

1 Introdução

A descoberta de uma nova classe de compostos intermetálicos, denominados sistemas de férmions pesados, tem despertado grande interesse entre físicos da matéria condensada desde sua descoberta. Resfriando-se estes materiais a muito baixas temperaturas, o coeficiente γ da contribuição eletrônica do calor específico, atinge um valor extremamente elevado. Num metal normal o valor de γ é da ordem de $1-10 \text{ mJ} / \text{K}^2 \text{mol}$, enquanto que para um sistema de férmion pesado γ alcança valores de $400-1000 \text{ mJ} / \text{K}^2 \text{mol}$ [1]. Estes valores muito grandes de γ correspondem a uma elevada densidade de estados no nível de Fermi, indicando a presença de elétrons fortemente correlacionados* com uma massa efetiva elevada, cerca de 10^2-10^3 vezes a massa do elétron livre. Daí a denominação de férmions pesados (FP). O que caracteriza estes sistemas não é somente o elevado valor de γ , a susceptibilidade constante χ_0 , tipo susceptibilidade de Pauli, é da ordem de 1000 vezes o valor da susceptibilidade de um metal normal.

A semelhança do comportamento dos FP de *Ce* com o de ligas magnéticas diluídas (onde o momento localizado representa uma parte em um milhão do sistema e apresentam um mínimo na medida de resistividade em função da temperatura, atribuído este último ao efeito Kondo) levou a se assumir que estes são sistemas de rede de Kondo [2, 3], onde os momentos localizados dos elétrons $4f$ do *Ce* formam uma sub-rede regular. O primeiro sistema de férmions pesados, *CeAl₃*, foi descoberto por Andrés Graebner e Ott [4] em 1975, observando-se a partir de então que o comportamento de férmions pesados pode

* As interações entre os elétrons móveis da banda de condução e os elétrons localizados nas camadas incompletas da banda de valência são chamadas de correlações. Quando as características do material dependem principalmente deste tipo de interações estes sistemas são denominados de sistemas fortemente correlacionados.

ocorrer numa variedade de ligas (concentradas e diluídas) e compostos estequiométricos de terras raras (Ce e Yb) e de actínídeos (U e Np), o que sugere a formação de uma banda estreita $4f$ ou $5f$ próxima ao nível de Fermi, resultando num sistema de elétrons fortemente correlacionados. Os estados eletrônicos $4f$ e $5f$ estão relativamente próximos ao nível de Fermi e apresentam um caráter ambíguo entre localizado e itinerante. Em altas temperaturas eles comportam-se como elétrons f localizados em seus sítios atômicos e quando resfriados, seu comportamento difere daquele dos materiais ordinários: alguns elétrons f tornam-se itinerantes pela hibridização como os elétrons de condução. Este comportamento ambíguo dos elétrons f gera uma competição entre um estado ordenado magnético e um não-ordenado. O estado não ordenado abaixo de uma temperatura característica apresenta comportamento tipo líquido de Fermi (LF) de Landau com parâmetros re-normalizados (como o da massa).

O comportamento em baixas temperaturas destes sistemas pode ser descrito por um modelo que considera dois mecanismos competindo fortemente um com o outro. O primeiro é a interação indireta Ruderman-Kittel-Kasuya-Yoshida (RKKY[†]) mediada pelos elétrons de condução. Na interação RKKY o íon magnético perturba a função de onda dos elétrons de condução e uma polarização dos *spins* dos elétrons de condução acontece na proximidade do íon magnético. Esta polarização alterna de sinal com o incremento da distancia e sua intensidade decresce com o cubo da distancia. Tal distribuição de polarização pode acoplar os *spins* dos íons magnéticos em configurações ferromagnéticas ou antiferromagnéticas, dependendo de sua separação. O segundo mecanismo é o efeito Kondo, onde os elétrons de condução blindam os momentos magnéticos localizados e produz um estado não-magnético (mais detalhes serão abordados na

[†] Em certos metais magnéticos contendo terras raras, o aparecimento de ordem magnética não pode ser explicado pela superposição direta das funções do tipo $4f$ de átomos vizinhos. A razão é que tal superposição não pode ocorrer, devido ao pequeno raio das funções $4f$, tipicamente de $0,5 \text{ \AA}$, e portanto muito menor do que o espaçamento inter-atômico, tipicamente 10 \AA . Por outro lado, como são justamente os elétrons $4f$ os responsáveis pela ordem magnética foi preciso considerar outros mecanismos para explicá-la.

seção 2.1). Estes dois mecanismos dependem de um mesmo parâmetro, a interação de troca (J) entre os elétrons de condução e os elétrons f localizados.

