico 3D, com interações entre vizinhos mais próximos, $\Gamma = \sqrt{3} (D/a)$, onde a é a distância entre vizinhos mais próximos.

Da eq. (5.4) podemos observar que em presença de isotropia nos magnons, $\Delta=0$, existe uma temperatura de Néel finita, tal que, $k_B T_N = (1/2) \Gamma$. Assim, no cenário físico das ondas de spin 3D e com $\Delta=0$, o colapso de T_N dependerá da supressão do acoplamento entre os íons magnéticos de Ce ($\Gamma \rightarrow 0$). Nos experimentos sob pressão, o gap $\Delta(p)$ pode ser conduzido a zero numa determinada pressão crítica p_C^{Gap} . Mesmo com os magnons anisotrópicos AF, suprimidos neste ponto p_C^{Gap} , a ordem magnética pode existir com $T_N \neq 0K$, assumindo que os momentos magnéticos do Ce não estão extintos (*unquenched moments*), de modo que $\Gamma \neq 0$.

A eq. (5.4) foi usada para calcular a constante de acoplamento efetivo Γ na seguinte forma. Escolheu-se o intervalo de pressões onde $A(p)$ mostra uma tendência quase constante e, também, um comportamento quase constante de $\Gamma(p)$ ($A \propto 1/\Gamma^3$). Considerando os valores de $\Delta/k_B = 0.8$ K e $T_N = 1.22$ K em $p=3.1$ GPa e, assumindo Γ constante, a eq. (5.4) determina $\Gamma/k_B = 1.8$ K. O valor obtido do coeficiente Γ é fisicamente razoável comparado com aquele obtido no composto férmion pesado AF CeCoGe_{2.25}Si_{0.75} [14]. Por outro lado, desde que a velocidade D é independente da pressão, no intervalo em que $A(p)$ é constante, deveríamos esperar que $\Gamma \propto D/a$ aumente com a pressão, como consequência da diminuição da distância entre os vizinhos mais próximos a . Este aumento é consistente com o diagrama de Doniach para os férmions pesados e sua aproximação ao QCP, embora nossos resultados indiquem que a variação de Γ é muito pequena para influir significativamente na variação de T_N , perto do QCP. Por exemplo, considerando a relação entre a variação do parâmetro de rede numa rede cúbica Δa com a variação da pressão ΔP , dada por $\Delta a/a = \Delta P/(3\kappa^{-1})$, com $\kappa^{-1} \approx 1$ Mbar [25], encontramos que, Γ varia $\sim 4\%$ num intervalo de pressões entre 1.9 e 3.1 GPa. De fato, a pequena variação em $\Gamma \sim 4\%$ corresponde à variação da mesma ordem do parâmetro a se considerarmos um sistema cúbico 3D [25].

Assumindo que a dependência com a pressão de $A(P)$ e $\Delta(P)$ se mantém até o QCP, isto é, $A(P)$ constante e diferente de zero com $\Delta(P) \rightarrow 0$, a simples relação da eq. (5.4) para um sistema 3D não poderia explicar o desaparecimento de T_N no QCP. Desta maneira, associando às flutuações de spin com o mecanismo responsável pelo desaparecimento do gap, pode-se argumentar que as flutuações de spin 3D não seriam a base do apropriado cenário físico que regula o comportamento crítico de T_N no CePd₂Al₂Ga. Uma situação diferente a esta se encontra se a abordagem fosse feita dentro do cenário das flutuações magnéticas bidimensionais (2D), como veremos a seguir.

Em princípio, uma análise considerando as ondas de spin em duas dimensões pode ser feita. supondo que os graus de liberdade do acoplamento AF dos momentos magnéticos de Ce no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ estão limitados numa estrutura planar. Assim, para um sistema com dimensão $d=2$ e $S=1/2$, só existirá ordem de longo alcance a temperaturas finitas na presença de um gap de ondas de spin. A temperatura crítica T_N é dada por:

$$k_B T_N = \frac{2\Gamma}{\sqrt{1+(\Delta/\Gamma)^2} \ln \left[1 + \frac{\pi^2}{2(\Delta/\Gamma)^2} \right]} \quad (5.5)$$

onde para uma rede quadrada, $\Gamma = \sqrt{2} (D/a)$ [14]. Note-se que quando $\Delta \rightarrow 0$, a temperatura de Néel se anula, tal como é esperado para um sistema isotrópico em $d=2$.

Antes de continuar com nossa discussão sobre o cenário das ondas de spin em 2D, deveríamos encontrar argumentos válidos que justifiquem esta abordagem. A suposição que considera as interações magnéticas restritas em duas dimensões deveria estar associada à particularidades do arranjo dos momentos magnéticos do Ce na estrutura cristalina hexagonal do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ (ver. fig 3.1 no cap. 3). Embora a dimensionalidade da sua estrutura magnética ainda não tenha sido estudada, podemos propor um modelo de estrutura magnética para este composto, tomando como referência os compostos isoestruturais CePd_2Ga_3 (FM) e CePd_2Al_3 (AF). Dentro desta analogia, a estrutura FM do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ pode ser vista como planos ferromagnéticos acoplados FM ao longo de eixo c , enquanto que, para a estrutura AF, os planos FM estão acoplados AF ao longo do eixo c (ver fig. 5.10) [26, 27]. Em ambos os casos, os acoplamentos magnéticos intra- e inter- planar definem o caráter 3D do sistema magnético.

Devido ao interesse em estudar o comportamento crítico do $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ vamos a discutir a estrutura AF, mostrada na fig. 5.10 (b). Por simplicidade, na fig. 5.10 (b) os momentos magnéticos estão alinhados na direção do eixo b . Nesta configuração, o sistema magnético 2D pode ser visto como um ensemble de planos bc AF (ver seção sombreada na fig. 5.10 (c)) sem acoplamento magnético entre eles ao longo de a . Tendo em conta a relação entre as distâncias $c/a \sim 0.8$, a perda do acoplamento magnético ao longo do eixo a não deixa de ser uma suposição razoável [4].

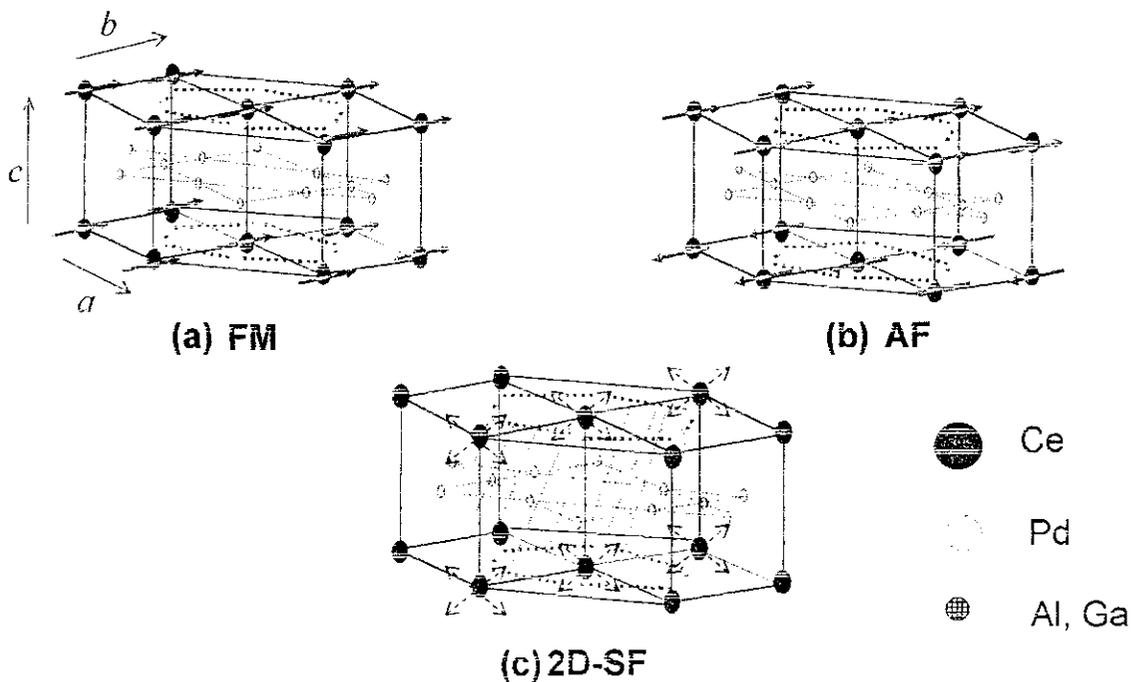


Figura 5.10. Proposta de estrutura magnética para o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$. (a) Caso ferromagnético (FM). (b) Caso antiferromagnético (AF). (c) Caso das flutuações de spin bidimensionais (2D-SF), que por simplicidade foi representada apenas num plano.

Retornando à discussão do cenário 2D, a eq. (5.5) é usada para calcular o acoplamento efetivo no caso 2D, com o mesmo procedimento usada no caso 3D. Assim, obtém-se $\Gamma/k_B = 2.55 \text{ K}$ para o caso 2D, valor fisicamente razoável para o acoplamento magnético efetivo [14]. Do mesmo modo que no caso 3D, a variação de Γ é bem pequena no intervalo de pressões entre 1.9-3.1 GPa ($\sim 5\%$), da mesma ordem de magnitude se calcula a redução do parâmetro de rede a de uma rede quadrada ideal 2D [25].

A escassez de pontos experimentais na região crítica dificulta a escolha da lei que descreve a redução de $\Delta(P)$ até $p_C \sim 3.6 \text{ GPa}$, mas em comparação com o comportamento crítico de $\Delta(p)$ reportado no composto $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$, podemos propor um decréscimo linear de $\Delta(p)$ atribuído aos modos de onda de spin amolecidos [14, 24]. Desta forma, diferentes extrapolações lineares podem ser propostas para $\Delta(p)$ acima de 1.9 GPa, como veremos a seguir.

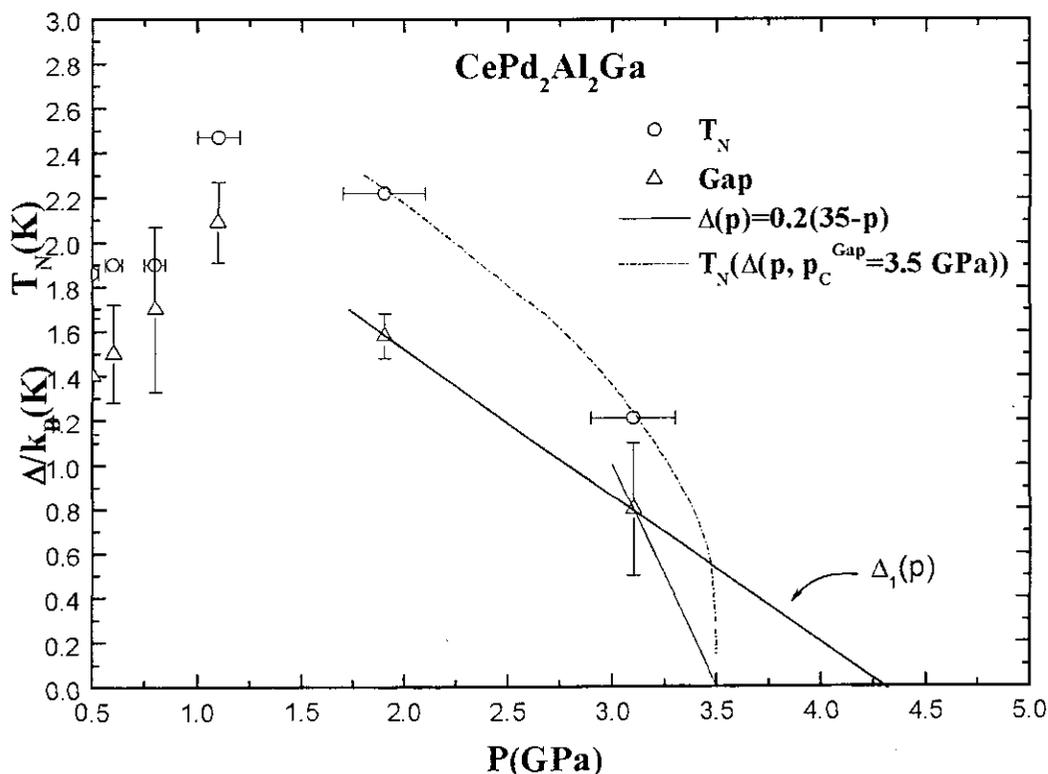


Figura 5.11. T_N e gap em função da pressão para a ordem antiferromagnética (AF). As linhas retas representam as diferentes formas de queda linear do gap definindo diferentes pontos de corte no eixo P (p_C^{Gap}). A curva pontilhada é reproduzida substituindo na eq. 5.5, para o caso 2D, a função linear para o gap da forma $\Delta(p)=0.2*(3.5-p)$ e $\Gamma/k_B=2.55$ K.

A figura 5.11 mostra a extrapolação da linha reta $\Delta_1(P) \rightarrow 0$, passando pelos pontos 1.9 e 3.1 GPa e, revelando um $p_C^{Gap} \sim 4.3$ GPa. Ainda considerando a barra de erro em p , este valor de $p_C^{Gap} \sim 4.3$ GPa é alto demais para ser considerado um valor fisicamente razoável, devido à restrição de que p_C^{Gap} deve ser menor ou da ordem de p_C (~ 3.6 GPa). O fato de considerar $p_C^{Gap} \leq p_C$ leva a um decréscimo linear do gap para o QCP mais abrupta do que aquela proposta para $\Delta_1(P)$. Da fig. 5.11, a escolha de um $p_C^{Gap} \sim p_C$ implica em reduzir o intervalo de pressões, perto do QCP, onde o gap é linear. Do ponto de vista físico, isto estaria relacionado com o intervalo de pressões considerando como a região crítica quântica, onde as flutuações de spin são relevantes para o desaparecimento de T_N . Dentro desta suposição, uma linha reta para o gap do tipo $\Delta_2(p) = 0.2(p_C^{Gap} - p)$ (em Kelvins) e $p_C^{Gap} \sim 3.5$ GPa, é proposta de maneira que esta linha reta só é válida no intervalo de 3.1 GPa até a p_C . Assim, usando $\Delta_2(p) = 0.2(35-p)$ e $\Gamma/k_B = 2.55$ K na eq. (5.5) se reproduz satisfatoriamente, a dependência com a pressão de $T_N(p)$, inclusive em pressões fora do regime do gap linear, tal como pode ser observado na fig. 5.11.

O valor fisicamente razoável de Γ/k_B , a tendência de $A(p)$ e de $\Delta_2(p)$, propostos na vizinhança do QCP, são indicações de que o desaparecimento das excitações magnéticas e da ordem local, acontece na mesma pressão crítica $p_C \sim 3.6$ GPa. Outras linhas críticas $T_N(\Delta(p, p_C^{Gap}))$ são mostradas na fig. 5.12, reproduzidas com diferentes linhas retas $\Delta(p)$ e diferentes valores de p_C^{Gap} , tal que, $35 \leq p_C^{Gap} \text{ Kbar} \leq 37$. Como pode ser observado na fig. 5.12, todas estas linhas retas $\Delta(p)$ ainda reproduzem satisfatoriamente, o comportamento de T_N , indicando que, além da queda abrupta de $\Delta(p)$ na região crítica, a escolha de p_C próximo de 3.6 GPa é um bom valor de QCP extraído da análises dos dados de $R(T)$.

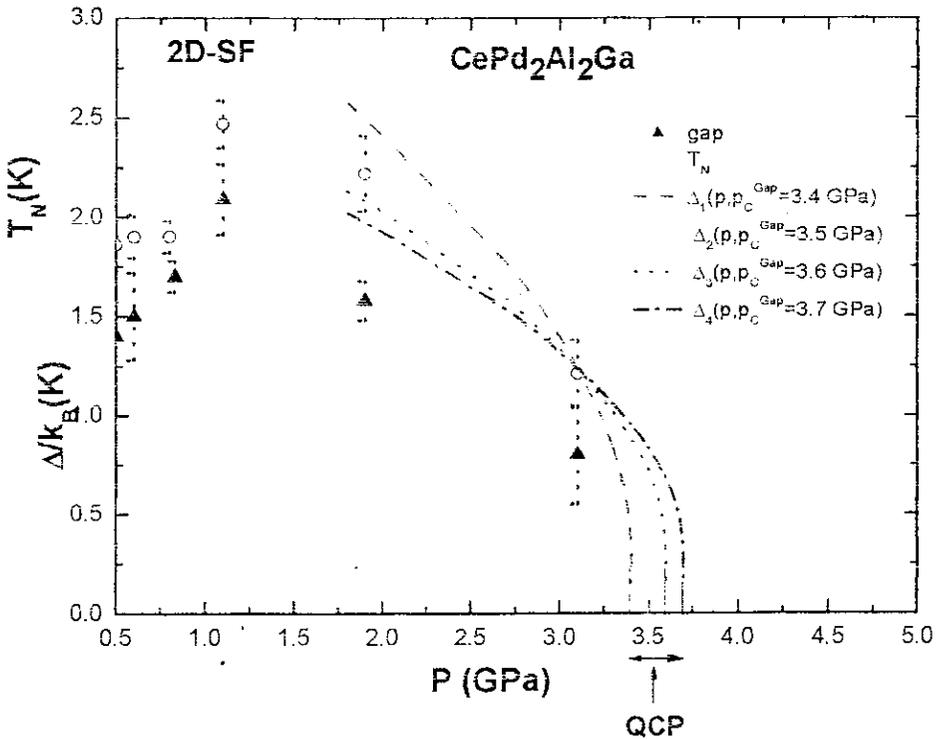


Figura 5.12. Curvas de $T_N(p)$ calculadas a partir da eq. (5.5), para diferentes expressões lineares do gap que depende da pressão e do valor de p_C^{Gap} escolhido.

Por outro lado, a figura 5.13 mostra uma comparação entre as linhas críticas $T_N(p)$ obtidas pela aproximação de MF para um sistema 3D ($z=1$) e, pela descrição das SW - 2D, com $\Delta(p) = 0.2(36-p)$. Embora a escassez de pontos experimentais impeça fazer alguma afirmação conclusiva sobre a validade de ambas as teorias na descrição do comportamento crítico de T_N , é possível sugerir, em princípio, que ambos modelos teóricos coincidem em mostrar um comportamento esperado para T_N na proximidade do QCP [28]. Em particular, o modelo de MF proporciona um critério válido para a escolha de $\Delta \propto |p-p_C|$, associado com as

ondas de spin amolecidas perto do regime de instabilidade magnética [24]. Esta linearidade Δ é usada para descrever T_N com base nas excitações magnéticas bidimensionais (2D). O fato de considerar, por um lado, o modelo de MF para um sistema 3D e, por outro, uma abordagem de SW de um sistema 2D, pode levar a uma contradição, a menos que, consideremos a relevância da escala de energia das interações fundamentais com respeito à distância ao QCP [22-24].

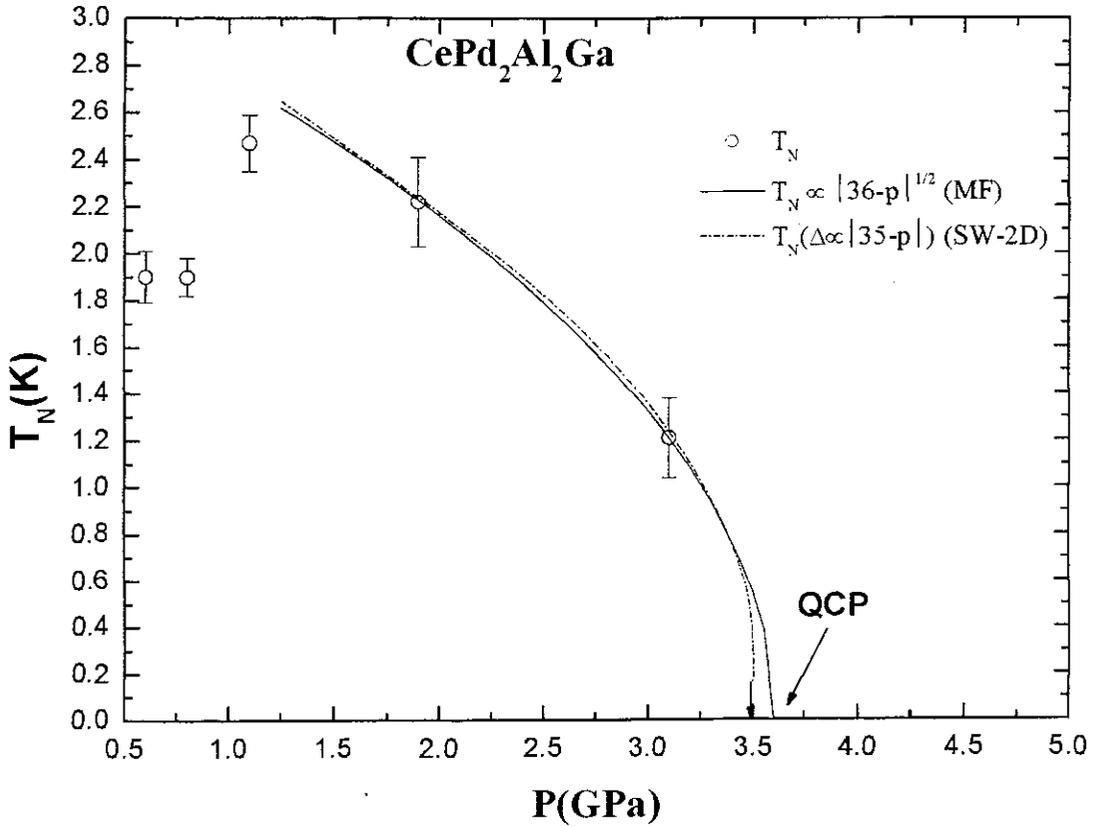


Figura 5.13. Comparação entre as curvas previstas pelos modelos teóricos, campo médio (MF) e as ondas de spin em duas dimensões (SW-2D), e os valores experimentais de T_N obtidos a partir da análise dos dados de $R(T)$

Seguindo a trajetória da linha crítica T_N e, para distâncias não tão próximas ao QCP, $|\delta| > 0$, $T > 0K$, esperaríamos que a natureza das flutuações magnéticas seja mais termodinamicamente relevante que as quânticas e, portanto, uma abordagem clássica do comportamento crítico pode ser feita. Neste intervalo de pressões, a teoria de MF deveria ser o modelo mais apropriado para descrever a criticalidade da fase AF do CePd₂Al₂Ga; dando ao material, além de um caráter 3D na suas interações magnéticas, valores característicos de $z=1$ e $\Delta \propto |\delta|$; este último usado como parâmetro de controle do QCP [25]. Continuando com

a trajetória de T_N , para distâncias muito próximas ao QCP, quer dizer $|\delta| \rightarrow 0$ e $T \rightarrow 0K$, a natureza das flutuações magnéticas é essencialmente de origem quântica e, portanto, a abordagem dentro das previsões de MF não seria apropriada. Além disso, nesta região crítica, espera-se que a dimensionalidade das flutuações de spin tenham um papel fundamental no comportamento crítico de T_N . A teoria das SF é o cenário físico mais apropriado para extrair informações sobre a dimensionalidade das flutuações mas, no presente caso, não poderiam ser usadas devido à escassez de pontos experimentais na região crítica quântica (ver fig. 5.8). No entanto, o marco teórico proposta pela simples relação (5.5), dentro de um modelo de onda de spin 2D, proporciona os argumentos necessários para adotar o caráter bidimensional das flutuações magnéticas no $CePd_2Al_2Ga$. Porém, o mecanismo das ondas de spin amolecidas e das excitações magnéticas bidimensionais no regime da instabilidade pode ser usado como candidato para descrever o comportamento crítico quântico de $T_N(p)$ no $CePd_2Al_2Ga$. Este mecanismo também foi usado para discutir a criticalidade quântica dos compostos AF $CeCoGe_{2.25}Si_{0.75}$ [14] e $CeRh_2Si_2$ [29], sugerindo que pode ser adotado em todos aqueles sistemas férmions pesados AF que apresentem uma queda abrupta de T_N perto do QCP.

Por outro lado, uma mudança no espectro dos magnons AF pode ser esperada ao se aproximar do QCP. Em pressões não suficientemente próximas do QCP, o sistema pode ser considerado de 3D, com $z=1$ como um expoente crítico que caracteriza as flutuações magnéticas. Aproximando-se do QCP e $T \rightarrow 0K$, encontra-se um cenário físico de SF-2D que muda o comportamento do gap das ondas de spin, tornando-as mais isotrópicas em regiões muito próximas do QCP ($\Delta=0$ no QCP). Deste modo, esperaríamos que a mudança na dimensionalidade das flutuações de spin, de 3D para 2D, levassem a um “*crossover*” no expoente dinâmico de $z=1$ para $z=2$ ao se aproximar ao QCP, como é esperado para um material quase AF [22, 23]. Uma redução na dimensionalidade das flutuações de spin assim como o “*crossover*” no expoente dinâmico z , foi proposta por M. Continentino para explicar o comportamento crítico no férmion pesado AF $CeCoGe_{2.25}Si_{0.75}$ [14]. Este mesmo argumento poderia ser também válido para o $CePd_2Al_2Ga$, porém, experimentos adicionais de resistência elétrica sob pressão na região próxima ao QCP devem ser feitos para confirmar esta suposição [29].

