# 5 Resultados e discussões

Neste capítulo apresentamos os resultados obtidos e as discussões dos mesmos. Primeiro apresentamos os resultados das caracterizações por raios-x, magnetização e resistividade à pressão ambiente (chamada de P = 0kbar no texto) das amostras policristalinas preparadas. Após a caracterização da fase cristalográfica e da ordem magnética, apresentamos os resultados das medidas de resistividade AC em função da temperatura e pressão. A discussão será feita conforme os resultados são apresentados.

#### 5.1. Caracterização

#### 5.1.1. Raios-x

Com o objetivo de caracterizar a estrutura cristalina presente em nossas amostras, análises dos dados de difração de raios-x das amostras policristalinas do composto  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  (x = 0; 0,9; 0,95 e1) foram realizadas, usando o programa FULLPROF [63]. O refinamento do difratograma de raios-x da amostra  $CeCoGe_3$ (x=0) - mostrado na Figura 5.1- foi iniciado assumindo um sistema tetragonal com grupo espacial *I4/mmm* com átomos de *Ce* na posição 2*a*, *Co* na 2*a* e *Ge* nas posições 2*a* e 4*b*. Este tipo de arranjo corresponde à estrutura *BaNiSn*<sub>3</sub>. Todas as posições foram totalmente ocupadas e não foram observadas reflexões de fases espúrias, pelo menos dentro da precisão de 5%, que é o limite da incerteza das medidas de raios-x. Os valores dos parâmetros de rede obtidos para a fase única são apresentados na Tabela 5.1 e encontram-se em concordância com valores de trabalhos previamente publicados [35, 10]



Figura 5.1. Refinamento pelo método de Rietveld para os dados de difração de raios-x da amostra CeCoGe<sub>3</sub> à temperatura ambiente. Os pontos correspondem aos dados experimentais, a linha contínua ao ajuste teórico, e as barras verticais às linhas de Bragg. Na parte superior é mostrada a estrutura cristalina deste composto.

Para as amostras policristalinas com x(Si) = 0.9; 0.95 e 1, o refinamento é iniciado considerando como parâmetros de entrada os encontrados para a amostra  $CeCoGe_3$ . Também são obtidas fases únicas para estas amostras, o que revela que os átomos de *Ge* estão sendo substituídos pelos átomos de *Si* na estrutura cristalina. Os valores dos parâmetros de rede são apresentados na Tabela 5.1. Sendo o raio atômico do *Si* (1,176 Å) menor que o raio atômico do *Ge* (1,223 Å), esta substituição dos átomos de *Ge* conduz a uma redução sistemática dos parâmetros de rede e, conseqüentemente, do volume (*V*), como mostrado na Tabela 5.1.

Composto	Parâmetros de rede		Volume
	<i>a</i> (Å)	$c(\text{\AA})$	(Å <sup>3</sup> )
CeCoGe <sub>3</sub>	4,32(1)	9,83(3)	183,53
$CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$	4,27(2)	9,76(3)	178,04
$CeCoGe_{2.15}Si_{0.95}$	4,26(3)	9,76(2)	177,65
$CeCoGe_2Si_1$	4,26(3)	9,75(1)	177,315

Tabela 5.1. Parâmetros de rede *a* e *c* obtidos pelo refinamento de Rietveld dos difratogramas de raios-x das amostras  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  à temperatura ambiente.

A Figura 5.2 mostra a variação dos parâmetros de rede e o volume da célula unitária em função da concentração x de Si. Associando nossos resultados aos da referência [10], pode-se observar uma redução linear dos parâmetros de rede em função da concentração de Si. Em particular, a diminuição linear do volume na Figura 5.2 indica, de acordo com a lei de Vergard [68], a ausência de uma mudança de valência nos átomos de Ce neste intervalo de concentração. Por outro lado, a diferença no volume da célula unitária entre  $CeCoGe_3$  e  $CeCoSi_3$  é de aproximadamente 10%. Esta variação do parâmetro de rede equivale a uma pressão externa de  $10 GPa (100 \, kbar)$ , considerando somente uma sub-rede de Ce [10]. A partir destes dados, podemos estimar o valor da constante de compressibilidade,  $\kappa = (\partial P / \partial V)_T$  para a série  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  a fim de obter as pressões equivalentes entre concentrações diferentes.

$$\kappa = \frac{\Delta V / V}{P}$$

$$\kappa = \frac{10/100}{100 \ Kbar} 1(Mbar)^{-1}$$
Eq. 5.1



Figura 5.2. . Variação dos parâmetros de rede e do volume em função da concentração x de Si. As linhas tracejadas são um guia para os olhos.