A competição entre desses dois efeitos gera vários estados fundamentais dependendo da magnitude de J . Esta competição, em função do acoplamento normalizado J/W (onde W é a largura da banda de condução), foi estudada com sucesso por Doniach [5]. Dentro do diagrama de fase de Doniach, o magnetismo desaparece (para um valor crítico do parâmetro $(J/W)_c$) quando a blindagem Kondo torna-se mais importante que a interação RKKY. O ordenamento magnético de longo alcance está presente para valores pequenos de (J/W) e, portanto, a linha crítica (T_N) existe na região de temperatura finita. Do lado não magnético, $(J/W) > (J/W)_c$, o sistema experimenta um *crossover* entre o estado paramagnético com momentos parcialmente blindados acima de uma certa temperatura característica e um estado fundamental tipo líquido de Fermi.

O estudo do ponto de instabilidade no diagrama de Doniach em $(J/W)_c$ é, no presente, onde se concentram os esforços de muitos investigadores, já que neste ponto se poderia atingir uma transição de fase muito próxima ao zero absoluto, onde as flutuações clássicas (flutuações térmicas) deixariam de existir. Este tipo transição, portanto, seria governada por um parâmetro de controle não-térmico como pressão externa, composição ou campo magnético [6,7]. Assim, para um certo valor crítico deste novo parâmetro o sistema sofrerá uma transição de fase passando de um estado fundamental a outro promovido por flutuações puramente quânticas. Esta transição é denominada de transição de fase quântica (TFQ) e o ponto de instabilidade é conhecido como ponto crítico quântico (PCQ) se a transição for de segunda ordem. Assim pode-se definir um PCQ como uma transição de fase contínua que tem lugar em temperatura zero, tipicamente num material donde a temperatura de transição de fase tem sido levada para zero por aplicação de pressão, campo magnético ou dopagem química. Transições de fase comuns ocorrem em temperaturas finitas, quando o crescimento aleatório das flutuações térmicas conduz a uma mudança do estado físico do sistema.

O estudo de TFQ é o foco de maior pesquisa em sistemas eletrônicos fortemente correlacionados. Em contraste com a contrapartida clássica em $T > 0$, onde as flutuações térmicas são importantes, as TFQ são conduzidas por parâmetros de controles não-térmicos, como pressão e composição química. Um

ponto crítico quântico separa uma fase ordenada de uma desordenada em temperatura zero. Apesar da transição de fase acontecer em $T = 0$, as flutuações quânticas responsáveis por esta transição originam comportamentos anômalos em temperaturas finitas (muito próxima ao PCQ), denominados comportamentos não líquido de Fermi [8,9] (NLF), e são estas mesmas excitações que favorecem o surgimento de outros estados como ondas de densidade de spin e supercondutividade não convencional.

Para estudar o comportamento crítico quântico de sistemas férmions pesados é necessário que eles possam ser conduzidos continuamente de um estado ordenado magnético para um não-ordenado, e vice-versa, pela variação de um parâmetro de controle que modifique a constante de acoplamento J . Poucos compostos estequiométricos encontram-se perto de um PCQ à pressão ambiente, de modo que uma abordagem comum para conduzir alguns materiais contendo Ce, Yb e U ao PCQ é modificar o valor J por aplicação de pressão, por substituição isoeletrônica que, em princípio, atua como "pressão química" e por aplicação de campos magnéticos. A pressão externa tem a vantagem de ser um parâmetro de controle quase contínuo, produzindo pouca variação na energia do sistema e mantendo a simetria local intacta. É importante termos em conta que a pressão afeta principalmente a largura do nível $4f$, enquanto que a substituição promove uma variação considerável do potencial químico, o que produz uma mudança significativa na diferença entre $\varepsilon_{4f} - \varepsilon_F$.

Outra forma de conduzir o sistema ao PCQ é suprimir a ordem AF com a aplicação de campo magnético. Levando T_N a zero em um campo crítico H_C , as correlações AF entre os momentos ordenados são suprimidas com o alinhamento pelo campo em $H > H_C$. Esta situação é muito diferente da blindagem dos momentos ordenados, que ocorre em $H = 0$, quando o PCQ é sintonizado por pressão química ou externa.

O interesse deste trabalho é estudar a evolução de um sistema entre dois extremos de comportamento (AF - LF), passando pelo PCQ. Para tal estudo foi escolhido o composto $CeCoGe_{0,9}Si_{2,1}$, que é um sistema rede de Kondo antiferromagnético, pertencente a família $CeCoGe_{3-x}Si_x$. Quando $x = 0$ ($CeCoGe_3$) o material apresenta duas transições magnéticas (ferrimagnética em

$\sim 21K$ e antiferromagnética em $\sim 18K$) [35], as temperaturas de ordem das transições ferri- e antiferromagnética diminuem com o aumento da concentração de Si (x) e logo convergem em uma única transição antiferromagnética para $x = 0,75$, como pode ser visto na Figura 1.1. A supressão da ordem magnética do sistema ocorre para $x_c = 1,25$, denominada concentração crítica. Para concentrações acima de $x = 1,5$, os compostos apresentam comportamento de sistemas de flutuações de valência, este comportamento pode ser revelado pelo alto valor da temperatura Kondo para concentrações acima de 1,5 (ver Figura 1.1). Em torno da concentração crítica o comportamento tipo não-líquido de Fermi também foi observado [10].