A análise apresentada considera que os momentos magnéticos locais dos íons de Ce não estão extintos (*unquenched moments*) até o QCP. Em nossos experimentos, isto é sustentado pela presença de um gap diferente de zero, garantindo o ordenamento de longo alcance, pelo menos até 3.1 GPa. Aliás, a tendência constante do coeficiente $A(p)$ permite

assumir que a rigidez das ondas de spin ϕ permanece constante até o QCP. Assim, os momentos locais flutuam bidimensionalmente no QCP, tendo um papel fundamental nas propriedades físicas do estado NLF [14, 21-24]. Um cenário físico distinto não poderia ser considerado no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, isto é, com seus momentos locais magneticamente extintos (*quenched moments*) antes de atingir o QCP e abaixo de uma temperatura finita, escalada por T_K (temperatura de Kondo). Neste cenário, T_K permanece finito enquanto T_N desaparece, os momentos locais são absorvidos pelas bandas de condução metálicas antes de atingir o QCP e, portanto, não se esperaria que as flutuações de spin fossem relevantes para a descrição do comportamento crítico. A evidência de momentos locais não extintos foi proposta por A. Schröder e col. [31], que baseados em medidas de difração de nêutrons no sistema férmion pesado AF $\text{CeCu}_{6-x}\text{Au}_x$, reportaram a existência de momentos locais flutuando bidimensionalmente no QCP ($x=0.1$).

5.2.1.3 $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ em pressões acima do QCP.

Do ponto de vista físico, os diagramas de fase nos férmions pesados são bastante interessantes para o estudo dos fenômenos críticos quânticos que acontecem na vizinhança do QCP, isto é, nos lados magnético e paramagnético. Como foi discutido até agora, no lado magnético do diagrama, as flutuações de spin bidimensionais constituem um cenário físico apropriado para explicar o colapso da ordem AF. Em princípio, deveria se esperar que este mecanismo crítico fosse também observado no outro lado do diagrama, ou seja, acima do QCP. Infelizmente, devido ao alto valor do gradiente de pressões observado na única pressão acima do QCP, $p \sim (4.7 \pm 1.2) \text{ GPa}$, nenhuma análise quantitativa, rigorosa e confiável pode ser feita. Porém, indícios de que a pressão em 4.7 GPa se encontra acima do QCP podem ser encontrados comparando a dependência de $R(T)$ vs T^2 nesta pressão com aquelas em pressões menores. De acordo com diagrama de fase dos férmions pesados que perdem a sua ordem magnética no QCP, é de se esperar que do lado paramagnético, o material recupere seu comportamento líquido de Fermi (FL) mostrando uma dependência $R(T)=AT^2$ abaixo de uma temperatura característica chamada de temperatura de coerência (T_{coh}) [21]. A temperatura que escala com este estado FL irá aumentando à medida que o material se afasta do QCP.

A figura 5.14 (a) mostra um análise das curvas de $R(T)$ vs T^2 para pressões próximas a $p = 4.7 \text{ GPa}$. Os valores das temperaturas (T^*), abaixo da qual as curvas $R(T)$ apresentam uma dependência com T^2 , representadas na figura 5.14 (b).

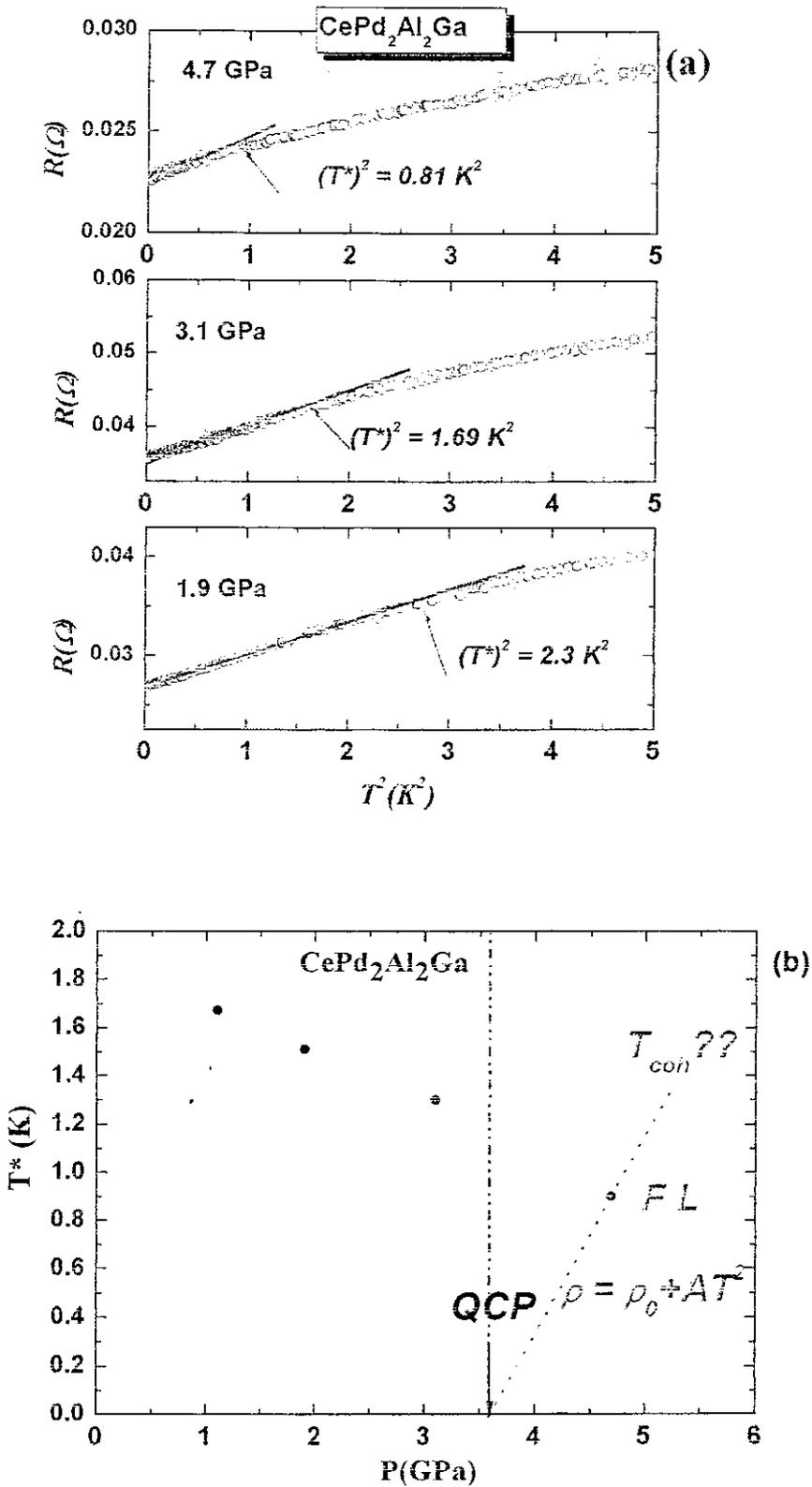


Figura 5.14 : (a) $R(T)$ vs T^2 para diferentes pressões. A seta indica o limite máximo do comportamento com T^2 (T^*). (b) Representação de T^* em função da pressão. A dependência de T^* com a pressão está em contradição com o esperado para um estado líquido de Fermi (FL) na fase paramagnética, indicando que o material se encontra na fase magnética em pressões menores que o QCP.

Como podemos observar os valores de T^* diminuem quando a pressão aumenta, o que é contraditório com a suposição de um estado líquido de Fermi neste regime de pressões. Isto pode ser uma indicação de que o férmion pesado $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ se encontra do lado magnético do diagrama, pelo menos até 3.1 GPa, sendo que acima do QCP, o material recupera seu estado FL, com uma temperatura de escala característica, como a mostrada na fig. 5.14 para $p = 4.7$ GPa. Aliás, o fato de considerar a pressão $p = 4.7$ GPa acima do QCP guarda está de acordo com a análise dos expoentes efetivos mostrado na fig. 5.7. Certamente, outras medidas de resistência elétrica em pressões acima do QCP devem ser feitas a fim de definir uma dependência com a pressão de T_{coh} , de maneira que, possamos ter maior informação tanto do diagrama de fase, como sobre os mecanismos físicos envolvidos próximo do QCP. Assim mesmo, o lado não magnético da informações relevantes sobre o cenário físico que governa a instabilidade magnética.

Por um lado, indo do lado magnético para o QCP, o modelo de Hertz propõe um cenário físico de ondas de spin amolecidas onde, Δ é considerado um parâmetro de controle da distância ao QCP $|\delta|$. Aqui, se espera do lado paramagnético, que o expoente dinâmico $z=1$ esteja associado às flutuações de origem quântica, de maneira que, $T_{\text{coh}} \propto |\delta|^{1/2}$ [23]. Por outro lado, indo do lado não magnético para o QCP, Sachdev e Chubukov propõem um modelo alternativo para o caso de um FL quase AF [32, 33]. Na fase magnética desordenada, o sistema pode ser considerado como sendo governado por excitações magnéticas amolecidas devido à conversão em partículas elétron-buraco (*electron-hole*); as excitações elementares são os *paramagnons*, que tem uma participação importante no comportamento crítico. Dentro deste cenário físico, se espera um *crossover* no expoente dinâmico $z=1$ para $z=2$ ao se aproximar do QCP. Uma vez que a universalidade dos expoentes críticos se estende em ambos lados do QCP, é de se esperar que este *crossover* para $z=2$ esteja associado à classe de universalidade do lado magnético para um quase AF [22, 32]. Com a finalidade de comprovar estes dois diferentes cenários físicos no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, será necessário realizar novas medidas de resistência sob pressão para valores acima de 3 GPa.

5.3 Conclusões

As medidas de resistência elétrica a ultra baixas temperaturas no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ revelam a existência de uma fase magneticamente ordenada até 3.1 GPa. A contribuição principal à resistência elétrica é dada pelas excitações magnéticas. De nossos dados de resistência elétrica obtivemos a variação com a pressão da temperatura de ordem magnética T_C (FM) e T_N (AF), o coeficiente A , proporcional à rigidez das ondas de spin, e o gap do espectro de ondas (Δ). Estes parâmetros definem três diferentes intervalos de pressões, onde as propriedades físicas são completamente diferentes.

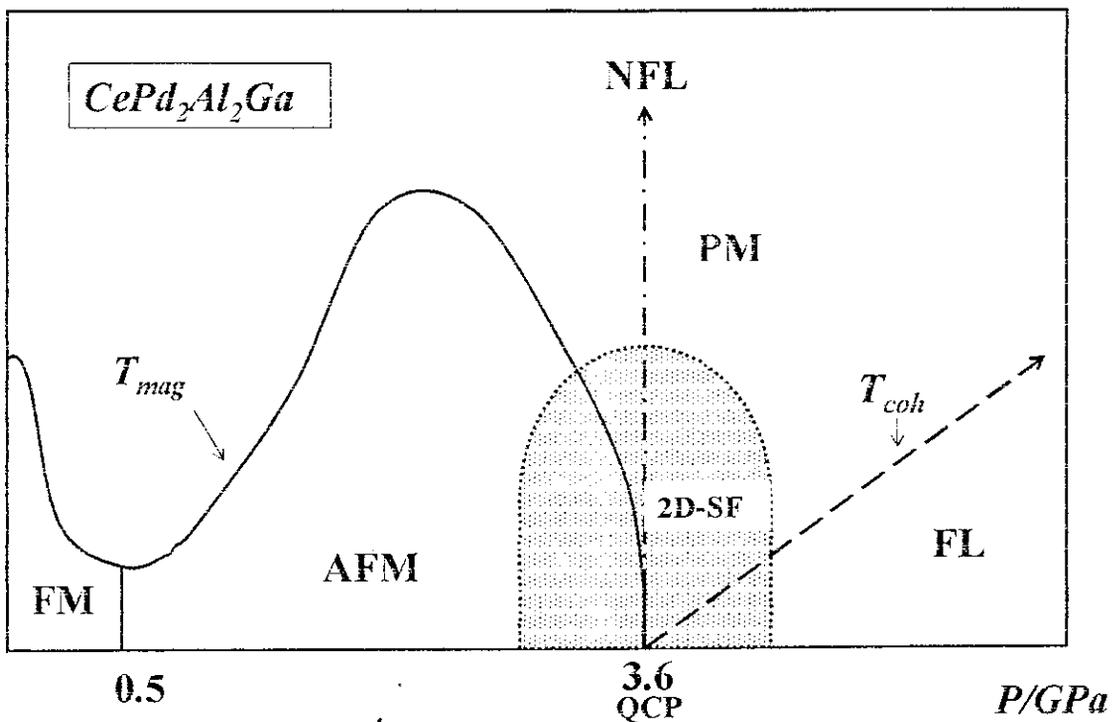


Figura 5.15. Diagrama de fase tentativo para o férmion pesado $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ proposto a partir da análise de $R(T, P)$. FM = Ferromagnético, AF=antiferromagnético, PM = paramagnético, FL = Líquido de Fermi, NFL = Não Líquido de Fermi e, 2D-SF = Flutuação de spin bidimensional. T_{mag} ~ temperatura de ordem magnética e T_{coh} ~ Temperatura de coerência.

A primeira região é definida em baixas pressões, presumivelmente abaixo de 0.6 GPa. Neste regime de pressões, o valor do gap das ondas de spin não permite diferenciar entre os estados FM e AF. A consideração de uma ordem FM para $p < 0.6$ GPa vem principalmente das medidas de susceptibilidade. Argumento em favor da mudança do tipo de ordem magnética está baseado no desaparecimento da contribuição à resistência elétrica do espectro de onda de spin FM, acima de 0.5 GPa. A mudança no tipo de ordem magnética, de FM para AF pode ser explicada pelas características peculiares do arranjo dos momentos magnéticos de Ce na

estrutura cristalina hexagonal do tipo PrNi_2Al_3 . Os momentos magnéticos de Ce estão alinhados FM nos planos hexagonais da célula unitária. O ordenamento de longo alcance (LRO) é mediado pelo acoplamento RKKY, através das capas intermediárias de Al/Ga. O LRO pode ser condicionado para mudar a ordem de FM para AF, mediante o controle da interação anisotrópica RKYY, via o parâmetro de rede c .

O segundo regime de pressões, $0.6 \leq p/\text{GPa} < 3.5$ considera, em baixas temperaturas, a presença das ondas de spin AF. A temperatura de Néel $T_N(p)$ e o gap $\Delta(p)$ seguem o mesmo comportamento esperado para muitos férmions pesados, de maneira que, extrapolando ambas grandezas físicas, se consegue estimar o QCP em $p_C = (3.5 \pm 0.4)$ GPa. Acima de $p \sim 1.9$ GPa encontramos que $\Delta(p)$ assim como $T_N(p)$ diminuem com a pressão, enquanto que o acoplamento magnético efetivo $\Gamma \propto (D/a)$ experimenta um pequeno aumento, devido ao decréscimo do parâmetro de rede (D é constante pois $A(p) \propto 1/D^3$). A correlação entre a temperatura de Néel e o gap das ondas de spin sugere que, no intervalo de pressões próximo ao QCP, o sistema seja dominado pelas flutuações de spin bidimensionais, tornando o sistema mais isotrópico. Assim mesmo, a presença do gap garante o ordenamento de longo alcance perto ao p_C . O caráter bidimensional das flutuações de spin no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ está associado ao arranjo dos momentos magnéticos de Ce numa estrutura laminar AF, onde os planos bases são paralelos ao eixo c .

Finalmente, o terceiro intervalo de pressão é definido acima de 3.5 GPa, onde se espera que o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ passe a um estado paramagnético. Poderíamos esperar que o mecanismo das flutuações de spin bidimensionais tomasse conta do comportamento crítico acima do QCP.

Com o objetivo de definir a região crítica quântica, dominada pelas flutuações de spin bidimensionais, novos experimentos de resistência elétrica sob pressão serão realizados para $p > 3$ GPa. Um estudo mais detalhado dos fenômenos críticos quânticos como o comportamento não líquido de Fermi (NFL), a recuperação para o estado líquido de Fermi (FL), permitiriam entender melhor a natureza das flutuações de spin. Quanto ao lado não magnético, seria interessante investigar evidências do *crossover* no expoente dinâmico z , de $z=1$ para $z=2$, que representa a classe de universalidade dos expoentes críticos associados a uma transição AF-QCP e relacioná-lo com a queda linear do gap no lado magnético. A figura 5.15 mostra um diagrama de fase tentativo para o $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$.

REFERÊNCIAS

- [1] E. Bauer, R. Hauser, E. Gratz, G. Schaudy, M. Rotter, A. Lindbaum, D. Gignoux, D. Schmitt. *Z. Phys. B.* 92 (1993), 411.
- [2] T. Burghardt, A. Eichler, S. Süllo, J. A. Mydosh. *Physica B* 259-261 (1999), 99.
- [3] H. Kitazawa, C. Schank, S. Thies, B. Seidel, C. Geibel and F. Steglich. *J. Phys. Soc. Japan*, 61, 5, (1992), 1461.
- [4] B. Ludoph, S. Süllo, B. Becker, G. J. Nieuwenhuys, A. A. Menovsky, J. A. Mydosh. *Physica B* 223 & 224 (1996), 351.
- [5] R. Hauser, E. Bauer, A. Galatanu, A. Indigner, M. Maikis, H. Kirchmayr, D. Gignoux, D. Schmitt. *Physica B* 206 & 207 (1995), 231.
- [6] T. Burghardt, E. Hallmann, A. Eichler, *Physica B* 230 - 232 (1997) 214.
- [7] K. H. Fischer. *Z. Phys. B - Condensed Matter* 74, (1989) 475.
- [8] S. Doniach, *Phys. B* 91 (1977), 231.
- [9] H. Neemann, A. Eichler, S. Süllo, J. A. Mydosh. *Acta Phys. Polonica*, 34, N° 2, 2003 (1085).
- [10] J. P. Sanchez and M. M. Abd-Elmeguid. *Hyperfine Interactions* 128 (2000), 137.
- [11] Grimvall, G.: *The electron-phonon interaction in metals*. Amsterdam, New York, Oxford: North-Holland (1981).
- [12] H. Neemann et al., private communication.
- [13] A. Demuer, D. Jaccard, I. Sheikin, S. Raymond, B. Salce, J. Thomasson, D. Braithwaite and J. Flouquet. *J. Phys.: Condens. Matter* 13 (2001) 9335-9347.
- [14] M. A. Continentino, S. N. de Medeiros, M. T. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch. *Phys. Rev. B*, 64 (2001), 012404-1.

- [15] J. Plessel. Tese de doutorado. Hochdruckuntersuchungen an Yb-Kondo-Gitter-Systemen in der Nähe einer magnetischen Instabilität. Universität zu Köln, Germany (2001).
- [16] O. Trovalli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, P. Gegenwart, M. Lang, G. Sparn, F. Steglich. *Phys. Rev. Lett* 85, 3 (200), 626.
- [17] N. H. Andersen and H. Smith. *Phys. Rev B*. 19 (1979), 1 .
- [18] M. B. Fontes, J. C. Trochez, B. Giordanengo, S. L. Bud'ko, D. R. Sanchez, E. M. Baggio-Saitovitch, M. A. Continentino. *Phys. Rev. B*. 60, 9 (1999), 6781.
- [19] S. N. de Medeiros, M. A. Continentino, M. T. D. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch, A. Rosch, A. Eichler.
- [20] S. A. M. Mentink, G. J. Nieuwenhuys, A. A. Menovsky, J. A. Mydosh. *Phys. Rev. B*. 49 (1994) 15759.
- [21] M. A. Continentino. *Quantum Scaling in Many-Body Systems*, edited by World Scientific Lecture Notes in Physics-Vol.67 (2001).
- [22] A. J. Millis, *Phys. Rev. B* 48, 7183 (1993).
- [23] T. Moriya, T. Takimoto. *J. Phys. Soc. Jpn* 64, 3 (1995), 960.
- [24] J. Hertz, *Phys. Rev. B*, 14 (1974) 1165.
- [25] J. D. Thompson and J. M. Lawrence. *Handbook on the Physics and Chemistry of Rare Earths*, edited by K. A. Gschneider, Jr., L. Eyring, G. H. Lander, and G. R., Choppin (Elsevier Science, 1994), Vol. 19, Chap. 133, p. 383.
- [26] E. Bauer, G. Schaudy, G. Hilscher, L. Keller, P. Fischer, A. Dönni. *Z. Phys. B* 94, (1994) 359.
- [27] S. Mitsuda, T. Wada, K. Hosoya, H. Yoshizawa, H. Kitazawa. *J. Phys. Soc. Jpn*, 61, 12 (1992), 4667.
- [28] J. Larrea J. , A. Eichler, A. D. Alvarenga, M. B. Fontes, E. Baggio-Saitovitch. SCES'02. Book of abstracts, pág. 65 (2002).
- [29] R. Movshovich et al. *Phys. Rev B* 53, 8241 (1996).

- [30] J. Larrea J. , A. Eichler, A. D. Alvarenga, M. B. Fontes, E. Baggio-Saitovitch. To be published
- [31] A. Schöder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H.v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, *Nature (London)* 407 (2000), 351.
- [32] S. Sachdev, A. V. Chubukov and A. Sokol. *Phys. Rev. B* 51, 21 (1995), 14874.
- [33] A. V. Chubukov, S. Sachdev and J. Ye. *Phys. Rev. B* 49, 17 (1994), 11919.

CAPÍTULO 6

COMPORTAMENTO CRÍTICO QUÂNTICO DA REDE KONDO FERROMAGNÉTICA CePt

6.1 Introdução

O cenário físico do ponto crítico quântico (*quantum critical point* = QCP) é independente do tipo de ordem magnética que ocorre nos férmions pesados mas, as leis que descrevem alguns parâmetros em baixas temperaturas e próximo ao QCP podem ser diferentes para ordem ferromagnética (FM) ou antiferromagnética (AF) [1- 4]. Apesar do grande número de férmions pesados de Ce, com ordem AF, investigados próximo à instabilidade magnética, poucos sistemas redes de Kondo FM (FM - KL) tem sido abordados. Isto é devido à escassez de sistemas FM-KL e do fato destes sistemas FM apresentarem diagramas de fases peculiares, onde uma fase AF pode estar vizinha ou imersa na fase FM. Este é o caso dos férmions pesados CeRu₂Ge₂ [5] e CePd₂Al₂Ga [6]. Assim, uma transição direta da fase FM para QCP parece ser uma exceção.

Os compostos, CePdSb e CeAg, são conhecidos como redes de Kondo FM. Ambos tem sido investigados sob altas pressões [7], e a dependência com a pressão da temperatura de Curie (T_C) neste materiais pode ser descrita dentro do diagrama de Doniach para as redes Kondo [9]; quer dizer, T_C aumenta inicialmente, alcança um valor máximo, e diminui novamente. Em ambos os compostos o sinal ferromagnético nas medidas de susceptibilidade $\chi(T)$ desaparece em certa pressão antes que T_C vá a zero. Isto parece ser uma indicação da mudança para outro tipo de ordem antes de alcançar o estado paramagnético- ou talvez para uma transição de primeira ordem [7, 8].

Neste capítulo reportamos o estudo do comportamento crítico quântico da rede Kondo FM CePt, o qual possui um $T_C \sim 5.8$ K, na pressão ambiente ($p=0$). Medidas de resistência elétrica sob pressão foram realizadas sobre uma amostra policristalina de CePt. A análise dos

dados de resistência elétrica $R(T)$ na proximidade do QCP serão abordados dentro de uma teoria de onda de spin (SWT) e das flutuações de spin (SFT). Os resultados obtidos desta análise mostram, pela primeira vez, uma transição direta ferromagnética-QCP numa rede Kondo FM de Ce. Tentaremos explicar o comportamento crítico da transição FM-QCP dentro de um cenário físico que contemple as flutuações de spin FM de caráter bidimensional (2D) e os modos de ondas de spin amolecidas (*soft modes*).

6.2 Apresentação das medidas de resistência elétrica, $R(T)$ para o CePt.

A figura 6.1 mostra as curvas da resistência elétrica $R(T)$ do CePt em diferentes pressões, normalizadas ao valor da $R(T)$ à temperatura ambiente (300 K), $R(T)/R(300\text{ K})$. A curva da resistência elétrica do composto LaPt, não magnético e isoestrutural ao CePt, também está incluída nesta figura. Os dados da resistência elétrica do LaPt são usados para a análise da contribuição elétron-fônon do CePt, tal como será visto mais adiante.