No estudo da série  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  com  $0 \le x \le 3$ , foi observado [10] que o sistema passa de um estado fundamental magnético para um estado nãomagnético. A temperatura de Néel observada no  $CeCoGe_3$  é quase linearmente reduzida com a concentração de *Si* e, acima da concentração crítica x = 1,25, não é mais observado o estado ordenado de longo alcance. Para que nosso composto com x = 0,9 seja conduzido ao mesmo volume de célula unitária do composto de concentração crítica é necessária a aplicação de uma pressão aproximadamente igual a:

$$P_{x=0,9\to x=1,25} = \frac{\frac{V_{x=0,9} - V_{x=1,25}}{V_{0,9}}}{\kappa} = \frac{0,0112}{1(Mbar)^{-1}} = 11,2 \, kbar \,, \qquad \text{Eq. 5.2}$$

onde temos considerado o volume da célula unitária para x = 1,25 igual a 176 Å<sup>3</sup> [10], para x = 0,9 igual a 178 Å<sup>3</sup> e o valor da constante de compressibilidade acima obtido. Assim, levando em conta somente efeitos de compressão de volume, podemos esperar que o composto  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ , com uma pressão externa de ~11 *kbar*, possa ser conduzido a uma situação de instabilidade magnética, que seria a fronteira magnética não-magnética.

#### 5.1.2. Medidas de magnetização

Com o objetivo de caracterizar o tipo de ordem magnética de nossos compostos, medidas de magnetização, M(T), com campo magnético baixo (15 Oe) em função da temperatura foram realizadas. As medidas de magnetização foram realizadas no intervalo de temperatura de 2 K a 300K. Nas medidas de magnetização em baixas temperaturas (T < 30K) apresentadas na Figura 5.3, podem ser observadas duas transições magnéticas em ~ 19K e ~ 12K para x = 0e uma única transição em ~ 4 K para x = 0,9.



Figura 5.3. M/H para baixas temperaturas. As setas indicam as transições magnéticas.

Neste trabalho, utilizamos o inverso da variação térmica da magnetização, 1/(M/H), com campo baixo (H = 15 Oe), para obter informação sobre a ordem magnética. A Figura 5.4 mostra a dependência com a temperatura de 1/(M/H), observando-se um comportamento do tipo Curie-Weiss acima de 50K. Nossos valores obtidos através da extrapolação de  $1/(M/H) \rightarrow 0$ , como visto na figura, revelam temperaturas de Curie-Weiss,  $\theta$ , de aproximadamente -65K e -102K para a amostra x = 0 e 0.9, respectivamente. Estes valores estão em razoável concordância com os valores obtidos a partir de medidas de susceptibilidade,  $\theta = -51K$  para  $x = 0 e \theta = -104K$  para x = 0.9 [10]. Podemos, então, a partir desses valores de temperatura de Curie-Weiss negativos, concluir que o tipo de ordem presente nessas concentrações é antiferromagnético (AF). Por outro lado, o rápido decréscimo do inverso da magnetização abaixo de 50 K foi associado com interações ferromagnéticas fracas na presença de correlações antiferromagnéticas dominantes[35].



Figura 5.4. Inverso das medidas de M/H(T) para: a) CeCoGe<sub>3</sub> e b) CeCo Ge<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>.

#### 5.1.3. Medidas de resistividade elétrica à pressão ambiente

Medidas de resistividade elétrica AC em função da temperatura,  $\rho(T)$ , à pressão ambiente foram realizadas para as amostras com x = 0; 0,9 e 1. Estas medidas (feitas em amostras fora da célula de pressão) são muito importantes para a otimização do sinal da amostra. Esta otimização do sinal da resistência elétrica é feita com a preparação de bons contatos elétricos  $(2-5\Omega)$  e da redução da seção reta da amostra. Assim, somente após termos obtido uma boa relação sinal/ruído, principalmente em baixas temperaturas, prosseguimos com a instalação da amostra na célula de pressão. Nas Figura 5.5.a) e b), mostramos  $\rho(T)$  no intervalo de temperatura de 0,2 até 300 K para as amostras com x = 0 e 0,9, respectivamente.



Figura 5.5. Medidas de resistividade para amostras com x(Si) = 0 e 0,9. Os insets são uma ampliação na região de baixa temperatura, onde T<sub>N</sub> é observada.