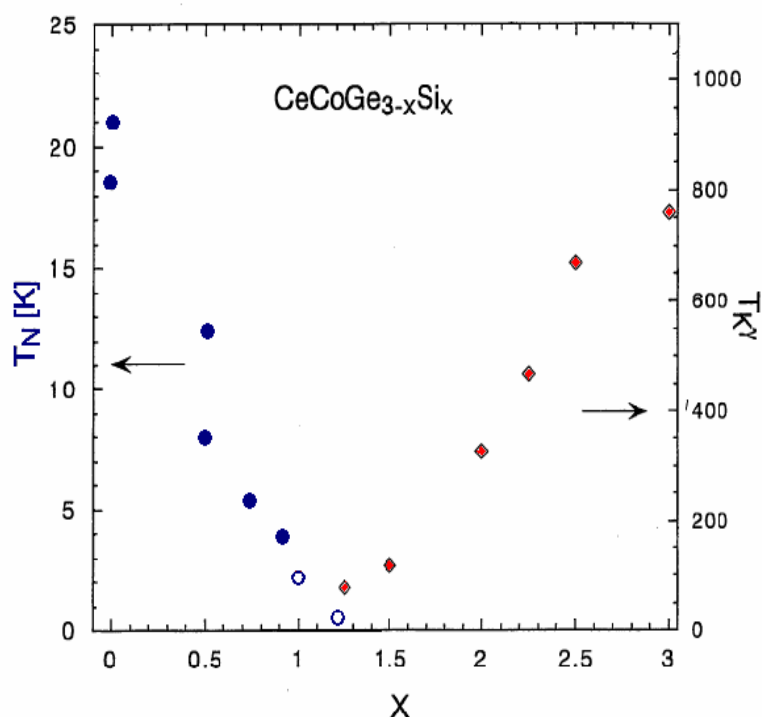


Figura 1.1 temperatura de ordem magnética em função da concentração de silício, para $x < 0,75$ o sistema apresenta duas transições (ferromagnética e antiferromagnética), para $x = 0,75$ uma única transição antiferromagnética e para $x = 1,25$ a temperatura de ordem tende a zero. As temperaturas Kondo, obtidas de medidas de calor específico, aumentam com a concentração de silício acima da concentração crítica [10].

O composto com $x = 0,75$ apresenta uma única transição antiferromagnética com $T_N = 5,5 K$. Este sistema foi conduzido ao PCQ por aplicação de pressão [11]. O estudo do lado magnético do diagrama de fase de Doniach, através de medidas de resistividade para temperaturas acima de $2 K$,

assumindo um espalhamento de elétrons de condução por ondas de spin (mágnon), sugere a existência de um PCQ para uma pressão de aproximadamente $7,5 \text{ kbar}$. Estudos posteriores neste composto indicaram que as flutuações das ondas de spin no regime crítico quântico são bidimensionais (2D) [12].

Para nossos estudos, escolhemos o composto $CeCoGe_{0,9}Si_{2,1}$, por encontrar-se mais perto da concentração crítica e ainda apresentar um ordenamento magnético de longo alcance bem definido ($\sim 4 \text{ K}$). As diversas partes do diagrama de fases pressão-temperatura (a fase magnética ordenada, o regime não-líquido de Fermi e o regime líquido de Fermi) foram investigadas através de medidas de resistividade elétrica AC no intervalo de temperatura entre 100 mK e 300 K . Um outro composto estudado é o $CeCoGe_2Si_1$ que apresenta um ordenamento magnético de curto alcance. Neste caso utilizamos campos magnéticos para suprimir a ordem magnética e conduzir o sistema, no caso de existir, ao PCQ.

Por uma questão de didática, esta dissertação é dividida em 6 capítulos: No capítulo 2 serão introduzidos os conceitos básicos referentes aos sistemas férmions pesados, fenômenos críticos quânticos e modelos teóricos que serão usados na análise e interpretação das medidas de resistência elétrica. O capítulo 3 abordará as principais propriedades físicas da série $CeCoGe_{3-x}Si_3$. Os procedimentos experimentais, como a preparação das amostras e a realização das medidas de resistividade, serão descritos no capítulo 4. No capítulo 5, apresentaremos os resultados e análise dos mesmos. Para o composto $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$, uma discussão sobre o mecanismo que conduz a ordem AF ao PQC é abordada. Neste mesmo capítulo também são mostrados os resultados preliminares das medidas de resistividade para a amostra $CeCoGe_2Si_1$ com campo magnético. Finalmente o capítulo 6 apresentara as conclusões de nosso trabalho.