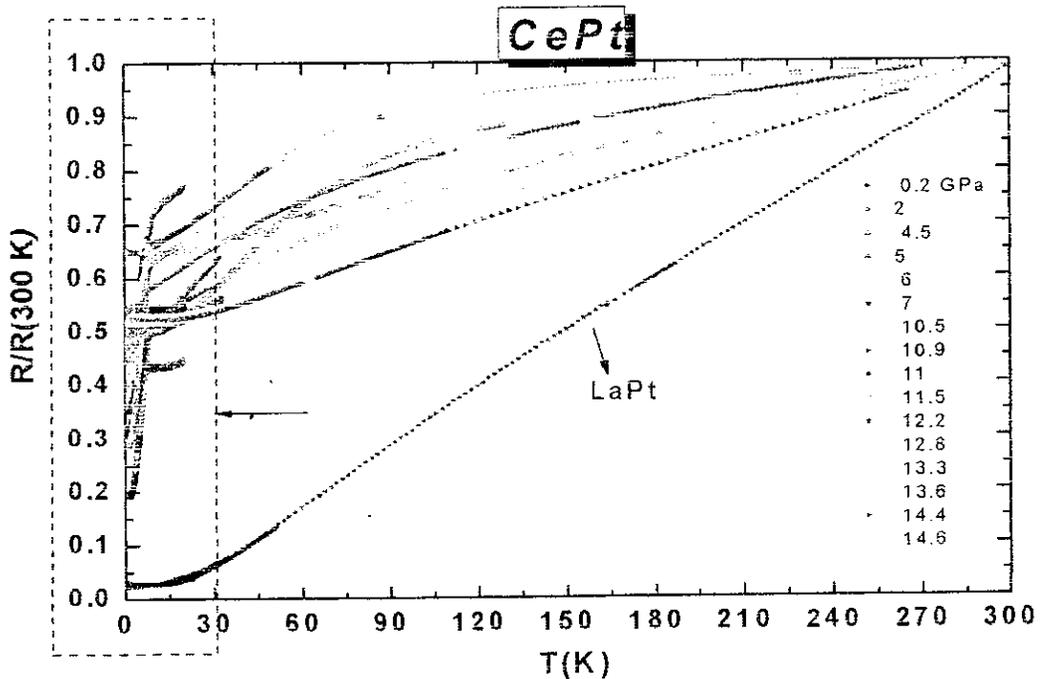


Figura 6.1 Curvas de resistência elétrica da rede Kondo CePt e do composto não magnético LaPt, normalizadas à temperatura ambiente $R(T)/R(300\text{ K})$, em diferentes pressões. O retângulo pontilhado mostra o intervalo de temperaturas relevante para observar os fenômenos críticos quânticos.

Muitas das medidas de resistência elétrica foram realizadas seguindo uma seqüência onde a pressão é incrementada, aproximadamente até 15 GPa. Um relaxamento da pressão feito dentro de um intervalo limitado levou a um aumento na distribuição de pressão. A figura 6.1 mostra um comportamento típico para as curvas de resistência elétrica de CePt para intervalo de pressões $p < 3$ GPa, e também do LaPt ($p=0$), reportado por Itoh e col [10]. Por outro lado, a figura 6.2 mostra o intervalo de temperaturas de interesse para o estudo dos fenômenos críticos quânticos. Da comparação entre as figuras fig. 6.1 e 6.2, podemos observar claras mudanças no comportamento da $R(T)$ com a pressão, tanto para altas como para baixas temperaturas, sendo uma indicação que os fenômenos físicos envolvidos podem ser abordados em cenários físicos independentes.

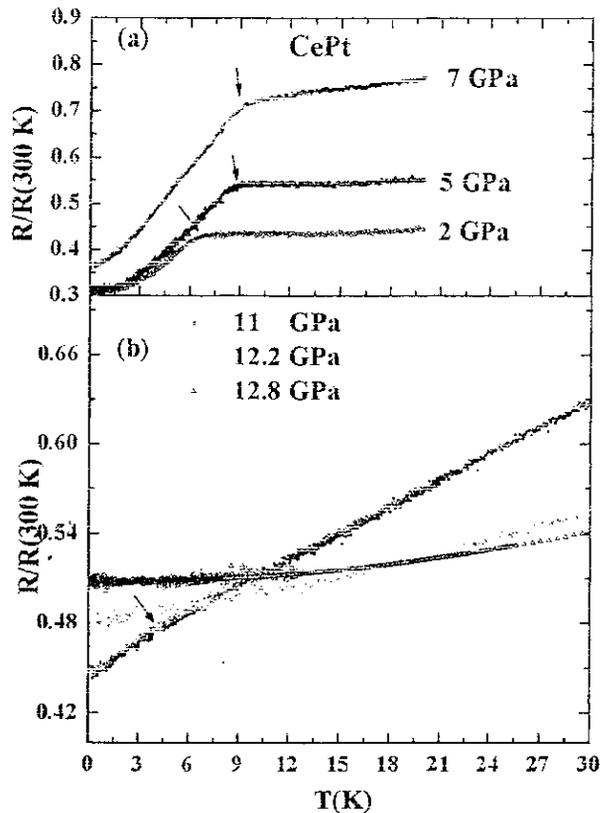


Figura 6.2 Medidas de $R(T)$ do CePt no intervalo de baixas temperaturas, $T < 30$ K, para algumas pressões representativas. (a) Abaixo de 11 GPa, (b) Acima de 11 GPa. As setas indicam as posições onde as inflexões em $R(T)$ são observadas e associadas a T_C .

Antes de continuar a discussão das medidas de resistência elétrica do CePt em baixas temperaturas (< 30 K), será feita a subtração da contribuição elétron-fonón à $R(T)$, pois este procedimento permite ressaltar melhor a contribuição magnética da resistividade elétrica $\rho_m(T)$.

Inicialmente, podemos estimar a resistividade elétrica do CePt (ρ_{CePt}) e do LaPt (ρ_{LaPt}) assumindo formas geométricas regulares para as amostras. Assim, a resistividade elétrica sem contribuição por espalhamento de fônons ($\rho - \rho_{\text{ph}}$) pode ser determinada por: $\rho - \rho_{\text{ph}}(T) = \{(\rho_{\text{CePt}}) - (\rho_{\text{LaPt}})\}$. As curvas $\rho - \rho_{\text{ph}}(T)$ para diferentes pressões são mostradas na figura 6.3

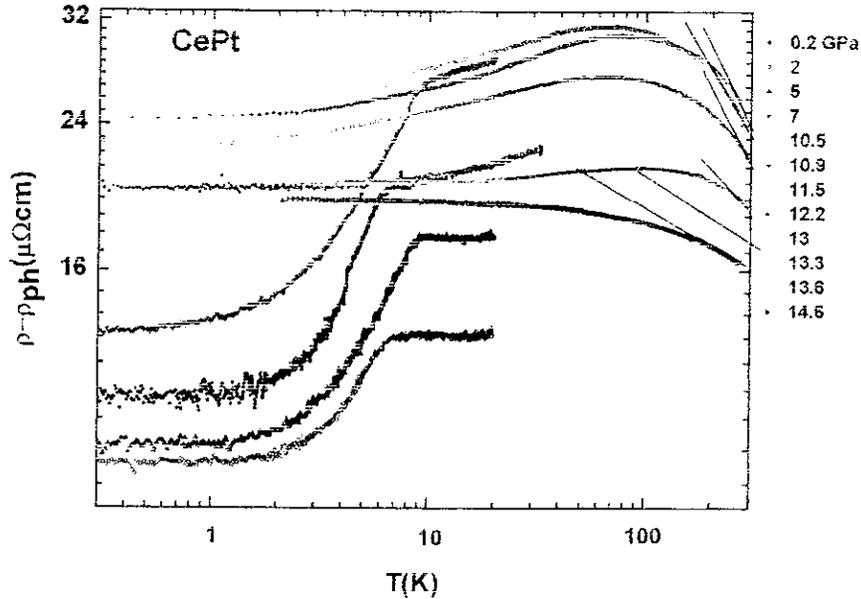


Figura 6.3 Dependência com a temperatura da resistividade elétrica sem a contribuição elétron-fônon ($\rho - \rho_{\text{ph}}$). As linhas retas indicam uma dependência $-\log T$ em altas temperaturas.

A figura 6.3 mostra que $\rho - \rho_{\text{ph}}$ tem um comportamento linear tipo $-\log T$ em altas temperaturas, sendo uma indicação da presença da blindagem Kondo influenciada por campo cristalino (CF), usualmente encontrada em sistemas de rede Kondo com ordem magnética [10, 11]. A posição onde $\rho - \rho_{\text{ph}}$ é máxima aumenta com a pressão, indicando o aumento da blindagem Kondo [12]. Assim mesmo, a pendente das linhas retas apresenta valores maiores em $p < 12$ GPa. Isto estaria associado aos diferentes estados de ordem magnético e paramagnético, encontrados em lados opostos a $p \sim 12$ GPa. Como neste capítulo estamos interessados no estudo dos fenômenos críticos quânticos, presentes em baixas temperaturas e próximos ao QCP, o comportamento da rede Kondo sob influência de CF não será abordado. Como veremos mais adiante, a presença do CF na rede de Kondo não influencia os cenários físicos envolvidos no QCP.

Por outro lado, as figuras 6.2 e 6.3 mostram a presença de inflexões (*bends*) nas curvas de $R(T)$ para $p < 12.2$ GPa, sendo que, acima desta pressão estas inflexões são suprimidas. De acordo com as medidas de susceptibilidade, estas inflexões estariam associadas a uma transição de tipo ferromagnético (FM) [13]. A figura 6.4 mostra as medidas de

susceptibilidade magnética ac - $\chi(T)_{AC}$, para distintas pressões, obtidas por Burgadht e col [13,14], do Institut für Technische Physik - Technische Universität Braunschweig (Alemanha). Estas medidas foram feitas usando uma célula de diamante (DAC), que consegue atingir pressões até 12 GPa [13].

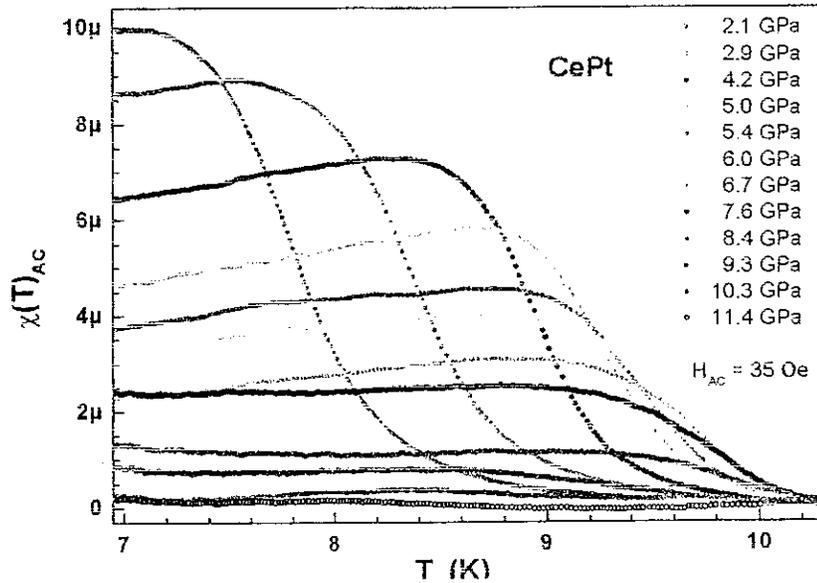


Figura 6.4. Curvas de susceptibilidade magnética ac (χ_{AC}) para diferentes pressões. Estas medidas foram realizadas pelo grupo do Institut für Technische Physik - Technische Universität Braunschweig (Alemanha)[13].

As curvas de $\chi(T)_{AC}$ mostram diferentes máximos com a pressão, cujas posições são consideradas como os valores de T_C . A forma de $\chi(T)_{AC}$ não muda com a pressão mas, seus valores absolutos diminuem por mais de ordem de magnitude, em altas pressões. Este comportamento é uma evidência de que o tipo de ordem magnética não muda, pelo menos no regime estudado $p < 12$ GPa. A diminuição do valor absoluto da sinal de $\chi(T)_{AC}$ estaria associada à redução dos momentos magnéticos pelo aumento da blindagem Kondo. No entanto, nenhuma análise quantitativa é feita dos dados $\chi(T)_{AC}$ devido à grande contribuição do sinal de *background* da célula de pressão DAC. Assim mesmo, a ref. [13] apresenta o estudo da dependência com campo magnético de $\chi(T)_{AC}$ em $p = 0$. O comportamento observado é similar ao encontrado frequentemente em materiais ferromagnéticos: O máximo de $\chi(T)_{AC}$ se desdobra em dois, que se movimentam em sentidos contrários com aumento do campo. Isto é atribuído à existência de domínios ferromagnéticos no material [13].

Considerando a informação proporcionada pelas medidas de susceptibilidade, a perda das inflexões nas medidas de resistência elétrica são atribuídas à supressão de T_C , e como consequência, à perda da ordem FM próximo de $p = 12$ GPa. Na fig. 6. 2 (b), em $p = 11$ GPa,

observamos acima de $T_c \sim 4\text{K}$, um comportamento quase linear de $R(T)$ com T , sendo uma indicação da presença de um comportamento não líquido de Fermi (NFL), característico de regiões próximas ao QCP. Além disso, acima de $p \sim 12\text{ GPa}$, as curvas $R(T)$ mostram uma dependência do tipo lei de potência T^ϵ , onde $1 < \epsilon < 2$ sugerindo a presença de um comportamento não líquido de Fermi (NFL) e, $\epsilon=2$ para o estado líquido de Fermi (FL). Isto é uma indicação de que o composto CePt sofre uma transição magnética-não magnética, passando pelo QCP próximo de $\sim 12\text{ GPa}$ [15].

Uma análise cuidadosa dos dados de resistência elétrica em $p = 12.2\text{ GPa}$ no composto CePt é mostrado na fig. 6.5.

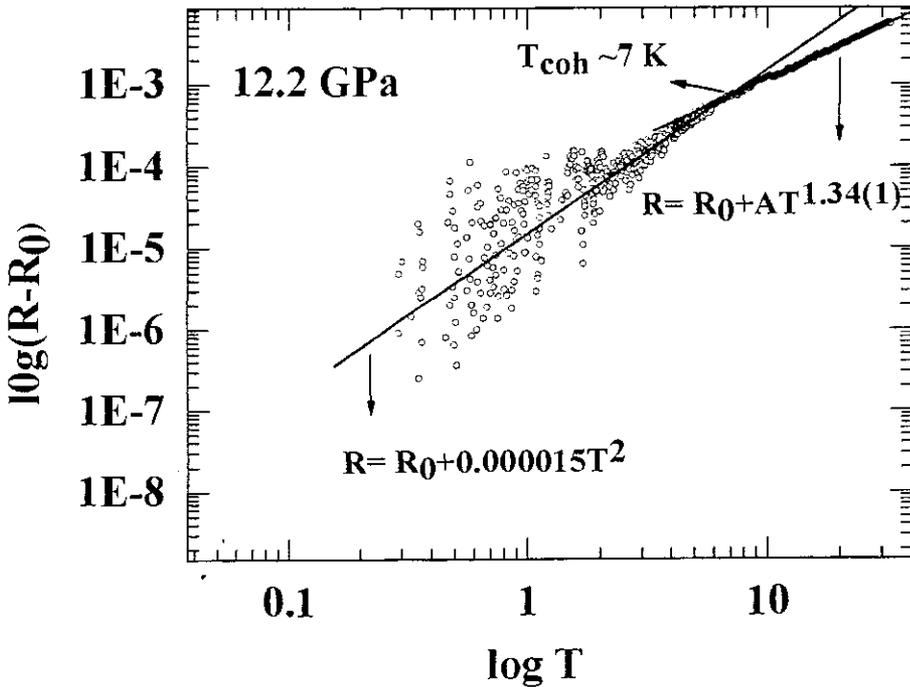


Figura 6.5 $\log(R-R_0)$ vs. $\log T$ para o CePt na pressão $p = 12.2\text{ GPa}$. R_0 é a resistência residual. A análise feita com a lei $\Delta R = R - R_0 \propto T^\epsilon$ mostra dois diferentes intervalos de temperaturas, onde $\epsilon=2$, para $T < 7\text{ K}$, e $\epsilon=1.34$ para, $7 < T < 30\text{ K}$.

Como se observa na fig. 6.5, a análise de $\Delta R = (R - R_0) \propto T^\epsilon$ apresenta dois intervalos de temperatura com dependência linear em T^ϵ , onde o expoente ϵ tem diferentes valores. No caso de $\epsilon=2$ indica que o material CePt está caracterizado por um comportamento FL até 7 K . Para o caso de $\epsilon = 1.34(1)$ corresponde a um comportamento NFL, dentro de um intervalo de temperaturas entre $7\text{K}-30\text{ K}$, caracterizado pelas flutuações de spin FM de caráter bidimensional (2D) [16].

Por outro lado, a dependência com T^2 das curvas de resistência elétrica do CePt para $p > 12$ GPa é mostrada na fig. 6.6. Da análise destas curvas podemos obter o valor da temperatura de coerência (T_{coh}), temperatura abaixo da qual o sistema se comporta com um líquido de Fermi [17]. A representação de $R(T)$ com T^2 facilita a identificação de T_{coh} pois define o afastamento linear para $T > T_{coh}$.

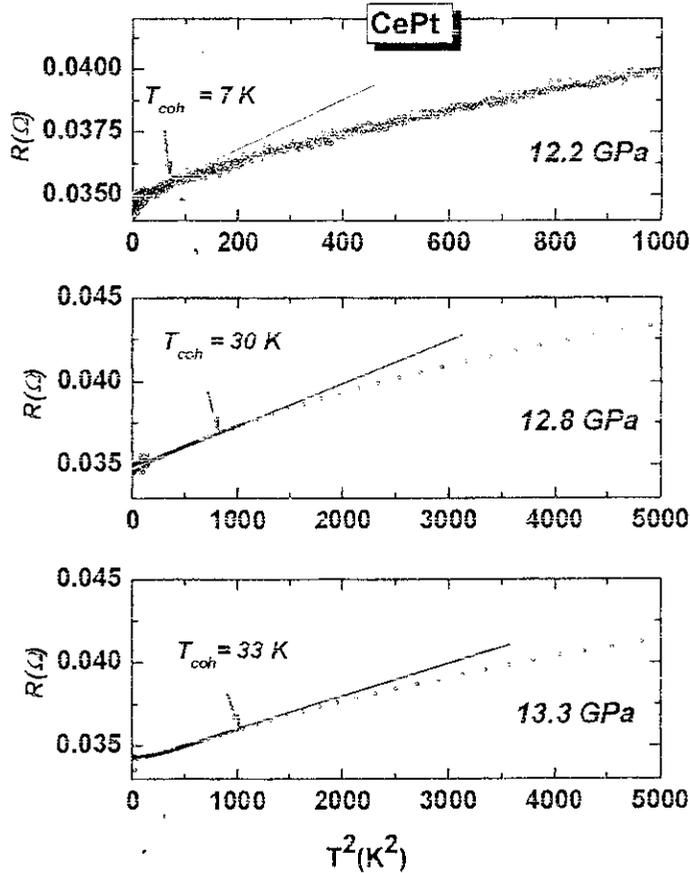


Figura 6.6. Resistência elétrica $R(T)$ vs. T^2 . T_{coh} é a temperatura de coerência abaixo da qual o sistema se comporta como um líquido de Fermi, com dependência linear de $R(T)$ com T^2 .

Os valores obtidos da T_{coh} em função da pressão são mostrados na fig. 6.7, onde é possível observar que a temperatura que define o comportamento LF aumenta com a pressão, indicando que o sistema se afasta do QCP.

Por outro lado, nas figuras 6.2 e 6.3, T_C aparece com uma inflexão, sendo mais clara em baixas pressões. A determinação mais precisa de T_C pode ser feita através do cálculo do mínimo na segunda derivada dos valores de resistência elétrica, d^2R/dT^2 . O erro em T_C é estimado a partir de dispersão dos valores de T_C encontrados em outros intervalos de temperatura. Os valores de T_C obtidos da análise da $R(T)$ e da $\chi(T)$ são também mostrados na figura 6.7, apresentado uma boa coincidência. Ocorre uma concavidade para baixo próximo

de $p \sim 9$ GPa, que posteriormente experimenta uma clara redução entre 11 e 12 GPa. Extrapolando $T_C \rightarrow 0K$, podemos observar que o ponto crítico quântico no CePt deve estar localizado próximo a 12 GPa [15].

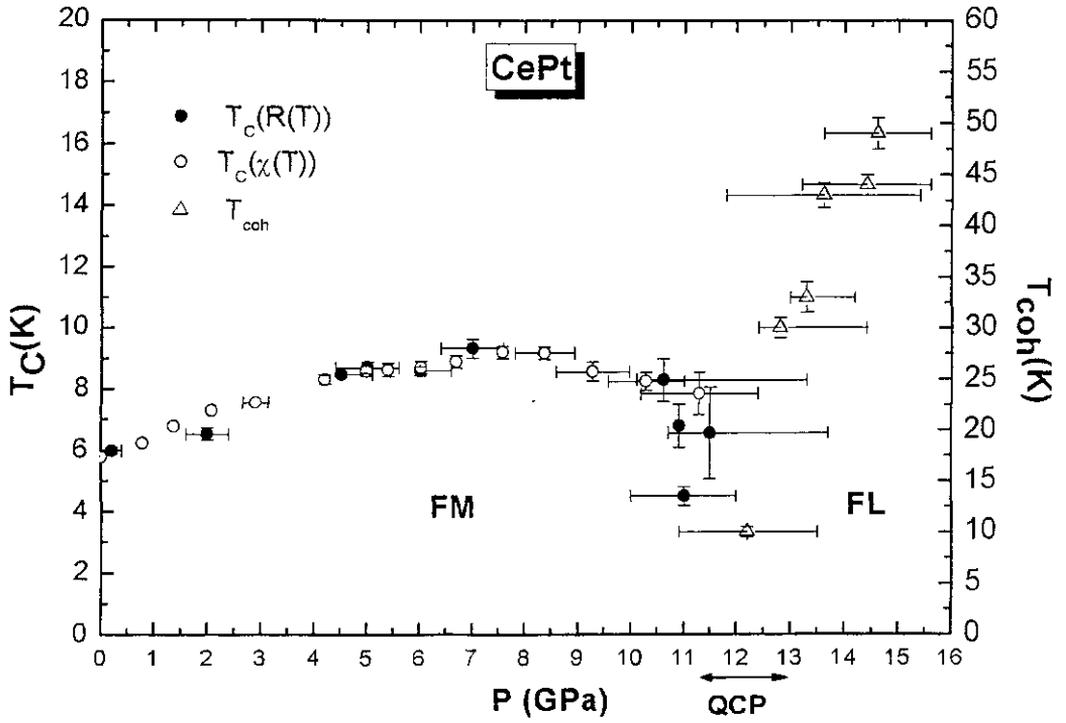


Figura 6.7 Valores da temperatura de Curie (T_C), obtidos mediante as medidas de resistência elétrica $R(T)$ e susceptibilidade magnética $\chi(T)$. A temperatura de coerência (T_{coh}) também é mostrada. O ponto crítico quântico (QCP) pode ser encontrado próximo a 12 GPa [15]

A partir da fig. 6.7 se calcula o coeficiente para pressões iniciais $d \ln T_C / dp \sim 1.15 \times 10^{-1} \text{ GPa}^{-1}$, valor um pouco menor do que o encontrado por Itoh e col. [11], no intervalo de pressões $p < 3$ GPa. Por outro lado, uma comparação do efeito de pressão sobre T_C obtido neste trabalho [P], com o efeito de pressão química em $\text{CePt}_x\text{Ni}_{1-x}$ (*alloys effect*) [A] realizado por Ginoux e col. [18] deve ser considerado, pois ambos efeitos produzem uma redução da distância interatômica, ou de volume.

Esta comparação entre [P] e [A] é apresentada na figura 6.8, assumindo que a variação do volume ($-\Delta V/V$) depende linearmente da pressão, $(-\Delta V/V) = \kappa p$, onde a constante de compressibilidade para o CePt é $\kappa = 1.2 \times 10^{-2} / \text{GPa}$ [11]. Ambos experimentos reproduzem um diagrama de fase magnético assimétrico, que é característico dos sistemas de rede de Kondo, porém, a variação de T_C em cada experimento é diferente. Nos experimentos de [A], $(-\Delta V/V)$ não varia linearmente com a concentração x , experimentando uma diminuição abrupta para $x > 0.5$ [18]. Este comportamento é reproduzido nos experimentos sob pressão, porém T_C

colapsa para valores de contração de volumes mais altos reforçando a hipótese de que as mudanças eletrônicas efetivas nas ligas (alloys) conduzem a um estado de valência intermediária.