Nas Figura 5.5.a) e b), observamos um comportamento quase constante de  $\rho(T)$  acima de 150K e uma queda rápida abaixo de 100K. Este decréscimo torna-se quase linear até o surgimento de uma anomalia, que está associada, de acordo com nossas medidas de magnetização, a uma transição de fase para a ordem antiferromagnética (AF) em aproximadamente 19K para x = 0 e 4K para x = 0.9.

As contribuições para  $\rho(T)$  dos compostos  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  decorrem principalmente das vibrações da rede (fônons) e magnéticas (devido à presenca dos átomos de Ce magnéticos). Por outro lado,  $\rho(T)$  dos compostos isoestruturais não-magnéticos baseados em lantânio ( $LaCoGe_{3-x}Si_x$ ), apresentam predominantemente contribuições da rede. Assim, uma boa aproximação das contribuições magnéticas para a resistividade elétrica ( $\rho_{mag}$ ) no  $CeCoGe_{3-x}Si_x$ pode ser obtida a partir da diferença entre as curvas de resistividade do  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  e  $LaCoGe_{3-x}Si_x$  ( $\rho_{mag} = \rho(T)_{CeCoGe_{1-x}Si_x} - \rho(T)_{LaCoGe_{1-x}Si_x}$ ). Na Figura 5.6.a) mostramos as medidas de resistividade das amostras  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  e  $LaCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ , e  $\rho_{mag}(T)$ . Com o decréscimo da temperatura, partindo de 300 K,  $ho_{\scriptscriptstyle mag}(T)$  aumenta como esperado para um típico espalhamento Kondo. Para temperaturas abaixo de 100K,  $\rho_{mag}(T)$  cai muito rapidamente, o que pode ser atribuído à característica coerente de uma rede de Kondo. A resistividade magnética  $\rho_{mag}(T)$  mostra um largo pico em altas temperaturas, ampliado na Figura 5.6.b), devido à competição entre o efeito do campo elétrico cristalino (CEC) e o efeito Kondo, como explicado nas referências [41,42,43]. As temperaturas dos máximos  $(T_{max})$ , em torno de 155K para CeCoGe<sub>3</sub> e 170K para  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ , são aproximadamente à temperatura Kondo,  $T_K$  [42].



Figura 5.6.a) Medidas de resistividade para as amostras  $LaCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  ( $\nabla$ ) e  $CoGe_{2,1}Si_{0,9}$  (**o**) e a contribuição magnética,  $\rho_m$ , para  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ . Na figura b) observa-se  $\rho_m(T)$  no intervalo de altas temperaturas onde encontra-se  $T_{max} \propto T_K$ .

Para temperaturas abaixo de  $T_m$ , pode-se observar um decréscimo quase linear de  $\rho(T)$  até o surgimento de uma anomalia, em aproximadamente 19K para x=0 e 4K para x=0.9. O valor de  $T_N$  é obtido com maior precisão a partir do mínimo na segunda derivada dos dados de resistividade  $(d^2 \rho / dt^2)$ , como mostrado na Figura 5.7.



Figura 5.7. Determinação do  $T_N$  a partir do mínimo da segunda derivada dos dados de resistividade da amostra CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>.

Ainda que tenham sido encontradas duas transições magnéticas para o composto policristalino  $CeCoGe_3$  a partir de dados obtidos por susceptibilidade, magnetização e calor específico (~ 21 e ~ 18K), uma única transição magnética, associada à transição antiferromagnética, é observada em curvas de resistividade (~ 20K) [35]. Por outro lado, em amostras monocristalinas, além dessas transições, são observadas outras duas transições em aproximadamente 12 e 8 K em medidas de susceptibilidade e resistividade com campos e correntes paralelos ao plano [001] [41]. Em nossas medidas de resistividade para policristais de  $CeCoGe_3$  - mostrada no *inset* da Figura 5.5.a) - pode-se observar duas anomalias, a primeira em ~19K e a segunda em ~12K, ao invés da transição única anteriormente observada.

Para a amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  observa-se uma única transição em aproximadamente 4 K, vista no *inset* da Figura 5.5.b), no intervalo de baixas temperaturas. O valor de temperatura desta anomalia é a mesma daquela encontrada em medidas de susceptibilidade para uma transição AF no  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  [10]. Assim, as anomalias observadas em  $\rho(T)$  na amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  com a aplicação de pressão podem ser associadas à temperatura de Néel  $(T_N)$ .