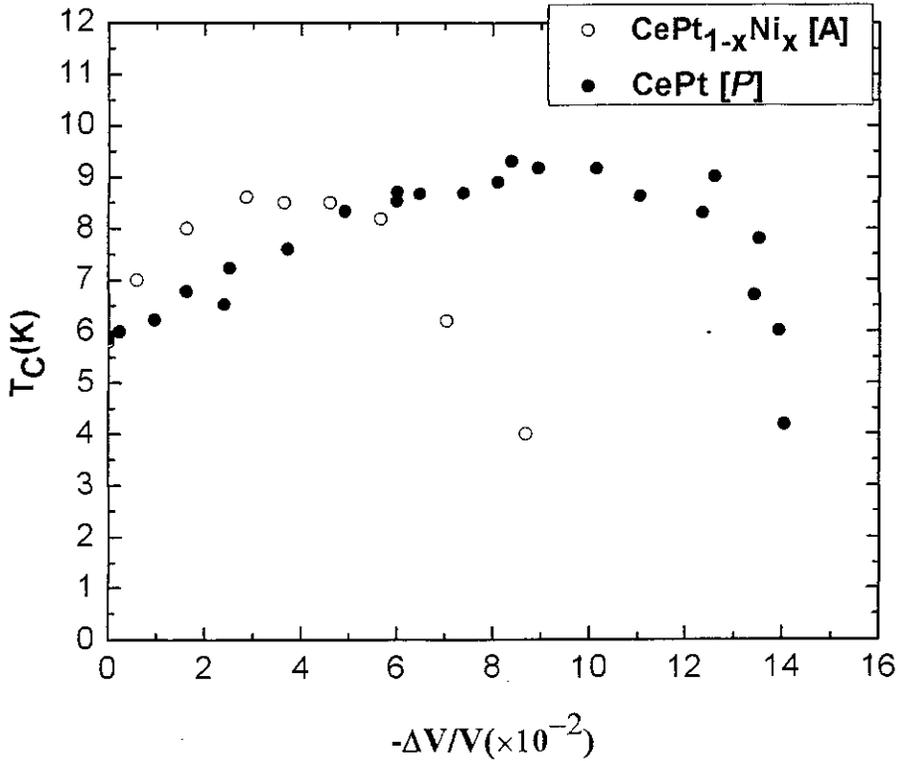


Figura 6.8 Valores de T_C em função da contração do volume ($-\Delta V/V$), obtida em diferentes experimentos: [P] pressão (este trabalho) e [A] ligas [ref. 12]

Com o aumento da pressão podemos conduzir o estado FM do CePt para um estado paramagnético, acima do QCP. Por outro lado, reduzindo a pressão foi possível retornar à fase magnética recuperando a forma das curvas de $R(T)$. Portanto, a transição de um estado magnético para um paramagnético no CePt com a pressão é completamente reversível.

A dependência de T_C com a pressão mostra evidências de uma transição direta desde um estado FM para o QCP entre 11 e 12 GPa. Uma análise mais cuidadosa sobre os mecanismos que regulam o comportamento crítico desta transição FM-QCP será abordada a seguir, separando a região acima e abaixo do QCP.

6.3 Discussão

6.3.1 Comportamento crítico quântico do estado ferromagnético (FM).

Nossos resultados de resistência elétrica no composto CePt podem ser descritos fenomenologicamente dentro do diagrama de Doniach [9], usualmente aplicado a sistemas de Ce com competição entre as interações Kondo e Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY). A assimetria observada da dependência com a pressão de $T_C(P)$ é semelhante à encontrada nos compostos CePdSb e CeAg [7]. A idéia básica do modelo de Doniach considera que partindo do lado magnético, o aumento da interação Kondo eventualmente domina a interação RKKY, conduzindo o sistema a um estado não magnético. No caso de uma única impureza Kondo, uma extrapolação da temperatura de Kondo (T_K) para um valor arbitrário de (J/W) conduz a temperatura finita de T_K , de maneira que se $T_K < T_{RKKY}$, a ordem magnética desaparece. Estendendo o diagrama de Doniach para o lado não magnético acima do QCP, uma fase ordenada pode ser estabelecida a partir de um estado líquido de Fermi, que é levado para um estado magnético caracterizado pelo vetor de onda Q [19].

Por outro lado, as teorias baseadas nas flutuações de spin (SFT) são desenvolvidas e aplicadas aos sistemas férmions pesados próximos ao QCP [1, 2, 4]. Estas teorias tem sido desenvolvidas para as fases FM e AF, no lado do QCP com ordenamento do longo alcance. Elas predizem diferentes dependências com a temperatura das propriedades físicas, as quais dependem, principalmente da dimensionalidade d e dos diferentes valores do expoente dinâmico z . Este modelos predizem uma dependência da temperatura de ordem magnética (T_{mag}) com a distância ao QCP, $|\delta| = |P - P_C|$, do tipo lei de potência $T_{mag} \propto |\delta|^\psi$, onde $\psi = z/(d+z-2)$ é conhecido como o *expoente de deslocamento (shift exponent)* [2-4, 17]. Os valores de z são definidos para um sistema antiferromagnético $z = 2$ e para um ferromagnético $z = 3$. Da relação correspondente a ψ , para o caso das flutuações de spin bidimensional (2D), $T_{mag}(P)$ é independente de z e diminui linearmente para o QCP. Assim, assumindo uma transição FM – QCP no CePt, $T_C(P)$ na figura 6.7 deveria obedecer a lei de potencia $|\delta|^{3/4}$ ou $|\delta|$, dependendo da dimensão efetiva do sistema concernente as flutuações de spin. Por outro lado, é bastante conhecido que a teoria de campo médio (MF) prediz um expoente de deslocamento $\psi = 1/2$ que está geralmente associado com um expoente dinâmico $z = 1$ [3, 19].

Como nossos dados se estendem sobre uma grande intervalo de temperaturas, eles são ajustados com uma expressão analítica que inclui uma contribuição de campo médio acrescida de uma contribuição crítica real devida às flutuações de spin; quer dizer, com a expressão $(J/W)_{P,T} = (J/W)_{P_C,T=0} - aT^2 - bT^{1/\psi}$ ou alternativamente $\delta = - aT^2 - bT^{1/\psi}$ onde $\delta = |P - P_C|$.

Como pode ser observado na figura 6.9, nossos dados podem ser ajustados satisfatoriamente com $\Psi = 3/4$ or $\Psi = 1$, típico de um sistema ferromagnético ($z = 3$) em $d = 3$ ou $d = 2$, respectivamente, já que este é dominado pelo regime de altas temperaturas associado à contribuição de campo médio. Portanto, da forma das linhas críticas não podemos discriminar entre dimensionalidades efetivas que descrevem as flutuações de spin em nosso sistema. No entanto, de ambos ajustes podemos estimar a pressão crítica $P_c \sim (12 \pm 0.5)$ GPa como o QCP do FM CePt [20].

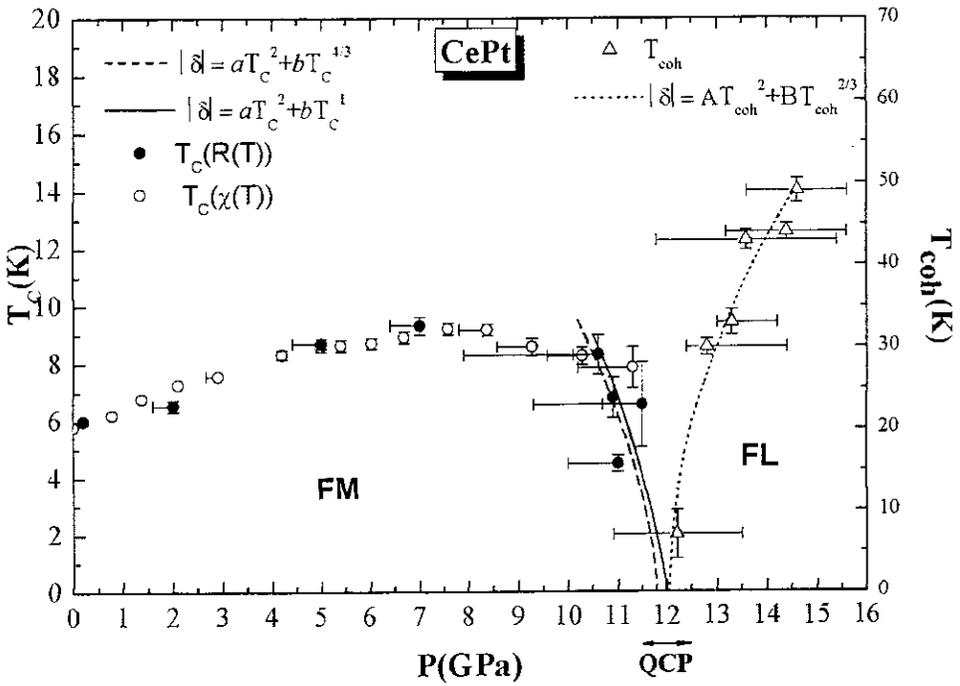


Figura 6.9 Ajustes das curvas $T_c(P)$ e $T_{coh}(P)$ usando a função analítica $\delta = -aT^2 - bT^{1/\psi}$, onde $\delta = |P - P_c|$ e ψ é o expoente efetivo. Para $T_c(P)$, $\psi = 3/4$ (3d) ou $\psi = 1$ (2d) reproduzem satisfatoriamente a linha crítica. Para $T_{coh}(P)$, $\psi = 3/2$ associado ao expoente dinâmico $z = 3$.

Uma análise detalhada da dependência com a temperatura da resistência elétrica na fase magnética, da informação relevante na interpretação da transição FM-QCP. Com o fim de realizar este análise, a contribuição magnética da resistividade do CePt, ρ_{mag} , é obtida da maneira convencional, subtraindo a contribuição dos fônons, tal como foi mostrado na fig. 6.3. A contribuição dos fônons é obtida da resistividade de um composto isoestrutural não magnético LaPt, preparado para esta finalidade. Em comparação com o trabalho reportado na ref. [10], assumimos que a resistividade do LaPt, no intervalo de temperatura relevante, não muda com a pressão. Isto é justificado pela observação que em altas temperaturas, próximo de

300 K, a resistividade do LaPt só muda $\sim 2\%$ desde $p=0$ até $p=2.4$ GPa [10]. O resultado desta subtração para temperaturas menores que 6 K é mostrado na figura 6.10.

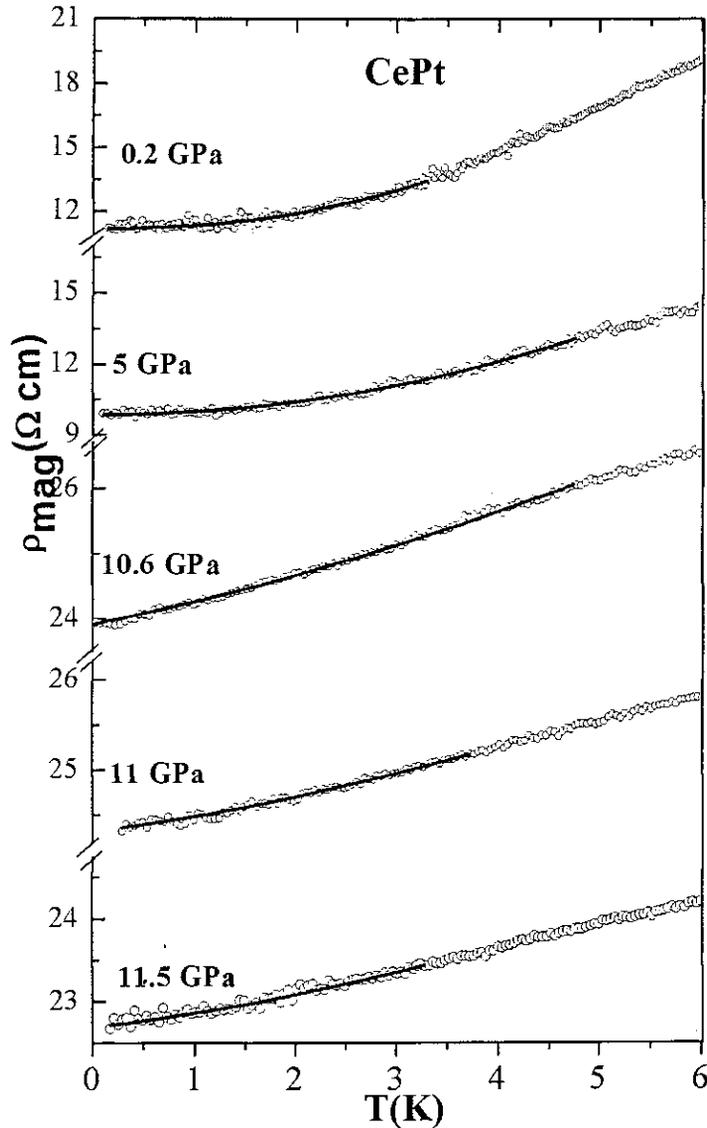


Figura 6.10 Resistividade magnética ρ_{mag} em função da temperatura em diferentes pressões. As curvas sólidas representam o ajuste dos dados ρ_{mag} pela contribuição do gap das ondas de spin FM.

Em sistemas metálicos ferromagnéticos existem excitações magnéticas coletivas, ondas de spin ou magnons, as quais espalham os elétrons de condução contribuindo para aumentar a resistividade elétrica. Como as medidas de susceptibilidade *ac* revelam que o ordenamento magnético do CePt é ferromagnético, presumivelmente até o QCP, esperamos encontrar modos de ondas de spin nestes sistemas para temperaturas abaixo de $T_C(P)$. Evidências das ondas de spin ferromagnéticas também foram observadas no férmion pesado

FM CePd₂Al₂Ga, para pressões anteriores à mudança para uma ordem AF ($p < 0.6$ GPa) [21].

Em ferromagnetos anisotrópicos a relação de dispersão dos modos de ondas de spin hidrodinâmicas é dado por, $\omega = \Delta + Dk^2$, onde Δ é o gap das ondas de spin e D a rigidez das ondas de spin (*stiffness*). A hipótese de um gap anisotrópico está baseada na estrutura altamente anisotrópica do CePt. Estas excitações produzem uma dependência com a temperatura da resistividade, para $k_B T \ll \Delta$, dado pela seguinte relação:

$$\rho_{sw}(T) = b\Delta T e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \left[1 + 2 \frac{k_B T}{\Delta} \right] \quad (6.1)$$

onde b depende de constantes, para um dado material, e da rigidez das ondas de spin D . Na realidade, b é constante e relacionada com o inverso de D , de maneira que, para os magnons mais amolecidos sua contribuição à resistividade é maior. Portanto, dos dados de ρ_{mag} para CePt, podemos obter além de T_C , o valor do gap das ondas de spin Δ e, em geral a dependências de $\Delta(P)$ e $D(P)$.

Para obter os valores de Δ podemos analisar a contribuição magnética à resistividade ρ_{mag} mediante a seguinte expressão:

$$\rho_{mag}(T) = \rho_0 + BT^n + \rho_{sw}(T) \quad (6.2)$$

onde ρ_0 é a resistividade residual, BT^n é o termo da contribuição por espalhamento elétron-elétron e, ρ_{sw} é a contribuição das ondas de spin dada na eq. (6.1). O expoente efetivo n pode assumir os seguintes valores: $n=2$ para um FL [22], $1 < n < 2$ para o regime crítico NFL [23]. Em nosso sistema CePt existe uma considerável contribuição de $\rho_{sw}(T)$ à ρ_{mag} ; devido ao espalhamento das ondas de spin FM com um Δ no seu espectro de excitações. Os dados da resistividade magnética $\rho_{mag}(T)$ foram ajustados no intervalo de temperaturas onde a aproximação da eq. (6.1) é válida, quer dizer, $T_{fit} \leq 0.55 T_C$. Considerando também as equações (6.1) e (6.2) (ver fig. 6.10); destes ajustes se obtém os valores de Δ assim como o coeficiente b . Os valores encontrados são comparados na fig. 6.11 para diferentes valores de pressão. O comportamento do gap $\Delta(P)$ acompanha a variação de T_C ; ambos diminuem abruptamente acima de 10 GPa. Uma diminuição linear pode ser assumida para pressões acima de 10.5 GPa. Usando $\Delta \sim 4.28 |P_C^{Gap} - P|$, se consegue obter uma pressão crítica para o gap, quando $\Delta \rightarrow 0$ de $P_C^{Gap} \sim 12$ GPa.

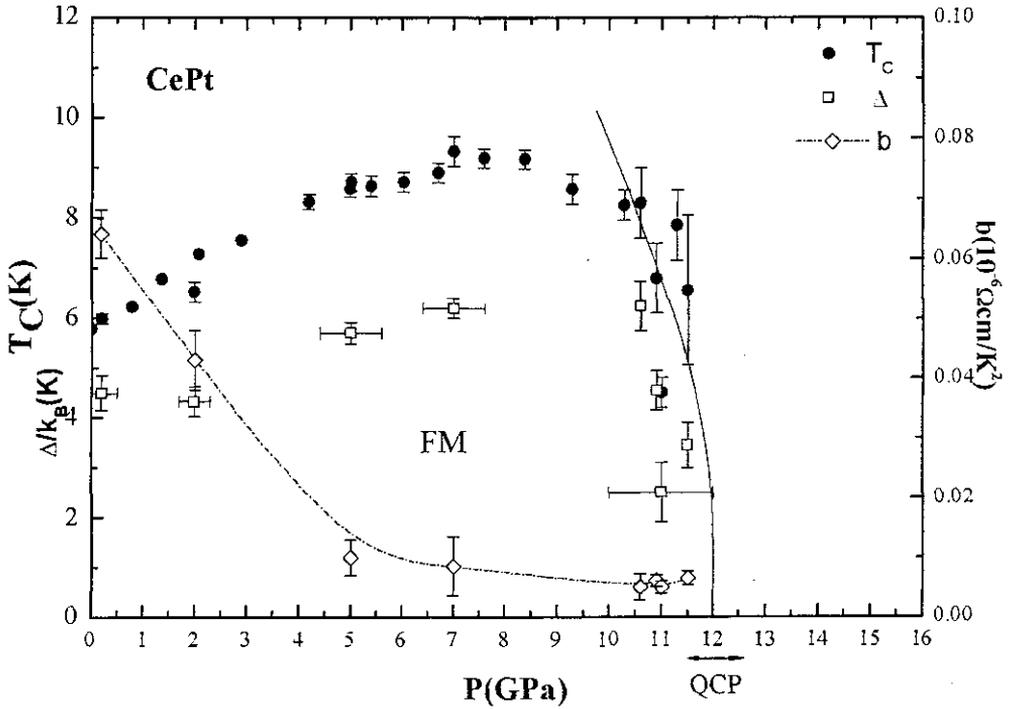


Figura 6.11 Temperatura de Curie (T_C), gap das ondas de spin FM (Δ) e, o coeficiente b em função da pressão. A linha pontilhada serve como guia, enquanto que, a linha sólida é calculada usando a relação (6.3) com $\Gamma/k_B = 25.8$ K e $\Delta(P) = 4.28 |P-12|$.

O coeficiente b , obtido no mesmo ajuste para o gap, apresenta uma dependência com a pressão de $b(P)$ que se distingue das outras grandezas T_C e Δ . Assim $b(P)$ experimenta uma drástica diminuição, saturando acima de 10.3 GPa para um valor próximo de $8 \cdot 10^{-8} \Omega\text{cm}/\text{K}^2$ até P_C . Este comportamento de $b(P)$ sugere que a rigidez das ondas de spin $D(P)$ cresce e satura em seu valor mais alto próximo a P_C . Este resultado é inesperado, uma vez que a rigidez das ondas de spin deveria diminuir com a pressão, pois os magnons amolecem próximo ao QCP. Uma correlação similar entre a temperatura de Néel, T_N , e o gap Δ_{AF} do espectro de magnons anisotrópico foi observado no férmion pesado antiferromagnético $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$, o qual é conduzido, mediante pressão, para um QCP em $p_C \sim 0.75$ GPa [24]. Continentino e col. [24] mostraram que para este composto AF, T_N vai a zero junto com o gap das ondas de spin enquanto que a rigidez das ondas de spin permanece finita, este é o resultado do caráter bidimensional das flutuações de spin. Esta aproximação sugere que os momentos magnéticos locais não sejam extintos (*unquenched*) até o QCP [25]. Como nossos resultados experimentais são comparáveis aos encontrados no composto $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$, nossa suposição sustenta que as flutuações de spin 2D possam ter um papel decisivo no comportamento crítico quântico do FM CePt.

Por outro lado, uma descrição quantitativa do caráter 2D das flutuações de spin próximo ao QCP pode ser postulada dentro de uma teoria de ondas de spin. Usando a equação de dispersão para os FM anisotrópicos ($\Delta + Dk^2$) se consegue obter a seguinte relação que vincula T_C com Δ ; assim para o caso 2 D e assumindo um spin $S=1/2$ [20] encontramos:

$$k_B T_C = \frac{1}{2} \frac{\Gamma}{\ln\left(\frac{\Delta + \Gamma}{\Delta}\right)} \quad (6.3)$$

onde $\Gamma \propto D$ [26] A expressão encontrada em (6.3) apresenta uma dependência logarítmica com o gap, semelhante ao caso AF bidimensional [24]. Por sua vez, é fácil verificar que quando $\Delta \rightarrow 0$ o $T_C \rightarrow 0$.

Segundo a relação (6.3) podemos calcular uma linha crítica para $T_C(P)$ considerando $\Delta(P)$ com um parâmetro de ordem que regula a distância ao QCP $|\delta|$; tal que, $\Delta \propto |\delta|$, que poderia estar relacionada ao amolecimento das excitações magnéticas na proximidade do QCP [3]. Assim mesmo, o valor de Γ é calculado na região em que $D(P)$ mostra uma tendência constante e finita e, similar ao comportamento de $b(P)$ ($D \propto 1/b$). Usando os valores de $T_C = 6.8$ K e $\Delta/k_B = 4.55$ K, obtemos $\Gamma/k_B = 25.8$ K, que é um valor fisicamente razoável [24]. Usando o valor de $\Gamma/k_B = 25.8$ K e expressão para $\Delta = 4.28 |P_C^{\text{Gap}} - P|$ reproduzimos $T_C(P)$ sobre um intervalo de pressões próximo ao QCP, como é observado na fig. 6.11. A descrição do comportamento crítico de $T_C(P)$ através da eq. (6.3) revela que as flutuações de spin do tipo 2D estão presentes na região crítica, no sentido que o gap dos magnons tornam-se isotrópicos, $\Delta \rightarrow 0$ ao se aproximar do P_C . Portanto, o mecanismo das ondas de spin amolecidas, de caráter bidimensional, como as flutuações de spin 2D podem explicar o comportamento crítico no FM CePt, o mesmo argumento pode ser válido para outros compostos férmions pesados FM com uma diminuição drástica de T_C próximo ao QCP [20].

Na realidade, qualquer modelo teórico que explique a desapareção de T_C no QCP deveria estar de acordo com a dimensionalidade da sua estrutura magnética. No entanto, até a presente data não existe informação sobre a estrutura magnética do CePt; uma comparação com a conhecida estrutura magnética do composto isoestrutural PrPt [27] não é suficientemente conclusiva, porém, a rede quadrada por si mesma sugere uma tendência ao caráter 2D. Isto ocorre porque a estrutura do composto se constrói a partir das camadas de prismas triangulares de Ce contendo Pt empilhado ao longo do eixo c (ver figura 6.12).

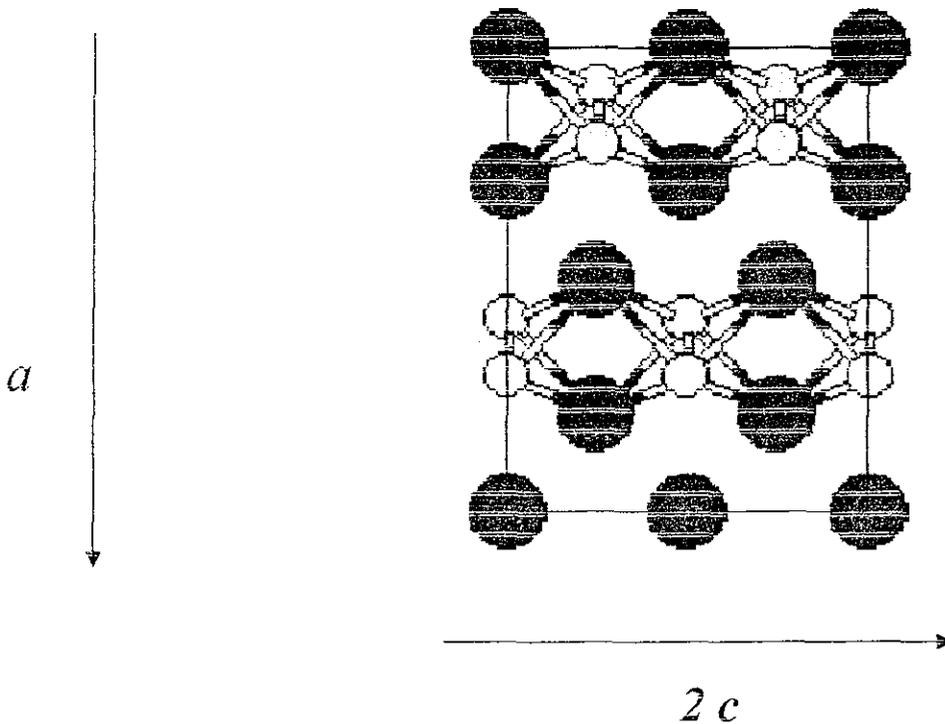


Figura 6.12 Estrutura cristalina do CePt observada ao longo de eixo b . As bolas maiores representam os átomos de Ce.

Segundo nosso conhecimento o CePt é o primeiro composto KL ferromagnético que mostra comportamento NLF nas medidas de resistência elétrica sob pressão. Como foi mencionado anteriormente, uma cuidadosa análise em $p = 12.2 \text{ GPa}$, o qual se encontra do lado paramagnético próximo ao P_C estimado, mostra que $R(T)$ depende de $T^{1.34(1)}$ num intervalo de duas dezenas de graus Kelvins, até pelo menos 7 K (ver fig. 6.5). Considerando o modelo de SF, $R(T) \propto T^\beta$ com $\beta = (d+2)/z$, $1 < \beta < 2$ e $d + z > 4$. Assim, para um sistema próximo à instabilidade ferromagnética em P_C , com $z = 3$, se encontra que $\beta = 5/3$ em três dimensões e $\beta = 4/3$ em duas dimensões [16]. Ainda considerando a barra do erro no expoente $\beta \sim 1.34$ determinado no ajuste, este valor está próximo do esperado para o caso das flutuações de spin FM 2D. Uma redução da dimensionalidade das flutuações magnéticas de 3D para 2D também foi considerada para explicar o desaparecimento de T_N no QCP para o material quase AF CePd₂Si₂, onde a supercondutividade coexiste no estado NLF. Em ambos compostos, CePt e CePd₂Si₂, a flutuação 2D dos momentos magnéticos tem um papel importante não só para explicar o colapso do magnetismo, mas possivelmente também para o estabelecimento de um estado supercondutor [28]. No entanto, no caso do CePt, as curvas de resistência elétrica próximas a P_C não mostram nenhuma evidência de um estado supercondutor, pelo menos até temperaturas próximas a 50 mK [20].

6.3.2 Acima do QCP. Passagem para o estado Líquido de Fermi

Em pressões acima de $P_C = 12$ GPa, as curvas de resistência elétrica passam a apresentar uma dependência com a temperatura $R(T) \propto AT^2$ desde baixas temperaturas até uma temperatura limite T_{coh} . A mesma análise para pressões acima de 12 GPa é feita para calcular T_{coh} , temperatura que escala o comportamento líquido de Fermi (FL), e a dependência de T_{coh} com a pressão é mostrada na fig. 6.9. Na figura 6.13, a dependência do coeficiente A de T^2 é apresentada em função da pressão.

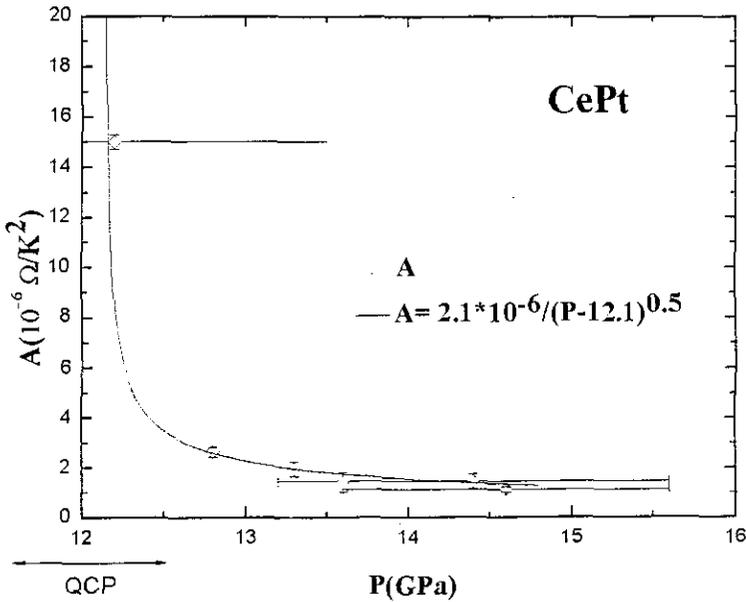


Figura 6.13. Dependência com a pressão do coeficiente A do termo T^2 no estado líquido de Fermi (FL). A linha sólida é o ajuste dos pontos experimentais dando uma pressão de divergência próximo de 12.1 GPa.

O coeficiente A exibe um rápido decréscimo com a pressão num regime próximo ao QCP até 13.3 GPa, depois da qual permanece quase constante. Ambos comportamentos de $T_{coh}(P)$ e $A(P)$ indicam que o sistema se afasta de região crítica quântica, que está de acordo com as predições teóricas para o lado não magnético do diagrama de fase dos férmions pesados. Estas predições sugerem, na vizinhança do QCP, uma divergência de $A(P) \propto 1/|\delta|^{1/2}$ para sistemas quase ferromagnéticos [4], onde $d + z \geq 4$, assim como a relação de lei potencia $T_{coh} \propto |\delta|^{z/2}$ [2, 4, 17].

Ajustando $A(P)$ com $\propto 1/|\delta|^n$ se obtém um expoente $n = 0.5 \pm 0.2$, em excelente acordo com o valor esperado $1/2$. Por outro lado, posto que a temperatura de coerência depende só do expoente dinâmico z (para $d + z \geq 4$), nada pode ser concluído sobre a

dimensionalidade das flutuações magnéticas. No entanto, o tipo de transição magnética quântica pode ser deduzido a partir do valor de z . Assim, partindo do lado magnético para o não magnético, em pressões acima de P_C , seria esperado $T_{\text{coh}} \propto |\delta|^{3/2}$ dentro do cenário das flutuações de spin para uma transição FM-QCP ($z = 3$). Como nossos dados se estendem numa faixa de temperaturas bastante larga, a contribuição do campo médio deve ser incluída em T_{coh} e, esta é descrita pela dependência analítica $T_{\text{coh}}^{\text{MF}} \propto |\delta|^{3/2}$. Tal como pode ser observado na fig. 6.9, a dependência analítica, incluindo as contribuições de SF e MF, descreve o comportamento crítico de T_{coh} no CePt.

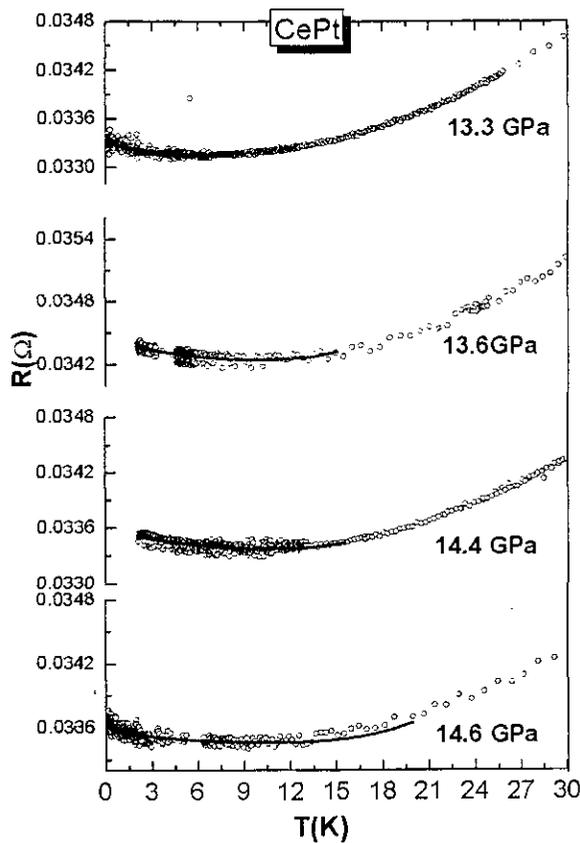


Figura 6.14. Medidas de resistência elétrica do CePt para pressões acima de 13 GPa e baixas temperaturas. As linhas sólidas são os ajustes usando a expressão 6.4 para uma impureza Kondo diluída.

A figura 6.14 mostra as curvas de resistência elétrica em baixas temperaturas e pressões acima de $P > 12.8$ GPa, com um aumento da resistência para $T < 10$ K, indicando que o sistema se desvia do comportamento FL para este intervalo de temperaturas. O desvio na resistência pode ser observado desde uma temperatura característica (T_{min}) para resistências maiores quando $T \rightarrow 0$ K. A tendência de $R(T)$ abaixo de T_{min} , parece mostrar uma dependência com $\ln T$, característica de impurezas Kondo. O efeito desde incremento é <

1% da resistência mínima, pelo menos até 14.6 GPa, sendo um valor menor ao reportado na liga diluída Fe-Au (por exemplo, para 0.002 at. % Fe em Au, o efeito é ~6%) [11]. Mesmo sendo este efeito pequeno no CePt, podemos assumir que a dependência com $\ln T$ seja uma indicação da presença de impurezas diluídas (c_{imp}) do tipo Kondo, como veremos a seguir.

Considerando o cenário físico de uma única impureza Kondo para descrever o mínimo na resistência, uma expressão que considera todas as contribuições à resistência em baixas temperaturas tem a forma [11:]

$$R(T) = \alpha T^5 + c_{imp} R_0 - c_{imp} R_1 \ln\left(\frac{k_B T}{D}\right) \quad (6.4)$$

onde o primeiro termo é a contribuição elétron-fônon, o segundo termo a contribuição da resistência residual, e o último termo é a contribuição Kondo. Aqui, D é largura de banda da densidade de estados dos elétrons de condução. Esta expressão conduz a T_{min} , dado por:

$$T_{min} = \left(\frac{R_1}{5\alpha}\right)^{1/5} c_{imp}^{1/5} \quad (6.5)$$

As equações (6.4) e (6.5) são usadas para obter uma estimativa dos valores da concentração de impurezas magnéticas diluídas (c_{imp}) assim como T_{min} em diferentes pressões.

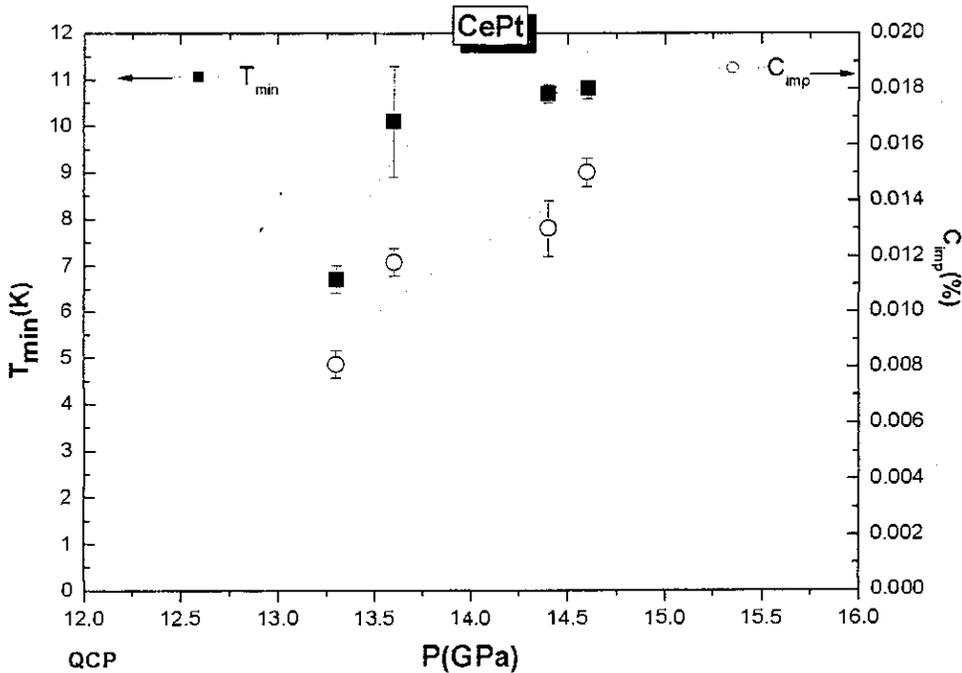


Figura 6.15 Dependência com a pressão da concentração das impurezas magnéticas diluídas (c_{imp}) e a temperatura onde $R(T)$ é mínimo (T_{min})

A figura 6.15 mostra dependências com a pressão de c_{imp} e T_{min} semelhantes aumentando rapidamente entre 12.8 e 13.3 GPa, e saturando provavelmente em pressões mais altas. A concentração da impureza magnética diluída alcança um valor de $c_{imp} \sim 0.015\%$ em $P = 14.6$ GPa. A extrapolação de c_{imp} para altas pressões é menor que 0.02%, um valor que é característico de sistemas com impurezas magnéticas diluídas [11]. Embora estes valores sejam estimados e não absolutos, em princípio, pode-se assumir que a presença destas impurezas magnéticas não influem na transição magnética quântica. No entanto, se espera que em pressões fora da região crítica, a contribuição das impurezas magnéticas sejam relevantes em baixas temperaturas e produzam um desvio do comportamento FL. As evidências da presença de impurezas magnéticas diluídas nas medidas de $R(T)$ devem ser confirmadas por medidas termodinâmicas e magnéticas, realizadas em diferentes amostras de CePt.

6.4 Conclusões

A criticalidade quântica de uma rede Kondo ferromagnética (FM) foi estudada a partir de medidas de resistência elétrica. A ordem FM é suprimida para altas pressões, com um ponto crítico quântico próximo de $P_C \sim 12$ GPa, separando a fase FM da fase paramagnética. No lado não magnético do diagrama de fase se recupera o estado líquido de Fermi abaixo de uma linha de coerência que aumenta com a pressão. A teoria crítica das flutuações de spin é usada para analisar nossos dados com um expoente dinâmico $z = 3$, apropriado para as flutuações de um sistema quase ferromagnético. Nossos resultados, quer dizer, a forma das linhas críticas e de coerência e, a parte não líquido de Fermi da resistividade próximo ao QCP são consistentes com esta análise; em particular, considerando-se que a dimensão efetiva das flutuações de spin ferromagnético $d = 2$. No entanto, esta análise não exclui outros cenários físicos, uma vez que a forma das linhas críticas e de coerência são dominadas principalmente por um termo analítico de campo médio.

Foi mostrado que na fase ferromagnética, uma importante contribuição à resistividade vem do espalhamento dos elétrons de condução pelas ondas de spin ferromagnéticas $\omega(k) = \Delta + Dk^2$. A dependência do gap com a pressão está correlacionada com a temperatura crítica; ambas desaparecem na mesma pressão crítica, enquanto que a rigidez das ondas de spin D permanece finita. Este resultado sugere um cenário físico alternativo à teoria de flutuação de spin, onde a instabilidade ferromagnética está associada aos modos amolecidos das ondas de spin num material bidimensional.

Finalmente, se afastando do QCP, em altas pressões, a resistência elétrica em baixas temperaturas mostra a presença de impurezas magnéticas diluídas, as quais não foram completamente extintas na transição FM - ponto crítico quântico.

REFERÊNCIAS

- [1] For a review see G. Stewart, *Rev. Mod. Phys.* **73** (2001) 797.
- [2] A. J. Millis, *Phys. Rev. B* **48**, (1993), 7183.
- [3] J. Hertz, *Phys. Rev. B* **14** (1974) 1165.
- [4] T. Moriya, T. Takimoto, *J. Phys. Soc. Jpn.* **64**, 3, (1995), 960.
- [5] S. Süllow, M. C. Aronson, B. D. Rainford, P. Haen. *Phys. Rev. Lett.* **82**, 14, (1999), 2963.
- [6] T. Burghardt, A. Eichler, S. Süllow, J. A. Mydosh. *Physica B* 259-261 (1999), 99.
- [7] A. L. Cornelius, A. K. Gangopadhyay, J. S. Schilling, W. Assmus. *Phys. Rev. B.* **55**, 21, (1997), 14109.
- [8] V. A. Sidorov, E. D. Bauer, N. A. Frederick, J. R. Jeffries, S. Nakatsuji, N. O. Moreno, J. D. Thompson, M. B. Maple, and Z. Fisk. *Phys. Rev. B* **67**, (2003), 224419.
- [9] S. Doniach, in *Valence Instability and Related Narrow Band Phenomena*, edited by R. D. Parks (Plenum, New York, 1977).
- [10] Y. Itoh, H. Kadomatsu, M. Karisu, H. Fujiwara. *J. Phys. Soc. Jpn.* **56** (1987) 1159.
- [11] A. C. Hewson. *The Kondo Problem to Heavy Fermions*. Cambridge University Press 1993.
- [12] K. H. Fisher. *Z. Phys. B –Condensed Matter* **74**, (1989), 475.
- [13] T. Burghardt, A. Eichler. Private communication.
- [14] J. Larrea J., T. Burghardt, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, E. Baggio-Saitovitch. See book of Abstracts of ICM 2003, pag. ,Roma (Italy).
- [15] J. Larrea J., T. Burghardt, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, E. Baggio-Saitovitch. *J. Magn. Magn. Mater.* (in press).
- [16] Pflieder, C. McMullan, G. J. Julian, s. r. & Lonzarich. *Phys. Rev. B* **55**, (1997) 8330.
- [17] M. A. Continentino. *Quantum scaling in many body systems*. World Scientific Notes in Physics-Vol. 67 (2001).
- [18] D. Gignoux, J.C. Gómez Sal, *Phys. Rev. B* **30** (1984) 3967.
- [19] Grosche et al., *J.Phys.:Cond. Mat.* **12**, (2000) L533.

- [20] J. Larrea J., T. Burghardt, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, M. Continentino, E. Baggio-Saitovitch. To be published.
- [21] J. Larrea J. A. Eichler, A. D de Alvarenga, M. Fontes, E. Baggio-Saitovitch. Private publication. Book of abstracts of SCES 02, (2002), pag. 65.
- [22] T. T. M. Palstra, A. A. Menovsky, and J. A. Mydosh. *Phys. Rev. B*, 33, 9, 6527 (1986).
- [23] A. Demuer, D. Jaccard, I. Sheikin, S. Raymond, B. Salce, J. Thomasson, D. Braithwaite, J. Flouquet. *J. Phys. Condens. Matter* 13, 9335 (2001).
- [24] M. A. Continentino, S. N. de Medeiros, M. T. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch. *Phys. Rev. B*, 64 (2001), 012404-1.
- [25] A. Schöder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H.v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, and P. Coleman, *Nature (London)* 407 (2000), 351.
- [26] S. V. Tyablikov. *Methods in the quantum theory of magnetism*. Plenum press (1967).
- [27] A. Castets, B. Ginoux, J. C. Gomez-Sal, e. Roudaut. *Sol. Stat. Comun*, 44, 8, (1982) 1329.
- [28] N. D. Mathur, F. M. Grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M Freye, R. K. W. Haselwimmer and G. G Lonzarich. *Nature*, 394, (1998), 2.

CAPÍTULO 7

ORDENAMENTO MAGNÉTICO INDUZIDO POR ALTAS PRESSÕES NO FÉRMION PESADO YbFe_2Ge_2

7.1 Introdução

Nos capítulos anteriores, abordamos o comportamento crítico dos férmions pesados, $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ e CePt , partindo da fase magnética ordenada, e observamos que mediante a aplicação da pressão podemos conduzir estes compostos de uma fase magnética para uma paramagnética passando pelo ponto crítico quântico (QCP). Neste capítulo abordaremos o estudo do comportamento crítico quântico partindo de uma situação diferente das anteriores, onde o férmion pesado (HF) YbFe_2Ge_2 [1] é o sistema adequado para tal objetivo, pois este material é paramagnético na pressão ambiente ($p = 0$)[2]. Considerando, a analogia elétron-buraco entre as configurações eletrônicas do Ce [$\text{Ce}^{3+}(4f^1) \rightarrow \text{Ce}^{4+}(4f^0)$] e Yb [$\text{Yb}^{4+}(4f^0) \rightarrow \text{Yb}^{3+}(4f^1)$], quando a pressão p aumenta, é possível conduzir aos sistemas HF de Yb para um estado magnético com a aplicação de pressões convenientes.

Dentro do cenário físico da analogia elétron-buraco esperamos, mediante o aumento da pressão aplicada, podemos conduzir o YbFe_2Ge_2 de uma situação de instabilidade magnética para uma situação de ordenamento de longo alcance (LRO). Medidas de resistência elétrica $R(T)$ sob pressão e a temperaturas ultrabaixas são usadas para monitorar a transição paramagnética - QCP - magnética, ao mesmo tempo que os fenômenos críticos quânticos são estudados nesta região. A partir dos dados de $R(T)$ podem ser extraídos tanto a temperatura de ordem magnética $T_{\text{mag}}(P)$ como o gap das excitações magnéticas $\Delta(P)$. O gap pode ser usado como uma tentativa de definir o tipo de ordem magnética no YbFe_2Ge_2 , tal como foi feito no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ e CePt , onde se espera poder distinguir entre dois tipos de

ordem de acordo com o espectro das excitações magnéticas, ferromagnético (FM) ou antiferromagnética (AF).

Finalmente, a relação entre T_{mag} e Δ perto do QCP pode proporcionar informações relevantes sobre os mecanismos envolvidos no comportamento crítico quântico do YbFe_2Ge_2 . Como no caso dos férmions pesados com estado fundamental magnético, se espera que a dimensionalidade das flutuações de spin tenham um papel importante na descrição dos fenômenos críticos quânticos no regime da instabilidade magnética do YbFe_2Ge_2 . Assim, o cenário físico, proposto na descrição da região crítica quântica no $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ e CePt poderá ser usado para descrever o comportamento crítico do YbFe_2Ge_2 .

7.2 Apresentação dos resultados. Análise das medidas de resistência elétrica.

7.2.1 A contribuição elétron-fônon à resistividade elétrica do YbFe_2Ge_2

A figura 7.1 mostra as curvas de resistência elétrica do composto YbFe_2Ge_2 em diferentes pressões, sendo os valores da resistência elétrica normalizados à temperatura ambiente, $R(T)/R(\sim 300 \text{ K})$. Todas as curvas de resistência elétrica $R(T)$ foram coletadas num processo contínuo de aumento da pressão, com exceção das pressões $p = 17 \text{ GPa}$ e 14.6 GPa , que se obtiveram em processo de relaxamento. As curvas de $R(T)$ na fig. 7.1, mostram uma reversibilidade nos experimentos sob pressão no sentido decrescente, pelo menos até 14.6 GPa . A curva de resistência elétrica do monocristal não magnético LuFe_2Ge_2 [3] é mostrada na fig.7.1, pois compostos de Lu, com a mesma estequiométrica e estrutura aos correspondentes HF de Yb, são ideais para subtrair a contribuição elétron-fonon das medidas de $R(T)$ dos compostos de Yb. No presente caso, embora as medidas de $R(T)$ no YbFe_2Ge_2 tenham sido feita numa amostra policristalina, como uma primeira aproximação, podemos subtrair a contribuição elétron-fonon usando o monocristal isoestrutural LuFe_2Ge_2 . Assim, a resistência elétrica do YbFe_2Ge_2 sem espalhamento por fônons, $R_{\text{pho}}(T)$ é calculada da seguinte forma: $R_{\text{pho}}(T) \sim \{R(T)_{\text{YbFe}_2\text{Ge}_2} - R(T)_{\text{LuFe}_2\text{Ge}_2}\}$. A figura 7.2 apresenta as curvas de $R_{\text{pho}}(T)$ para diferentes pressões, considerando a aproximação acima estabelecida.

Na estimativa aproximada de $R_{\text{pho}}(T)$ não está sendo levado em conta os seguintes fatores referentes às amostras: (i) a natureza da amostra é monocristal para o LuFe_2Ge_2 e policristal para YbFe_2Ge_2 . (ii) O fator geométrico das diferentes amostras. As medidas de resistência elétrica no LuFe_2Ge_2 foram feitas numa amostra sólida de geometria regular, enquanto que, para o YbFe_2Ge_2 a amostra se encontra em pó. (iii) A contribuição elétron-fônon não depende da pressão aplicada, pelo menos até o limite máximo de pressões atingido em nossos experimentos (~ 18 GPa). Esta mesma sistemática foi considerada no caso de outro composto isoestrutural de Lu, o LuCu_2Si_2 , usado para subtrair a contribuição dos fônons do YbCu_2Si_2 [4].

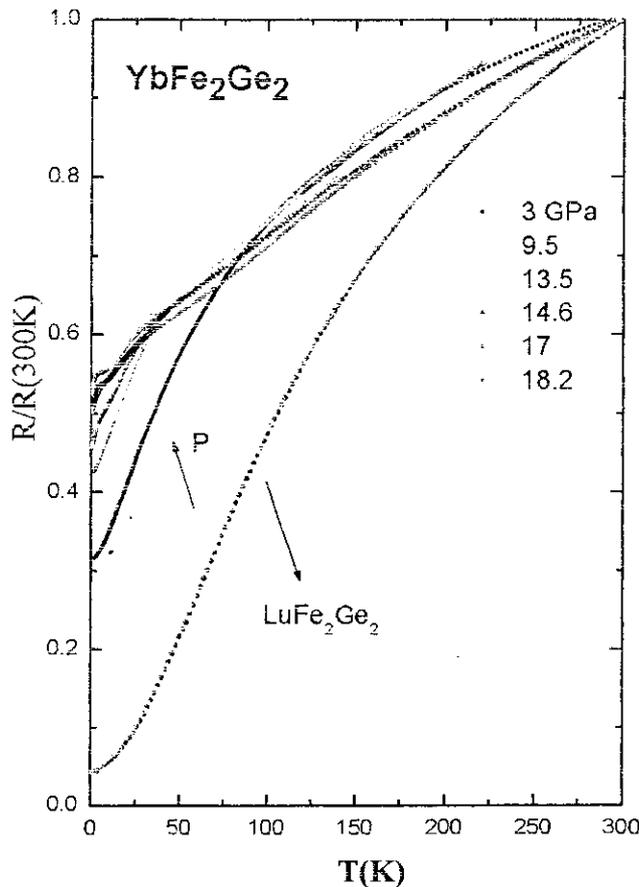


Figura 7.1 Curvas de resistência elétrica $R(T)$ do YbFe_2Ge_2 em diferentes pressões, normalizadas com respeito ao valor da resistência à temperatura ambiente (300 K). Nesta figura também se inclui a curva de resistência elétrica do monocristal LuFe_2Ge_2 , cedida por M. Avila e col. [3].

Em muitos materiais a contribuição elétron-fônon se faz mais relevante a altas temperaturas como ocorre também para o YbFe_2Ge_2 . Para estimar a contribuição elétron-fônon a baixas temperaturas usamos a relação de Bloch-Grüneisen $\rho_{\text{ph}} = 4R \Theta_D (T/\Theta_D)^5$ para a resistividade, quando $T \rightarrow 0\text{K}$. Consideramos que a temperatura de Debye para o YbFe_2Ge_2 é da mesma ordem de temperatura do composto isoestrutural YbCu_2Si_2 , $\Theta_D \approx 221\text{ K}$ [5]. O parâmetro R , que é proporcional à intensidade da interação elétron-fônon, pode ser da ordem de $R \sim 0.1 \mu\Omega\text{cmK}^{-1}$, valor típico encontrado em compostos intermetálicos de terra rara (RE) [6]. Assumindo a forma geométrica da amostra igual aquela de um disco circular sólido, com dimensões equivalentes ao porta amostra do *gasket*; se encontra que a contribuição à resistência elétrica por espalhamento dos fônons (R_{ph}) para o YbFe_2Ge_2 , abaixo de 5 K , é $R_{\text{ph}} < 2 \cdot 10^{-1} \mu\Omega$. A ordem de grandeza resistencial poderia ser estimada mesmo para uma amostra em pó, como é o caso da nossa amostra dentro da célula de diamante (DAC). Mesmo assim, o valor estimado da contribuição elétron-fônon em ultrabaixas temperaturas pode ser depreciado, já que, os valores da resistência residual para o YbFe_2Ge_2 encontram-se na ordem de $20\text{-}30\text{ m}\Omega$.

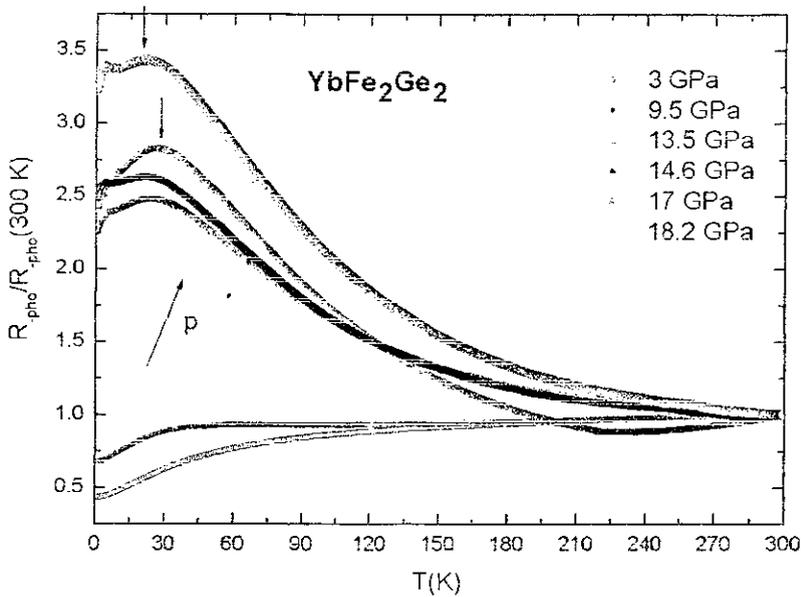


Figura 7.2 Contribuição magnética à resistência elétrica do YbFe_2Ge_2 , normalizada ao valor de resistência a temperatura ambiente, considerando a aproximação descrita. As setas para abaixo indicam o deslocamento de T_R^{max} e, para cima o aumento da pressão no texto.

Mesmo considerando que a contribuição elétron-fônon à resistência elétrica é subestimada a baixas temperaturas, a análise quantitativa dos dados de resistência elétrica pode ser feita usando as curvas de $R(T)$ mostradas na fig.7.1. Isto permite obter alguns parâmetros físicos como a temperatura que escala o comportamento líquido de Fermi (T_{coh}), a temperatura de ordem magnética (T_{mag}) e o valor do gap dos magnons (Δ). Por outro lado, os diferentes critérios assumidos no cálculo de $R_{pho}(T)$ limitam a análise quantitativa destas curvas, mostradas na fig. 7.2. No entanto, um comportamento qualitativo pode ser obtido da fig. 7.2, proporcionando informação importante sobre as mudanças das propriedades de transporte com a pressão.

Na fig. 7.2 observamos mudanças claras nas curvas de $R_{pho}(T)$ à medida que a pressão aumenta, tanto em altas temperaturas ($T > 50$ K) como em baixas temperaturas ($T < 30$ K). Assim mesmo, dois diferentes regimes de pressão, acima e abaixo de 9.5 GPa, podem ser definidos seguindo a dependência de $R_{pho}(T)$ com a temperatura T . As mudanças nas propriedades de transporte serão abordadas em cenários físicos diferentes para cada um destes regimes de pressão.

Para $p < 9.5$ GPa e para $T > 100$ K, o comportamento de $R(T)$ é similar ao de um metal, e a resistência elétrica aumenta linearmente com a temperatura T . Este comportamento é típico nos compostos de RE, tipo IV, onde a presença de um estado de valência intermediária assim como a influência do campo cristalino (CF) estão presentes a altas temperaturas. Ambos efeitos foram reportados nos férmions pesados $YbCu_2Si_2$ [7] e $YbNi_2Ge_2$ [8], isoestruturais ao $YbFe_2Ge_2$ (estrutura cristalina tetragonal do tipo $ThCr_2Si_2$), onde a carga elétrica associada ao íon de Yb possui um caráter de estado valência intermediária ($Yb^{2.8+}$). Recentemente, através de medidas de resistividade elétrica, susceptibilidade magnética $\chi(T)$ e calor específico $C(T)$ feitas em $p = 0$, J. Ferstl reportou para $YbFe_2Ge_2$ um estado de valência intermediária [2]. Embora que as nossas curvas de $R_{pho}(T)$ não permitam extrair a energia de ativação característica de um estado de valência intermediária, em princípio, podemos dizer que a valência intermediária do Yb e a presença do CF regula o comportamento de $R_{pho}(T)$ a altas temperaturas no $YbFe_2Ge_2$.

No regime de pressões $p < 9$ GPa, pode-se observar na fig. 7.2 algumas diferenças entre as curvas da $R_{pho}(T)$ para $p = 3$ GPa e 9.5 GPa; elas apresentam, no intervalo de 50-

100 K curvaturas diferentes. Um máximo no valor da resistência de $R_{\text{pho}}(T)$ pode ser observado em $p = 9.5$ GPa e, este se define melhor quando a pressão aumenta. Associando uma temperatura característica, T_R^{max} , para a qual a resistência de $R_{\text{pho}}(T)$ alcança um valor máximo, podemos obter informação sobre a mudança do estado magnético no YbFe_2Ge_2 , como veremos a seguir.

A fig. 7.2 mostra ainda uma drástica mudança no comportamento de $R_{\text{pho}}(T)$ acima de $p > 13.6$ GPa. A resistência em $R_{\text{pho}}(T)$ aumenta, em forma logarítmica, quando T diminui, sugerindo a presença do efeito Kondo [10]. Isto pode ser atribuído à presença de momentos localizados nos íons de Yb, induzidos para pressões acima de 13 GPa. Após a resistência $R_{\text{pho}}(T)$ alcançar um valor máximo em T_R^{max} , ela diminui com a temperatura. De acordo com o modelo teórico do Fischer [8], T_R^{max} é proporcional à temperatura característica da interação Kondo, T_K . A partir disto podem ser obtidas informações sobre as mudanças nas correlações eletrônicas quando a pressão aumenta. A comparação das curvas $R_{\text{pho}}(T)$ acima de 13.6 GPa, mostra que T_R^{max} diminui com a pressão. A diminuição de T_R^{max} (e também T_K) com a pressão está de acordo com o diagrama de fase para os férmions pesados de Yb, partindo de um estado fundamental não magnético (NMO) [9]. No YbFe_2Ge_2 se espera que altas pressões induzam um momento local nos íons de Yb, de maneira que o sistema completo possa ser visto como uma rede Kondo. Em princípio, a contribuição mais importante de $R_{\text{pho}}(T)$ a altas temperaturas é atribuída ao espalhamento Kondo; no entanto, a presença do CF deveria também ser considerada. Neste capítulo estamos interessados em estudar os fenômenos críticos quânticos que aparecem perto da temperatura de zero absoluto, portanto não abordaremos a análise quantitativa das curvas de $R(T)$ em altas temperaturas.

No intervalo de baixas temperaturas (< 30 K), ocorrem claras mudanças nas curvas de $R(T)$ quando a pressão aumenta, como é mostrada na figura 7.3 para valores de resistência elétrica, normalizadas a 300 K, num intervalo $T < 40$ K. Em pressões $p < 9.5$ GPa e abaixo de uma temperatura característica, $R(T)$ ocorre uma dependência com a temperatura do tipo T^ε , com $1 < \varepsilon < 2$. Por outro lado, acima de 13.5 GPa, a fig. 7.3 mostra inflexões (*bends*) nas curvas de $R(T)$, próximo de $T \sim 2$ K. Em comparação com outros tipos de férmions pesados de Yb, onde o ordenamento magnético é induzido por altas pressões [4, 7, 8, 11-14], as inflexões observadas na fig. 7.3 podem ser atribuídas a uma

transição magnética. Seguindo a evolução desta inflexões, podemos observar que a temperatura de transição magnética aumenta com a pressão, sendo uma indicação que o sistema se afasta da instabilidade magnética.

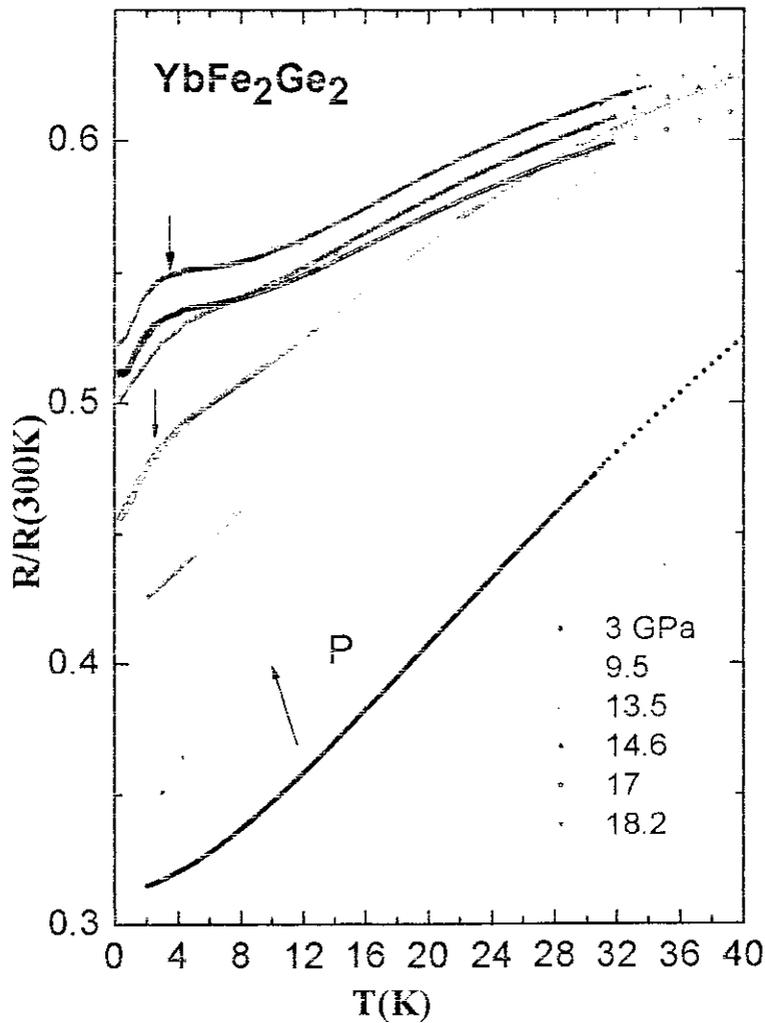


Figura 7.3. Curvas de resistência elétrica normalizadas a 300 K, no intervalo de temperaturas $T < 40$ K. As setas apontando para baixo mostram as inflexões nas curvas de $R(T)$ associadas a possíveis transições magnéticas, enquanto que a seta apontando para cima indica o aumento de P .

7.2.2 Expoentes efetivos e a evolução do estado fundamental do YbFe_2Ge_2 com a pressão.

Uma análise do expoente efetivo (ε) pode proporcionar informações sobre a evolução do estado físico do YbFe_2Ge_2 com a pressão. Considerando que a contribuição à resistência elétrica por espalhamento elétron-elétron, $R(T)$ tem uma dependência de lei de potência do tipo $\Delta R(T) = R - R_0 = AT^\varepsilon$, onde R_0 é a resistência residual e, de acordo com os valores de ε é possível reconhecer os diferentes estados físicos. Assim temos que, $1 < \varepsilon < 2$ caracteriza o estado não-líquido de Fermi (NLF) [13], $\varepsilon = 2$ está associado ao estado líquido de Fermi (FL) [15] e $\varepsilon > 2$ é característico de um estado magnético (MO) [4, 14]. Especificamente, para um material antiferromagnético (AF), com temperatura de Néel T_N , espera-se que para $T < T_N$, $3 \leq \varepsilon \leq 4$ [4]. A figura 7.4 apresenta a dependência de ΔR com a temperatura, em escala logarítmica, para pressões acima de 13 GPa. As pendentes das retas traçadas num intervalo de temperaturas onde ΔR é linear proporcionam o valor de ε .

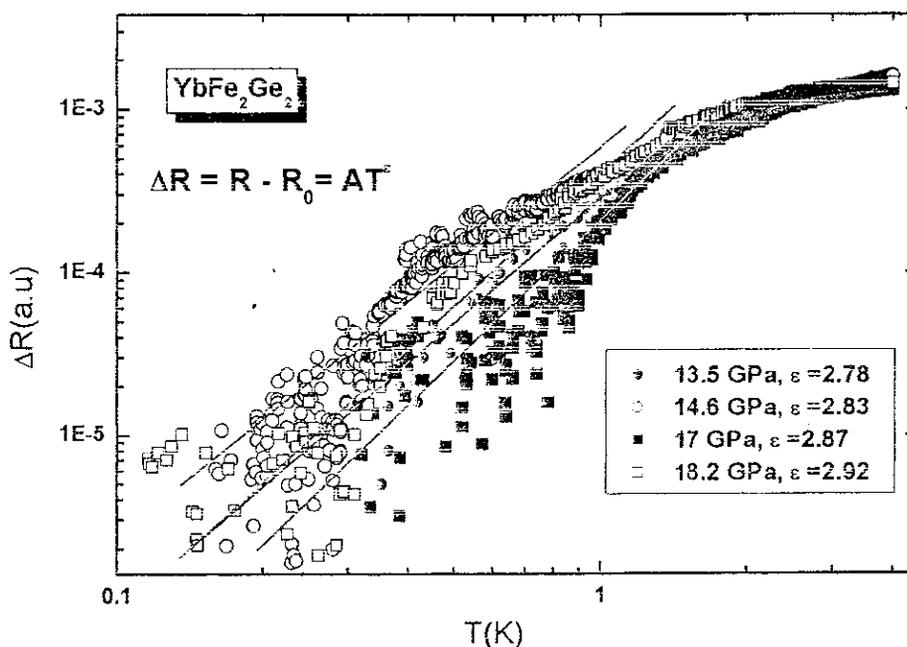


Figura 7.4 Dependência de ΔR com a temperatura, para pressões acima de 13 GPa. As linhas retas mostram o intervalo de temperaturas onde ΔR é linear. Os valores calculados de $\varepsilon > 2$ revelam o comportamento magnético do YbFe_2Ge_2 acima de 13 GPa.

Como apresentado na fig. 7.4, os valores para ε são maiores que 2, sugerindo que o material YbFe_2Ge_2 passa para um estado magnético para pressões acima de 13.5 GPa. Este resultado está de acordo com a aparição das inflexões observadas na fig. 7.3 no mesmo intervalo de pressões. Particularmente, o valor de ε está próximo a 3, como esperado para um material antiferromagnético. Um valor característico de $\varepsilon \sim 3$ foi reportado no composto YbCu_2Si_2 por K. A. Yadri e col. [4], onde uma ordem AF é induzida para pressões acima de 3GPa [4]. No presente caso do YbFe_2Ge_2 , este fato poderia servir para definir uma presumível ordem AF induzida por altas pressões.

O cálculo de ε para pressões menores que 9.5 GPa, realizado do mesmo modo que para $p > 13$ GPa é mostrado na figura 7.5 indicando a dependência do expoente efetivo para todo o intervalo de pressões p .

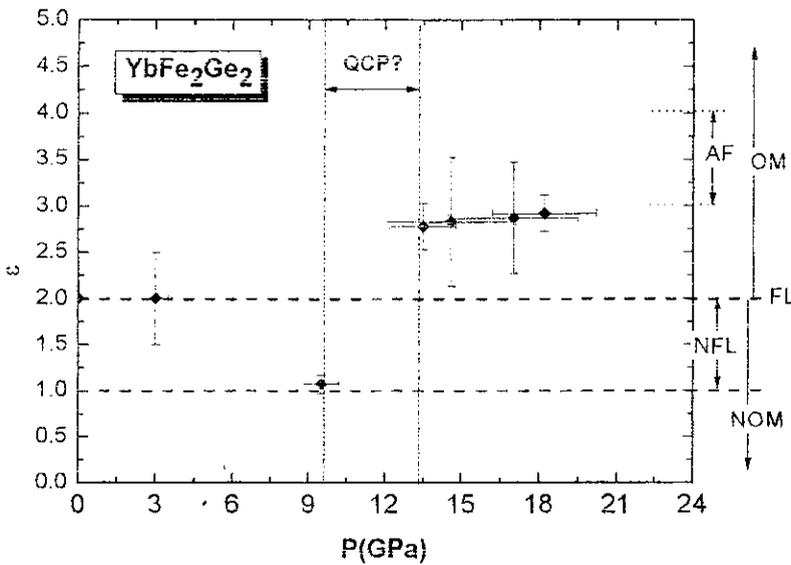


Figura 7.5. Dependência com a pressão do expoente efetivo ε . As linhas pontilhadas mostram os diferentes estados físicos do YbFe_2Ge_2 de acordo com ε e P : NFL=Não líquido de Fermi, FL = Líquido de Fermi, OM=Magnético, NOM = Não magnético, AF=antiferromagnético.

De acordo com os valores de ε na fig. 7.5, podemos diferenciar intervalos de pressão, onde as propriedades físicas do YbFe_2Ge_2 são distintas. Em pressões iniciais, $p < 3$ GPa, o estado líquido de Fermi é predominante. A medida que a pressão aumenta o estado FL colapsa em favor de um estado NFL ($\varepsilon \sim 1$). O valor de $\varepsilon = 1.1$ (1) em $p = 9.5$ GPa sugere que esta pressão se encontra no regime crítico quântico, próximo ao QCP. Acima de

$p = 13.5$ GPa, $\epsilon > 2$ sugerindo a presença de um estado magnético, possivelmente tendendo a uma ordem de longo alcance do tipo AF. Devido aos grandes intervalos na pressão entre 9.5 e 13.5 GPa, o QCP não pode ser definido com precisão; no entanto, ele parece estar mais próximo de 9.5 GPa.

O diagrama de ϵ vs P nos permitiu localizar os diferentes estados físicos do YbFe_2Ge_2 . O cenário físico propício para descrever cada um destes estados pode ser encontrado na simples descrição do diagrama de Doniach para os férmions pesados [9]. A interação entre os elétrons $4f$ e os elétrons de condução leva a uma delicada competição entre as interações Kondo e RKKY. Esta competição é usualmente descrita pelo diagrama de fase magnético de Doniach [9], onde a temperatura característica de ambas interações ($T_K \propto e^{-1/nJ}$ e $T_{\text{RKKY}} \propto J^2$) é representada em função do parâmetro de ordem $x = |Jn|$, sendo J a constante de troca e n a densidade de estados dos elétrons de condução no nível de Fermi. Experimentalmente, a pressão pode ser usada como parâmetro de controle ($x \sim p$) para explorar esta delicada competição. No estado não magnético do YbFe_2Ge_2 , o predomínio da interação Kondo é favorecido pelo caráter de valência intermediária do íon de $\text{Yb}^{+\sigma}$ ($2 < \sigma < 3$). Na vizinhança da transição NMO-MO, a aplicação da pressão induz uma localização da carga no íon de Yb, passando de um estado de valência intermediária para um estado de valência trivalente Yb^{3+} . A nova valência trivalente do Yb favorece a aparição de um momento magnético localizado nos íons de Yb na rede, onde o acoplamento entre eles, através da interação de troca RKKY, produz o ordenamento de longo alcance. No entanto, as medidas de resistência elétrica não permitem obter informações do efeito local na mediação da RKKY, quer dizer, que papel desempenham os sítios de Ge e Fe no acoplamento magnético das diferentes camadas de Yb. Esta informação revelaria o tipo de ordem magnética induzida por pressão. Recentemente, medidas de espectroscopia Mössbauer no YbFe_2Ge_2 estão sendo feitas pelo grupo de espectroscopia Mössbauer do CBPF para esclarecer o tipo de ordenamento magnético [16].

7.3 Discussão dos resultados

Os resultados apresentados na seção anterior mostram para o YbFe_2Ge_2 três claros regimes de pressão onde as propriedades físicas são diferentes: 1) $p < 9.5$ GPa caracterizado pelo comportamento não magnético, próximo à instabilidade magnética, 2) $9.5 \text{ GPa} < p < 13.5$ GPa, que deveria conter o QCP e; 3) $p > 13.5$ GPa caracterizado pela aparição do magnetismo.

No que segue tentaremos entender os mecanismos físicos envolvidos nos fenômenos críticos quânticos que regulam a transição NMO-QCP-MO. A escolha do cenário físico que descreva o comportamento crítico quântico deverá ser consistente com os resultados obtidos nas medidas de $R(T)$, assim como, com algumas particularidades nas interações entre os íons de Yb dentro da estrutura cristalina.

7.3.1 Líquido de Fermi (FL) conduzido para o ponto crítico quântico (QCP).

Uma análise cuidadoso da $R(T)$ vs. T^2 apresentada na figura 7.6 para as pressões menores que 9.5 GPa, mostrando que a $R(T)$ possui uma dependência linear com T^2 abaixo de uma temperatura conhecida como a temperatura de coerência (T_{coh}). Esta temperatura escala com o estado líquido de Fermi (FL) na região não magnética [15]. O estado fundamental do YbFe_2Ge_2 ($p=0$), não magnético, exibe um comportamento FL abaixo de $T_{\text{coh}} \sim 5$ K. Em princípio, espera-se que o colapso da $T_{\text{coh}} \rightarrow 0\text{K}$ numa determinada pressão crítica p_C esteja associado à transição NMO-QCP. Assim mesmo, a fig. 7.6 mostra que para $p = 9.5$ GPa, a dependência de $R(T)$ com T^2 não é linear, sendo uma indicação que não existe presença de um estado FL, pelo menos até $T = 2\text{K}$. Uma análise mais cuidadoso dos dados da $R(T)$ em 9.5 GPa sugere uma dependência linear de $R(T)$ com a temperatura, como veremos a seguir.

A figura 7.7 mostra a dependência de $\Delta R = R - R_0$ com a temperatura T , acima de 2K, para a pressão $p = 9.5$ GPa. Uma análise cuidadosa de $\Delta R(T)$ vs. T^α revela que $R(T)$ varia linearmente com $T^{1.1 \pm 0.1}$ sobre um intervalo de temperaturas entre 2K-20K. O valor característico deste expoente indica a presença de um estado NLF em $p = 9.5$ GPa, numa escala de temperaturas de duas dezenas de Kelvins. O estado NLF caracteriza o QCP, ou a região muito próxima a ele. Como a medida de resistência elétrica em $p = 9.5$ GPa só foi

feita até 2K, não podemos afirmar que a pressão 9.5 GPa corresponde à pressão crítica que define o QCP do YbFe_2Ge_2 . No entanto, a presença de um estado NLF em 9.5 GPa revela que esta pressão se encontra dentro da região crítica quântica.

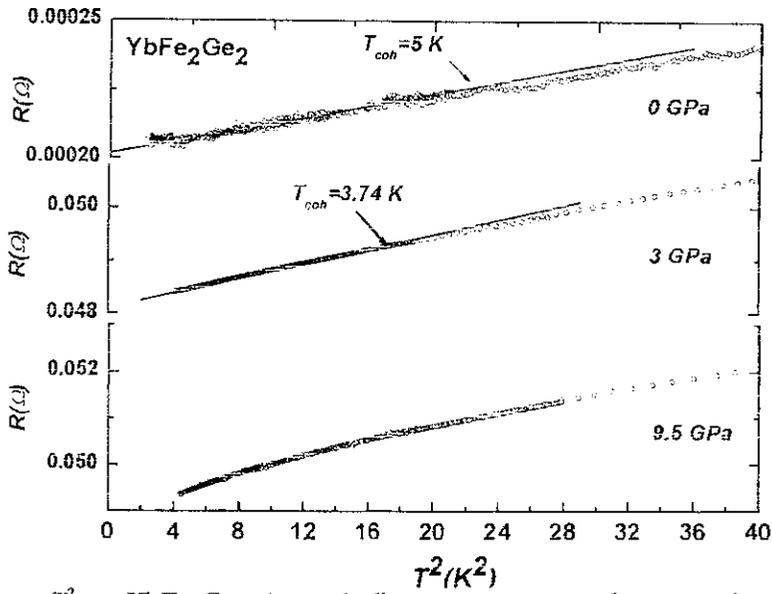


Figura 7.6. $R(T)$ vs. T^2 no YbFe_2Ge_2 . A seta indica a temperatura de coerência (T_{coh}) abaixo da qual o sistema apresenta um comportamento líquido de Fermi (FL).

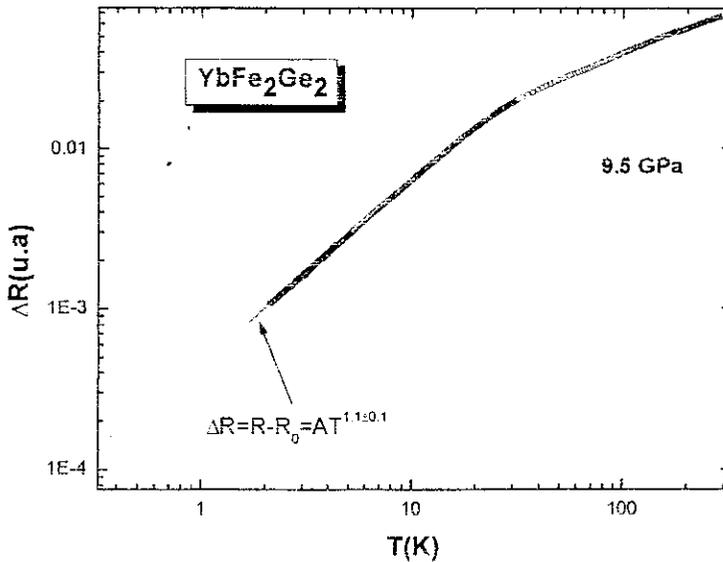


Figura 7.7 Análise de ΔR vs T , onde uma dependência linear de ΔR com $T^{1.1 \pm 0.1}$ é encontrado num intervalo de temperaturas entre 2-20K

Usualmente se assume que, na região crítica quântica, o espalhamento incoerente dos elétrons pelas quasepartículas é mediado pelas excitações fundamentais e as flutuações de spin [17-24]. Um modelo teórico que proporciona um cenário físico apropriado na descrição da região crítica quântica é a teoria das flutuações de spin (SFT), esta teoria prediz $\Delta R \propto T^\beta$ com $\beta = (d+2)/z$, para o caso FM, e $\beta = d/z$, para o caso AF, sendo d a dimensionalidade espacial e, z o expoente dinâmico das flutuações de spin [17,18]. Além disso, um sistema antiferromagnético tem $z=2$ e um ferromagnético tem $z=3$. Para uma transição FM-QCP, $\beta=5/3$ em sistemas tridimensionais (3D) e, $\beta=4/3$ em sistemas bidimensionais (2D) [25]. Por outro lado, para uma transição AF-QCP, $\beta=3/2$, para um sistema 3D e $\beta=1$, para um sistema 2D [17,18].

Em nosso caso, a interpretação mais simples para dependência de $\Delta R \propto T^{1.1}$ sugere que, a presença das flutuações de spin de caráter AF ($z=2$) com dimensionalidade efetiva próxima a $d=2$, ou a situação anômala com $d \cong z > 2$, governem o comportamento crítico quântico do YbFe_2Ge_2 . Na realidade, as flutuações de spin 2D é o cenário físico mais apropriado para explicar o comportamento crítico se consideramos algumas particularidades da estrutura cristalina do YbFe_2Ge_2 , que é tetragonal do tipo ThCr_2Si_2 (ver cap. 4). No YbFe_2Ge_2 , a distância entre os íons de Yb num mesmo plano é um terço da distância entre as camadas adjacentes de Yb [2]. Assim, a estrutura cristalina do YbFe_2Ge_2 favorece à frustração geométrica do acoplamento entre os spins ao longo da direção c , conduzindo a um desacoplamento entre camadas adjacentes de Yb e, dando um caráter bidimensional ao espectro das flutuações de spin. A natureza da dimensionalidade das flutuações de spin deve governar ambos lados do diagrama próximo ao QCP; porém, evidências de um espectro de flutuações de spin bidimensional deveria ser encontrado no estado magnético.

7.3.2 Magnetismo induzido no YbFe_2Ge_2 em pressões acima do QCP.

A temperatura de ordem magnética (T_{mag}) é estimada a partir do mínimo na segunda derivada na resistência elétrica, d^2R/dT^2 . O erro em T_{mag} está associado à dispersão de T_{mag} encontrada em diferentes intervalos de temperatura. Os valores de T_{mag} e T_{coh} são apresentados na tabela 7.1 enquanto que a dependência de ambas quantidades com a pressão é mostrada na figura 7.8. A temperatura de ordem magnética aumenta com a pressão, sendo uma indicação que o sistema YbFe_2Ge_2 se afasta da instabilidade magnética para um ordenamento magnético de longo alcance.

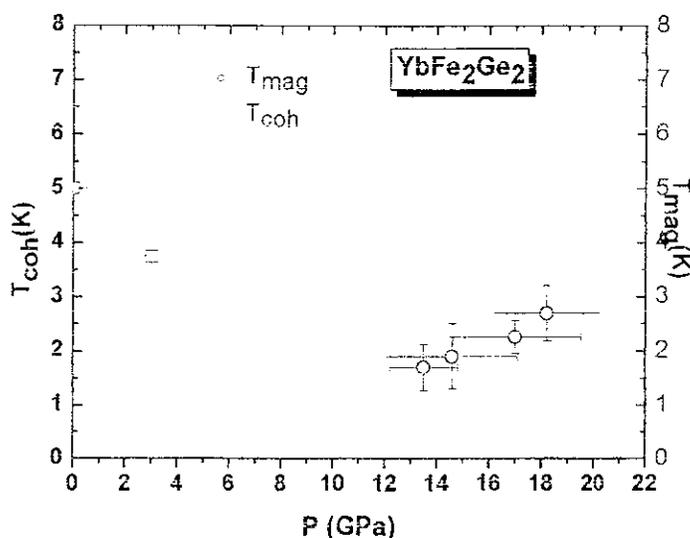


Figura 7.8 Temperatura de coerência (T_{coh}) e temperatura magnética (T_{mag}) em função da pressão.

A fase magnética induzida acima de 13.5 GPa pode estar caracterizada pela presença de um espectro de excitações magnéticas (magnons). Considerando o tipo de ordem magnética dos momentos magnéticos locais do Yb dentro da estrutura cristalina pode-se calcular um gap anisotrópico nas ondas de spin (Δ). Da análise anterior se tem evidências de que a ordem magnética induzida no YbFe_2Ge_2 pode ser AF, da mesma maneira como tem sido reportada em outros férmions pesados de Yb [11-14].

Os dados de resistência elétrica a baixas temperaturas no YbFe_2Ge_2 , na fase de ordem magnética, podem ser descritos aproximadamente pela fórmula

$$R(T) = R_{sw}(T) + mT^n \quad (7.1)$$

Aqui, (R_{sw}) é a contribuição do espalhamento dos elétrons de condução pelas ondas de spin, que depende essencialmente do tipo de espectro de excitação e o segundo termo, T^n , com $1 < n \leq 2$, é a contribuição por espalhamento elétron-elétron (E-E).

Tabela 7.1 Valores da temperatura magnética (T_{mag}), temperatura de coerência (T_{coh}), gap das ondas de spin (Δ), coeficiente A da eq.(7.1) e a temperatura que escala o comportamento não líquido de Fermi (T_{NFL}).

P(GPa)	T_{mag} (K)	Δ/k_B (K)	$A(10^{-4}\Omega/K)$	T_{coh} (K)	T_{NFL} (K)
0	-				-
3	-			3.74(20)	
9.5	-			-	20.0(8)
13.5	1.70(43)	1.82(17)	3.7(4)	-	
14.6	1.90(60)	2.65(50)	3.5(7)	-	
17	2.26(30)	3.40(30)	3.9(9)	-	
18.2	2.69(50)	4.35(40)	4.4(5)	-	

Usualmente, na fase magnética ordenada e em baixas temperaturas, $R(T)$ apresenta uma contribuição mais importante das onda de spin que a contribuição por espalhamento E-E [26]. Assim mesmo, pelo fato de que o espectro de onda de spin depende do tipo de ordem magnética, a dependência com a temperatura da resistência elétrica deveria, em princípio, permitir extrair alguma informação sobre o tipo de ordenamento magnético de longo alcance [27].

Em antiferromagnetos, com anisotropia magnética, existe uma relação de dispersão para as ondas de spin, dada por $\omega = \sqrt{\Delta^2 + D^2 k^2}$, a qual conduz a uma dependência da resistência elétrica com a temperatura, dada por [27,28]

$$R_{SIF}(T) = R_0 + A \left(\frac{\Delta}{k_B} \right)^{3/2} T^{1.2} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \left[1 + \frac{2}{3} \left(\frac{k_B T}{\Delta} \right) + \frac{2}{15} \left(\frac{k_B T}{\Delta} \right)^2 \right] \quad (7.2)$$

O coeficiente A está relacionado à velocidade onda de spin D por $A \propto 1/D^3$ ou $A \propto 1/\Gamma^2$, onde Γ é o acoplamento magnético efetivo entre os ions de Ce [27]. O coeficiente A pode também ser relacionado com a rigidez (*stiffness*) das ondas de spin φ por $A \propto 1/\varphi^{3.2}$ [27]. A relação entre colchetes na eq. (7.2) é valida só para $k_B T < \Delta$ [27, 28]. Os valores do gap Δ e o coeficiente A estão na tabela 7.1.

A figura 7.9 mostra os ajustes das curvas de resistência elétrica usando as equações (7.1) e (7.2), num intervalo de temperaturas (T_{fit}) onde a aproximação da eq. (7.2) é válida, quer dizer, $T_{fit} \leq 0.55 T_{mag}$. Observamos na fig. (7.9) que, o afastamento da instabilidade magnética conduz a um comportamento mais exponencial das curvas de $R(T)$, que é uma clara indicação da presença dos magnons.

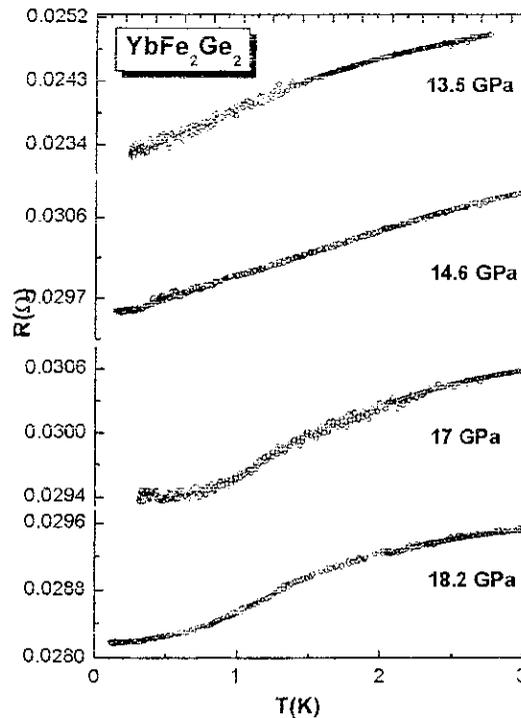


Figura 7.9. Ajustes das curvas de resistência elétrica $R(T)$ usando as equações (7.1) e (7.2) para o cálculo do gap das ondas de spin AF.

Como foi considerada uma ordem AF para o YbFe_2Ge_2 , na discussão que segue, utilizaremos o termo T_N em vez de T_{mag} . Assim, a figura 7.10 mostra a dependência com a pressão dos valores de temperatura de ordem AF $T_N(P)$, gap das ondas de spin, $\Delta(P)$, e o coeficiente $A(P)$, calculados da combinação das equações (7.1) e (7.2).

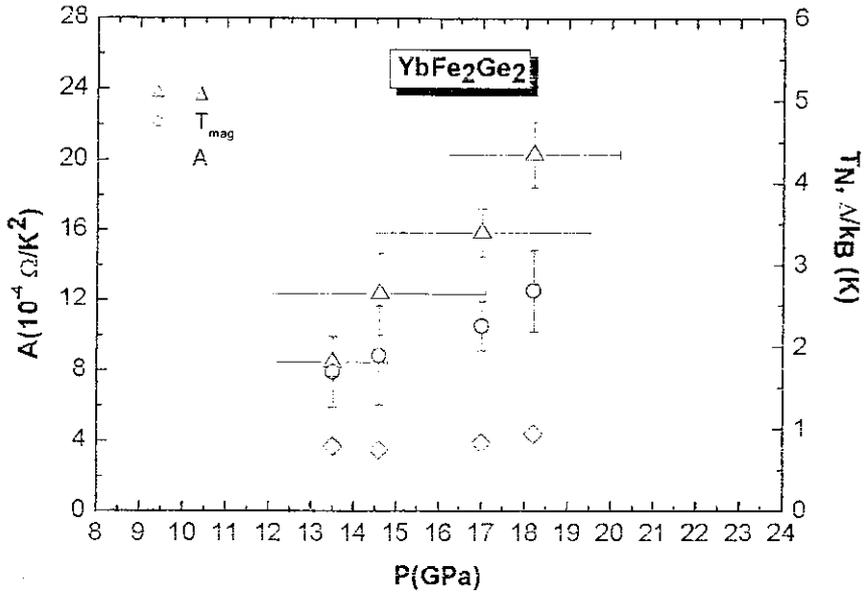


Figura 7.10 Dependência com a pressão da temperatura de ordem magnética $T_N(P)$, do gap das ondas de spin AF, $\Delta(P)$, e o coeficiente $A(P)$.

A fig. 7.10 mostra que $T_N(P)$ e $\Delta(P)$ aumentam com a pressão, enquanto que, $A(P)$ permanece constante sugerindo que as quantidades $T_N(P)$ e $\Delta(P)$ estão correlacionadas. O aumento de $T_N(P)$ e $\Delta(P)$, com a pressão, revela que o material YbFe_2Ge_2 se afasta de uma situação de instabilidade magnética, região na qual se encontra o QCP. Da extrapolação de ambas quantidades para zero (0K), se definem duas pressões críticas, P_C e P_C^{gap} , para $T_N(P)$ e $\Delta(P)$, respectivamente. Numa comparação simétrica com os férmions pesados de Ce, na região crítica quântica, se espera que o colapso de ambas grandezas físicas $T_N(P)$ e $\Delta(P)$ ocorram numa única pressão crítica P_C , a qual define o QCP [27 - 29]. Por outro lado, considerando que a tendência constante do coeficiente A se mantenha até o QCP na fig. 7.10, o comportamento crítico de $T_N \rightarrow 0\text{K}$ não pode ser explicado pela perda do acoplamento magnético, já que $\Gamma \neq 0$ ($A \neq 0$) ainda no QCP. Isto é uma indicação que o comportamento crítico de $T_N(P)$, pode ser atribuído à perda da anisotropia do gap, quer

dizer, $\Delta \rightarrow 0$. De modo semelhante aos férmions pesados de Ce, próximos ao QCP, o cenário físico das flutuações de spin bidimensionais (SF-2D) seria o mecanismo apropriado para explicar as propriedades anômalas do YbFe_2Ge_2 na região crítica quântica, mostrada na fig. 7.10. Antes de continuar com a discussão do cenário das ondas de spin, uma estimativa do QCP do YbFe_2Ge_2 será feita a seguir.

A escassez de pontos experimentais para T_{coh} na fase não magnética impede uma análise para o cálculo do QCP a partir desta parte do diagrama. Uma situação diferente é encontrada do lado magnético. Em princípio, a ordem de grandeza de T_N (< 3 K) favorece a utilização de modelos teóricos como a SFT para descrever o comportamento crítico de T_N . As previsões da SFT são apropriadas para sistemas governados por escalas de temperatura suficientemente baixas ($T \rightarrow 0$) e, a distâncias bem próximas ao QCP [15, 17, 18, 19, 21]. Considerando a distância ao QCP como $\delta = |P - P_C|$, a SFT prediz uma lei de potência que regula o comportamento crítico de T_N , tipo $T_N \propto |\delta|^{z(d-z-2)}$. Para um sistema quase AF ($z=2$) $T_N \propto |\delta|^{2/3}$ ou $T_N \propto |\delta|^1$, para o caso das flutuações de spin tridimensional (3D), ou bidimensional (2D), respectivamente [17, 18]. Por outro lado, para um composto AF 3D, com $z=1$, a teoria de campo médio (MFT) prediz $T_N \propto |\delta|^{1/2}$ [19].

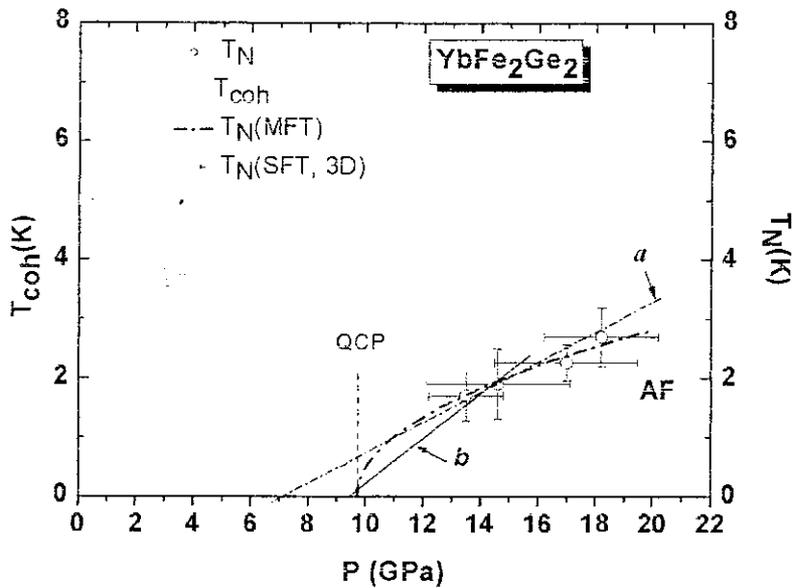


Figura 7.11 Ajustes para $T_N(P) \propto |\delta|^\psi$, onde ψ é predito pelos modelos teóricos: Flutuação de spin (SFT) e Campo Médio (MFT). As linhas retas seguem a lei de potência predita pela SFT para o caso de um AF em 2D ($\psi=1$).

A figura 7.11 mostra uma comparação entre os ajustes com diferentes lei de potências propostas pelos modelos teóricos SFT e MFT, num intervalo de pressões $p < 18.2$ GPa. Podemos observar que os ajustes de $T_N(p)$ com cada um destes modelos conduzem a diferentes pressões críticas. No caso SFT, a extrapolação de $T_N(p) \rightarrow 0K$ leva a duas pressões críticas diferentes, $P_C^{\text{SFT-3D}} \sim 9.3$ GPa e $P_C^{\text{SFT-2D}} \sim 7$ GPa, para os casos das flutuações de spin 3D e 2D, respectivamente. Por outro lado, a extrapolação de $T_N(p) \rightarrow 0K$ baseada no MFT conduz a uma pressão crítica $P_C^{\text{MFT}} \sim 9.7$ GPa.

Considerando que em $p = (9.5 \pm 0.7)$ GPa, o composto YbFe_2Ge_2 exibe um comportamento NLF, o QCP deveria estar localizado ou nesta pressão ou muito próxima dela. Tomando em consideração a barra de erro em $p = 9.5$ GPa, o valor extrapolado $P_C^{\text{SFT-2D}} \sim 7$ GPa deveria ser descartado (ver reta *a*). Embora os ajustes feitos com base nos modelos SFT e MFT conduzam a valores de pressão crítica muito próximos a 9.5 GPa, a escolha de um deles como QCP dependerá das propriedades físicas do sistema YbFe_2Ge_2 na região crítica quântica. Do comportamento $R(T) \propto T^{1.1}$ em $p = 9.5$ GPa, associado às flutuações 2D do tipo AF, as previsões feitas pela SFT em 3D podem ser descartadas nas proximidades do QCP. Assim, a pressão crítica $P_C = 9.7$ GPa, estimada pela MFT, é o valor mais apropriado para o QCP no YbFe_2Ge_2 .

Devido à escassez de pontos para T_N nas regiões muito próximas do QCP, existe uma limitação na aplicação da SFT para o caso 2D. Do ponto de vista físico, a escolha de um intervalo de pressões onde o comportamento crítico de $T_N(p)$ é linear está associada a natureza quântica das flutuações de spin 2D. A criticalidade de $T_N(p)$ pode ser satisfatoriamente explicada pela SFT 2D se reduzirmos o intervalo de pressões onde $T_N(p)$ é linear, de 18.2 GPa para 14.6 GPa. A extrapolação de uma reta $T_N(p) \rightarrow 0K$ dentro de $p < 14.6$ GPa (ver reta *b*, na fig. 7.11) conduz a pressão crítica ~ 9.7 GPa, a mesma obtida pela MFT. Dentro deste contexto, o comportamento crítico de T_N pode ser descrito pela lei de potência $T_N \propto |\delta|^{1/2}$ em regiões não tão próximas ao QCP; enquanto que, $T_N \propto |\delta|^1$ em regiões próximas ao QCP. Isto é uma indicação que, o que a dimensionalidade e o caráter das flutuações de spin mudam nas proximidades do QCP, conduzindo a um cruzamento (*crossover*) de $d=3$ e $z=1$ para $d=2$ e $z=2$. O mesmo *crossover* no expoente efetivo de $z=1$ para $z=2$, numa transição AF-QCP, foi reportado no férmion pesado AF $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$

[27]. Em analogia a este composto de Ce, podemos sugerir que $z = 2$ governa o comportamento crítico quântico do YbFe_2Ge_2 na transição QCP-AF.

Tendo definido o QCP do YbFe_2Ge_2 na pressão crítica $P_C = 9.7$ GPa, passaremos a discutir, através de uma teoria de onda de spin (SWT), as evidências do comportamento bidimensional das flutuações de spin na região crítica. Em princípio, um análise considerando as ondas de spin bidimensionais pode ser feita, considerando a estrutura magnética do YbFe_2Ge_2 como formada por planos ab AF, sem acoplamentos entre eles ao longo do eixo c . Assim, para um sistema com dimensão $d = 2$ e $S = 1/2$ só existirá ordem de longo alcance, a temperaturas finitas, na presença de um gap de ondas de spin. A temperatura crítica T_N é dada por:

$$k_B T_N = \frac{2\Gamma}{\sqrt{1 + (\Delta/\Gamma)^2} \ln \left[1 + \frac{\pi^2}{2(\Delta/\Gamma)^2} \right]} \quad (7.3)$$

onde para uma rede quadrada, $\Gamma = \sqrt{2} (D/a)$ [27]. Note-se que quando $\Delta \rightarrow 0$, a temperatura de Néel se anula, tal como é esperado para um sistema isotrópico em $d=2$.

Supondo que o comportamento com a pressão de $T_N(P)$, $\Delta(P)$ e $A(P)$, observado na fig. 7.10, é mantido do QCP até a pressão 18.2 GPa, podemos usar a eq. (7.3) para calcular a constante de acoplamento efetivo Γ . A partir da relação $A \propto 1/\Gamma^3$ se escolhe um intervalo de pressões onde o comportamento de $A(p)$ é constante. Considerando os valores de $\Delta/k_B = 2.65$ K e $T_N = 1.90$ K, em $p = 14.6$ GPa, encontramos $\Gamma/k_B = 2.21$ K. O valor obtido para o coeficiente Γ é fisicamente razoável quando comparado com valores obtidos para os compostos férmions pesados antiferromagnéticos $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$ (ver cap. 5) e $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$ [27], e para rede Kondo FM CePt (ver. cap. 6).

Na figura 7.10 pode-se observar que o gap aumenta linearmente com a pressão e extrapolando $\Delta(P) \rightarrow 0$ K se obtém uma pressão crítica para o gap, $P_C^{\text{Gap}} \sim P_C = 9.7$ GPa. Assim, considerando a linha reta $\Delta(P) = 0.5014 (P - P_C^{\text{Gap}})$ e o valor de $\Gamma/k_B = 2.21$ K, a eq. (7.3) reproduz satisfatoriamente $T_N(P)$ no intervalo de pressões que se mostra na figura 7.12.

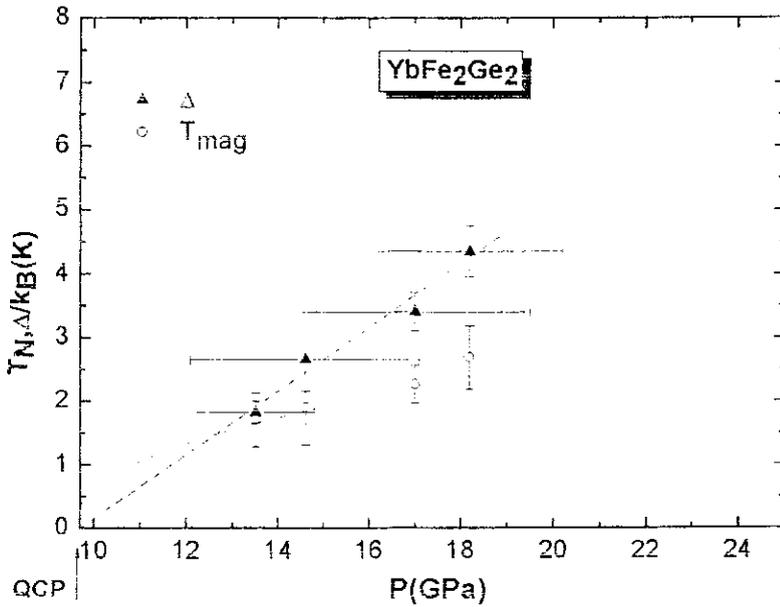


Figura 7.12 Dependência com a pressão de T_N (linha sólida) obtida a partir do comportamento do gap descrito pela linha pontilhada, e da eq. (7.3) com $\Gamma/k_B = 2.21$ K, considerada constante.

A figura 7.12 apresenta a linha calculada para $T_N(P)$ a partir da eq. (7.3) com um aumento mais abrupto que o comportamento linear calculado pela SFT-2D, em pressões muito próximas ao QCP. Assim mesmo, o cálculo de linha $T_N(P)$ com a eq. (7.3) sugere que o gap das ondas de spin, $\Delta(P)$, é um parâmetro de ordem que mede distância ao QCP $\Delta(P) \propto |\delta|$ e, regula o comportamento crítico de $T_N(P)$. Fisicamente, este fato está relacionado ao cenário físico proposto por Hertz, onde o comportamento linear do gap é associado aos modos de onda de spin amolecidos (*soft modes*) na região de instabilidade magnética [19]. Assim, os modos de spin amolecidos e o caráter 2D das ondas de spin proporcionam um cenário físico apropriado para a descrição do comportamento crítico quântico do YbFe_2Ge_2 , mesmo em distâncias não tão próximas ao QCP. Este mecanismo também tem sido considerado na criticalidade quântica dos compostos AF $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$ [27] e CeRh_2Si_2 [30], podendo que pode ser adotado em todos aqueles sistemas férmions pesados AF que apresentem uma queda abrupta de T_N perto do QCP.

O modelo teórico proposto pela simples relação (7.3), dentro de um cenário físico de onda de spin 2D, proporciona argumentos para adotar o caráter bidimensional das flutuações magnéticas no YbFe_2Ge_2 .

Por outro lado, uma mudança no espectro dos magnons AF pode ser esperada ao se afastar do QCP. Em pressões suficientemente próximas do QCP, o sistema pode ser considerado como 2D, com $z=2$ como expoente crítico que caracteriza as flutuações de spin, pois nesta região crítica se espera um caráter bidimensional das excitações magnéticas. As flutuações de spin 2D mudam o comportamento das ondas de spin, tornando-as mais isotrópicas, quer dizer, $\Delta \rightarrow 0$ quando $P \rightarrow P_C$. Afastando-se do QCP, o aumento de T_N é controlado pelo Δ , de maneira que a mudança na dimensionalidade do espectro das ondas de spin de 2D para 3D carrega consigo um aumento na dimensionalidade das flutuações de spin de 2D para 3D. Aqui, o caráter 3D das excitações magnéticas longe do QCP é assumido no YbFe_2Ge_2 em analogia aos compostos férmions pesados de Ce (ver cap. 5 e ref. [27]). Dentro deste cenário se espera um *crossover* do expoente dinâmico de $z=2$ para $z=1$, caracterizando o estado magnético fora da região crítica quântica. Uma redução na dimensionalidade das flutuações de spin, assim como o “*crossover*” no expoente dinâmico z , foi proposta por Contenentino e col. afim de explicar o comportamento crítico no férmion pesado AF $\text{CeCoGe}_{2.25}\text{Si}_{0.75}$ [27]. Este mesmo argumento poderia ser válido para o YbFe_2Ge_2 , considerando a analogia elétron-buraco estabelecida com os HF de Ce.

A presente análise assume que os momentos magnéticos locais induzidos nos íons de Yb não são extintos (*unquenched moments*) no QCP. Em nossos experimentos, o gap diferente de zero garante o ordenamento de longo alcance, desde 13.5 GPa. A tendência constante do coeficiente $A(p)$ permite assumir que a rigidez das ondas de spin ϕ é diferente de zero no QCP. Dentro deste cenário físico, se espera que as flutuações magnéticas 2D tenham um papel fundamental nas propriedades físicas do estado NLF no QCP [17-19, 27, 31]. Evidências sobre o aumento da dimensionalidade do espectro de ondas de spin de 2D para 3D, assim como a presença de momento local no QCP do YbFe_2Ge_2 devem ser confirmadas por medidas de difração de nêutrons ou por espectroscopia Mössbauer.

7.4 CONCLUSÕES

A análise das medidas de resistência elétrica $R(T)$ sob pressão no férmion pesado YbFe_2Ge_2 revela diferentes propriedades físicas com o aumento da pressão. Um diagrama de fase para este composto é proposto na figura 7.13.

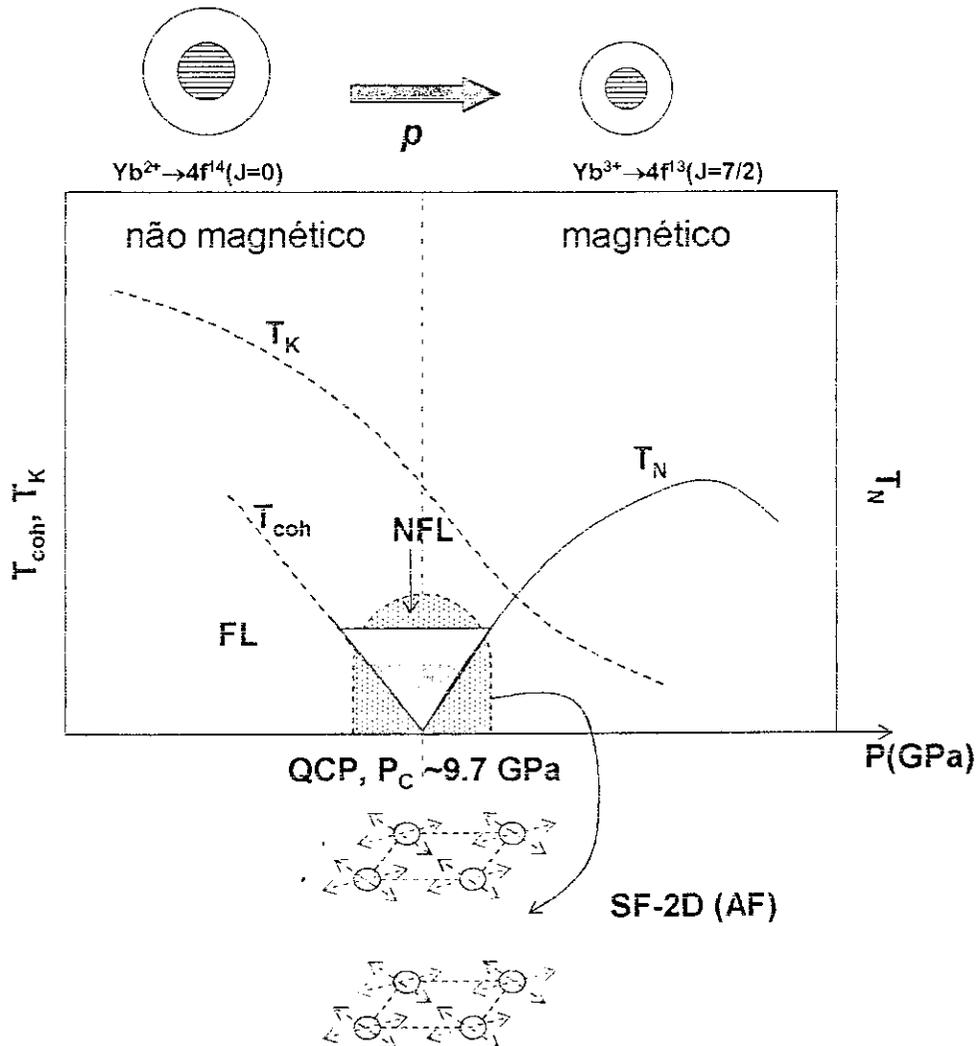


Figura 7.13. Diagrama de fase do YbFe_2Ge_2 , proposto a partir da análise das medidas de resistência elétrica sob pressão. T_N = Temperatura de Néel, T_{coh} = Temperatura de coerência, T_K = temperatura de Kondo. FL = Líquido de Fermi, NFL = Não líquido de Fermi, QCP = Ponto crítico quântico, SF-2D (AF) = Flutuação de spin bidimensional tipo antiferromagnético.

Em pressões menores que $P \sim 3$ GPa, o estado fundamental do YbFe_2Ge_2 apresenta um estado não magnético e de valência intermediária, com um comportamento *líquido de Fermi (FL)* abaixo da temperatura de coerência (T_{coh}). Acima de 3 GPa se espera que uma redução de T_{coh} , sendo que em 9.5 GPa a curva de $R(T)$ mostra um desvio do comportamento líquido de Fermi, pelo menos dentro do intervalo 2-20 K. Nesta pressão, $R(T)$ varia com $T^{1.1 \pm 0.1}$, o qual está associado a um comportamento *não-líquido de Fermi (NFL)*, governado pelas flutuações de spin bidimensional (2D) do tipo antiferromagnética (AF). Este comportamento sugere que o QCP esta muito próximo desta pressão. Acima de 13.5 GPa, a presença de inflexões nas curvas $R(T)$ próximo de 2K sugere o aparecimento de um momento magnético local nos íons de Yb. A análise das curvas $R(T)$ do lado magnético sugere que a ordem magnética induzida é AF. Assim mesmo, a extrapolação da temperatura de ordem AF (T_N) para $T_N \rightarrow 0\text{K}$ prediz um ponto crítico quântico (QCP) na pressão crítica, $P_C \sim 9.7$ GPa. Considerando a analogia elétron-buraco com os férmions pesados magnéticos de Ce, a aparição do magnetismo no YbFe_2Ge_2 pode ser explicada através da mudança do estado de carga do íon de Yb por efeito de pressão, passando de um estado de valência intermediária ($\text{Yb}^{\sigma+}$, $2 < \sigma < 3$) para um estado de carga trivalente (Yb^{3+}), este último magnético.

O comportamento crítico quântico do YbFe_2Ge_2 foi estudado a partir da análise das curvas $R(T)$ com os modelos teóricos de flutuação de spin (SFT) 2D e de ondas de spin (SWT) 2D. Usando as predições da SFT - 2D se encontra, para $P = 9.5$ GPa, um comportamento NLF regulado pelas flutuações de spin 2D do tipo AF. Isto pode ser tomado como uma indicação de que o tipo de ordem magnética induzida, na transição QCP-magnético, seja AF. Por outro lado, no lado magnético, a análise das curvas de $R(T)$ através da SWT-2D permite obter uma dependência com a pressão dos valores do gap anisotrópico das excitações magnéticas $\Delta(P)$ e, o coeficiente $A(P)$ associado à rigidez das ondas de spin. A extrapolação destes valores desde a P_C até pressões maiores revela que, T_N e Δ aumentam com a pressão, sendo que Δ aumenta linearmente com P ; enquanto que, $A(P)$ independe da pressão, com um valor diferente de zero ainda no QCP. O comportamento linear de $\Delta(P)$ é atribuído à presença dos modos de onda de spin amolecidos na região crítica. A correlação entre T_N e Δ sugere que, em pressões próximas ao QCP, o sistema seja dominado pelas flutuações de spin 2D, onde a presença do gap garante a existência de um

ordenamento de longo alcance próximo ao QCP. Contudo, o caráter bidimensional das excitações magnéticas amolecidas, assim como o cenário físico das flutuações de spin 2D, estabelecem o cenário físico para explicar o comportamento crítico quântico no YbFe_2Ge_2 .

REFERÊNCIAS

- [1] A amostra YbFe_2Ge_2 é um novo férmion pesado, reportado no SCES 2002 (Krakow), e nos foi fornecida pelo grupo do professor F. Steglich do instituto Max Planck (Alemanha).
- [2] J. Ferstl, J. Custers, C. Geibel, F. Steglich. Book of Abstracts, SCES 2002(Kraków), pág 28.
- [3] Marco Avila. Private communication.
- [4] K. Alami-Yadri, D. Jaccard. Sol. Staté. Com., 100, N° 6, (1996), 385.
- [5] B. C. Sales and R. Viswanathan. J. Low. Temp. Phys. 23 (1976), 449.
- [6] E. Bauer, R. Hase, E. Gratz, G. Schaudy, M. Rotter, A. Linbaum, D. Gignoux, D. Schmitt. Z. Phys. B. 92 (1993), 441.
- [7] H. Winkelmann, M. M. Abd-Elmeguid, H. Micklitz, J. P. Sanchez, P. Vulliet, K. Alami-Yadri, D. Jaccard. Phys. Rev. B 60, (1999), 3324.
- [8] G. Knebel, D. Braithwaite, G. Lapertot, P. C. Canfield, F. Flouquet. J. Phys. Condens. Matter 13, 10935 (2001).
- [9] S. Doniach. Physica 91B, 231-234 (1977).
- [10] A. C. Hewson. The Kondo problem to Heavy fermions. . Cambridge University press (1993).
- [11] J. P. Sanchez and M. M. Abd-Elmeguid. Hyp. Interactions 128, 137 (2000).
- [12] H. Winkelmann, M. M. Abd-Elmeguid, H. Micklitz, J. P. Sanchez, C. Geibel, F. Steglich. Phys. Rev. Lett. 81, 4947 (1998).
- [13] O. Trovarelli, C. Geibel, S. Mederle, C. Langhammer, F. M. Grosche, M. Lang, G. Spam, F. Steglich. Phys. Rev. Lett. 85, 626 (2000).
- [14] J. Plessel, M. M. Abd-Elmeguid, J. P. Sanchez, G. Knebel, C. Geibel, O. Trovarelli, F. Steglich. Phys. Rev. B. 67, (2003), 180403(R).
- [15] M. A. Continentino. Quantum Scaling in Many-Body Systems. World Scientific Lecture Notes in Physics – vol. 67 (2001).

- [16] J. Larrea J, Abd-Elmeguid, E.M. Baggio-Saitovitch, S. Pereira, A. Jornada. To be published.
- [17] T. Moriya and T. Takimoto. *J. Phys. Soc Jap.* 64, 3, (1995), 960.
- [18] A. J. Millis. *Phys. Rev. B.* 48, 10, (1993), 7183.
- [19] J. A. Hertz. *Phys. Rev. B.* 14, (1976), 3.
- [20] A. J. Schofield. *Contem. Phys*, 40, 2 (1999), 95.
- [21] G. R. Stewart. *Rev. Mod. Phys*, 73, (2001), 797.
- [22] S. Sachdev, A. V. Chubukov, A. Sokol, *Phys. Rev. B*, 51, 21, (1995), 14874.
- [23] A. Schröder, G. Aeppli, R. Coldea, M. Adams, O. Stockert, H.v. Löhneysen, E. Bucher, R. Ramazashvili, P. Coleman. *Nature*, 407 (2000), 351.
- [24] N. D. Mathur, F. M. grosche, S. R. Julian, I. R. Walker, D. M. Freye, R. K. W. Haselwimmer and G. G. Lonzarich. *Nature* 394, (1998), 39.
- [25] C. Pfleider, G. J. McMullan, S. R. Julian, G. C. Lonzarich. *Phys. Rev. B*, 55, 13 (1997), 8330.
- [26] A. Demuer, D. Jaccard, I. Sheikin, S. Raymond, B. Salce, J. Thomasson, D. Braithwaite, J. Flouquet. *J. Phys: Condens. Matter* 13 (2001) 9335.
- [27-16] M. A. Continentino, S. N. de Medeiros, M. T. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch. *Phys. Rev. B*, 64, (2001), 012404-1.
- [28] S. N. de Medeiros, M. A. Continentino, M. T. Orlando, M. B. Fontes, E. M. Baggio-Saitovitch, A. Rosch, A. Eichler. *Physica B* 281, (2000), 340.
- [29] J. Larrea J, A. Eichler, M. B. Fontes, A. D. Alvarenga, M. A. Continentino, E. Baggio-Saitovitch. To be published.
- [30] R. Movshovich, T. Graf, D. Mandrus, J. D. Thompson, L. Smith, Z. Fisk. *Phys. Rev B* 53, 8241 (1996).

CONCLUSÕES GERAIS

Neste trabalho estudamos o comportamento crítico quântico de diferentes férmions pesados HF, usando medidas de resistência elétrica $R(T,P)$ sob altas pressões (P) e a ultrabaixas temperaturas (T). Os compostos estudados apresentam diversos estados fundamentais ($P=0$) localizados em diferentes lados do diagrama de fase dos HF, quer dizer que, $CePd_2Al_2Ga$ e $CePt$ são ferromagnéticos, enquanto que, o composto $YbFe_2Ge_2$ é não magnético. Os mecanismos físicos propostos para explicar o comportamento crítico destes compostos estão baseados nas predições das teorias de campo médio (MFT), flutuações de spin (SFT) e de onda de spin (SWT). Dentro deste cenário físico, a análise dos resultados de $R(T,P)$ conduzem às seguintes conclusões.

O composto $CePd_2Al_2Ga$ não apresenta uma transição magnética quântica direta, quer dizer, a ordem ferromagnética (FM) muda para antiferromagnética (AF) em ~ 0.6 GPa antes de atingir o ponto crítico quântico (QCP) na pressão crítica $P_c \sim 3.5$ GPa. Assim mesmo, os valores do gap das ondas de spin anisotrópicas mostram uma mudança no espectro dos magnons de FM para AF. Na proximidade do QCP se espera que as excitações magnéticas tenham um caráter isotrópico devido as flutuações de spin, possivelmente com dimensionalidade efetiva $d=2$.

O composto $CePt$ apresenta uma transição ferromagnética quântica (FM-QCP) direta, sendo este o primeiro composto de Ce a apresentar este tipo de transição. O QCP deste composto é estimado em $P_c \sim 12$ GPa, e acima desta pressão o sistema recupera o comportamento líquido de Fermi (FL), observado abaixo da temperatura de coerência (T_{coh}). Na proximidade do QCP, a $R(T)$ mostra uma dependência com a temperatura do tipo lei de potência, $R(T) \propto T^{1.34}$, numa faixa de temperaturas de 20K, indicando a presença de um estado não líquido de Fermi (NFL) regulado pelo mecanismo das flutuações de spin bidimensional (2D) ($z=3$, $d=2$). Assim mesmo, dentro do cenário das ondas de spin, as

flutuações 2D modificam o espectro dos magnons FM, tornando-os isotrópicos próximo do QCP.

A aplicação de altas pressões sob o composto YbFe_2Ge_2 revela uma transição não magnética -magnética, passando pelo QCP, estimado em $P_C \sim 9.7 \text{ GPa}$. A dependência de $R(T) \propto T^{1.1}$, próximo do QCP, indica que a ordem magnética de longo alcance induzida seja provavelmente AF, além de que o estado NLF está regulado pelas flutuações de spin de caráter 2D ($z=3$, $d=2$). Assim mesmo, a abordagem do comportamento crítico mediante a SWT revela que existe um momento induzido na proximidade do QCP, estando correlacionado com a presença de uma temperatura de ordem magnética, a qual aumenta quando o sistema se afasta do QCP.

Foi encontrado que as flutuações de spin é o mecanismo que regula o comportamento crítico quântico em nossos compostos estudados: $\text{CePd}_2\text{Al}_2\text{Ga}$, CePt , YbFe_2Ge_2 . Atendendo à classe da universalidade dos expoentes dinâmicos, z , encontrados na proximidade do QCP, podemos afirmar que este mecanismo não depende do tipo de transição magnética quântica. Assim mesmo, o desaparecimento do gap anisotrópico e o valor constante da rigidez das ondas de spin próximo do QCP são indícios de que os momentos magnéticos não estão extintos na proximidade do QCP. Dentro deste contexto, o magnetismo é suprimido pelas flutuações de spin de caráter bidimensional. Isto revela que as flutuações de spin 2D é o cenário físico apropriado para descrever o comportamento crítico de sistemas que apresentam propriedades físicas similares às encontradas no presente trabalho.

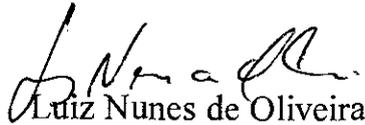
**“ESTUDOS DO PONTO CRÍTICO QUÂNTICO DE
FÉRMIONS PESADOS EM CONDIÇÕES EXTREMAS DE
ULTRA BAIXAS TEMPERATURAS E ALTAS PRESSÕES”**

Julio Antonio Larrea Jimenez

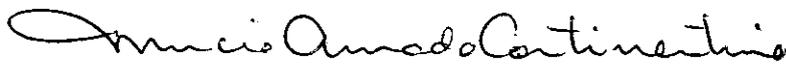
Tese de Doutorado apresentada no Centro Brasileiro de Pesquisas Físicas, do Ministério da Ciência e Tecnologia, fazendo parte da banca examinadora os seguintes professores:



Elisa Maria Baggio Saitovitch – Presidente/Orientador



Luiz Nunes de Oliveira



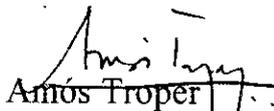
Mucio Amado Continentino



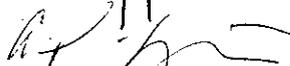
Andréas Eichler – Convidado Especial



Affonso Augusto Guidão Gomes



Amós Troper



Alberto Passos Guimarães Filho - Suplente

Rio de Janeiro, 11 de dezembro de 2003