Outro parâmetro importante que pode ser obtido das medidas de resistividade elétrica, é o valor da resistividade residual  $\rho_0$ , a qual decorre das contribuições de defeitos da rede e impurezas. A estimativa do valor de  $\rho_0$  é feita através da extrapolação linear do comportamento da curva abaixo de 200 mK para todas as pressões (exceto para P = 0, a qual foi extrapolada abaixo de 300 mK). Um exemplo é mostrado na Figura 5.8, onde se obtém o valor de  $\rho_0$  para a amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ .



Figura 5.8. Exemplo da estimativa de  $\rho_0$  para a amostra com x=0,9.

À pressão ambiente, a razão da resistividade residual (RRR)  $\rho(300K)/\rho_0 \approx 4$  para o  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ . O valor de *RRR*, encontra-se dentro do intervalo de valores de RRR obtidos para amostras com  $0.5 \le x(Si) \le 1$ encontrados por Eom e colaboradores [10]. No entanto, a resistividade residual desta amostra,  $\rho_0 \approx 76 \,\mu\Omega \, cm \, \acute{e} \, 25\%$  maior que as publicadas. De um modo geral, esse valor da resistividade residual é maior que aqueles de sistemas rede de Kondo limpos, baseados em Ce. Esta diferença pode sugerir a presença de desordem atômica em nossos compostos, a qual pode influenciar nas propriedades eletrônicas magnéticas de instabilidade magnética. e perto uma

## 5.2. Resistividade elétrica sob pressão no composto CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>

Nas medidas de resistividade elétrica sob pressões de até 10,2 kbar, observamos dois tipos de comportamento bastante distintos em diferentes intervalos de pressão. No primeiro, apresentado nas medidas até  $P \le 6 \, kbar$ , a temperatura característica da transição antiferromagnética diminui conforme a pressão aumenta. No segundo intervalo de pressões ( $6 < P \le 10,2 \, kbar$ ), não são observadas evidências de ordem magnética. Ao invés disto, observamos em baixas temperaturas um comportamento tipo líquido de Fermi ( $\rho = \rho_0 + AT^2$ ), cuja região de existência cresce com o aumento da pressão. Isto indica uma transição de um estado magnético para um estado não-magnético, induzida pela pressão.

## 5.2.1. Fase magnética ( $0 \le P \le 6,2$ kbar)

Na Figura 5.9, apresentamos as medidas de resistividade para pressões até  $6 \, kbar$ . Pode-se observar como a transição em  $4 \, K$  para o  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  à pressão ambiente diminui com o aumento da pressão sem, que contudo, sejam observadas mudanças nas tendências da curva acima e abaixo da transição. Os valores das temperaturas de transição obtidas pelo método do mínimo da segunda derivada em função da pressão são mostrados na Figura 5.10.



Figura 5.9. Medidas de resistividade sob pressão para a amostra CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>. As setas indicam a temperatura de transição magnética

Como pode ser observado na Figura 5.10,  $T_N$  decresce continuamente com a pressão, quase linearmente até 4,2 *kbar* e acima desta pressão cai mais rapidamente até ~ 6,2 *kbar*. Isto nos leva naturalmente a concluir que a linha crítica, separando as fases magnética e não-magnética, deve cair continuamente até zero para um determinado valor de pressão, implicando na existência de um PCQ induzido por pressão[69]. Este perfil é semelhante ao de outros sistemas Kondo perto de um ponto crítico quântico antiferromagnético (PCQ-AF) e pode ser qualitativamente explicado dentro do cenário proposto por Doniach [70].



Figura 5.10. Variação de  $T_N$  em função da pressão. A linha sólida representa o ajuste com a Eq. 5.3, obtendo uma pressão crítica de 6,18(2) kbar.

A diminuição contínua de  $T_N$  com a pressão, desaparecendo completamente na pressão crítica  $P_C$ , define a linha crítica  $T_N(P)$ . Em geral, para situações muito próximas ao PCQ, tanto em  $|\delta| = |P - P_C| \rightarrow 0$  como em  $T \rightarrow 0$ ,  $T_N(P)$  é descrita pelas contribuições críticas quânticas (flutuações quânticas, como de spin). Para situações não muito próximas, ela poderia ser descrita pela soma ponderada de contribuições de campo médio (flutuações termodinâmicas mais relevantes) e críticas quânticas [71]. Assim, uma expressão geral estabelecida para  $T_N(P)$  é:

$$|P - P_c| = |\delta| = aT_N^2 + bT_N^{1/\psi}$$
, Eq. 5.3

está associado à natureza crítica quântica local ( $T \approx 0 e |\delta| \approx 0$ ), descrita pelo expoente crítico de deslocamento  $\psi$ . De acordo com a teoria de flutuações de spin,  $\psi = z/(d+z-2)$ , onde d é a dimensão das flutuações de spin e z, o expoente dinâmico. Para um sistema próximo a uma instabilidade AF, z = 1 para o caso bidimensional (2D) e z = 2 para o caso tridimensional (3D). Então,  $\psi = 1$ para 2D e  $\psi = 2/3$  para 3D [17]. A linha sólida na Figura 5.10 corresponde ao ajuste considerando a expressão da Eq. 5.3 e os valores dos parâmetros ajustados são apresentados também na figura. O ajuste descreve bem os pontos experimentais e leva a obter uma pressão crítica  $P_c = 6,18 \, kbar$ . Com os valores obtidos para  $a \, e \, b$ , notamos que a contribuição das flutuações termodinâmicas é mais importante, por termos considerado toda a região magnética e não apenas a vizinhança do PCQ. Mesmo assim, o valor do expoente dinâmico está perto de  $\psi = 1$ , o que nos sugere que as flutuações envolvidas são de caráter 2D.

#### 5.2.2. Ondas de spin em um AF anisotrópico ( $0 \le P \le 6,2$ kbar)

Comumente, aspectos sobre a criticalidade quântica são obtidos através de teorias de flutuações de spin aplicadas em sistemas que se encontram no lado nãomagnético (líquido de Fermi) do diagrama de fases de Doniach. No entanto, outros aspectos podem ser visualizados a partir da fase magnética, o que, no nosso caso corresponde a  $P \le 6,2 \ kbar$  e  $T \le T_N(P)$ .

Na estrutura cristalina do  $CeCoGe_3$  (mostrada na Figura 5.1), os átomos de *Ce* ocupam os vértices e o corpo centrado da estrutura cristalina tetragonal. A distância interatômica do vizinho mais próximo (Ce - Ce) é 4,319 Å e o segundo vizinho *Ce* está a 5,787 Å. Esta estrutura tetragonal sem simetria de inversão indica que a anisotropia pode ter um papel relevante no entendimento das propriedades magnéticas (ver seção 3.1) [41, 72]. Os compostos dopados com silício continuam a manter esta estrutura cristalina, mudando apenas os parâmetros de rede (o que leva a mudanças nas distâncias interatômicas entre os átomos de *Ce*). Isto nos sugere que a anisotropia magnética em nosso composto com x = 0.9 surja das peculiaridades da estrutura, abrindo a possibilidade da existência de excitações magnéticas tipo ondas de spin com gap no  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ .

Estas excitações de baixa energia podem espalhar os elétrons de condução, dando uma contribuição importante para a parte magnética da resistividade,  $\rho_m(T)$ . Em nosso sistema e para T < 10K,  $\rho_m(T)$  é da ordem de  $\rho(T)$ , posto que a contribuição de espalhamento de elétrons por fônons,  $\rho_{ph}$ , é desprezível. Assim, os dados da resistividade a baixas temperaturas podem ser descritos por:

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_{SW}(T) + mT^n$$
, Eq. 5.4

onde  $\rho_0$  é a resistividade residual,  $mT^n$  é o termo devido ao espalhamento elétron-elétron, com expoente  $1 < n \le 2$ , e  $\rho_{SW}$  é a contribuição das ondas de spin.

A expressão matemática da contribuição das ondas de spin para a resistividade, no caso de um antiferromagneto anisotrópico, foi obtida por S. N. Medeiros [73], a partir da expressão da resistividade dependente do campo magnético deduzida por Yamada e Takada [74]. S. N. Medeiros considerou o caso em que H = 0,  $k_B T < \Delta$  e a relação relativística para a dispersão de elétrons por mágnons antiferromagnéticos é  $\omega = \sqrt{\Delta^2 + Dk^2}$ , onde  $\Delta$  é o gap de mágnons e D é a velocidade das ondas de spin. Com tais considerações, a equação para  $\rho_{SW}$  é dada por [11,73,75]:

$$\rho_{SW}(T) = A \left(\frac{\Delta}{k_B}\right)^{3/2} T^{1/2} e^{-\frac{\Delta}{k_B T}} \left[ 1 + \frac{2}{3} \left(\frac{k_B T}{\Delta}\right) + \frac{2}{15} \left(\frac{k_B T}{\Delta}\right)^2 \right], \qquad \text{Eq. 5.5}$$

sendo o coeficiente A relacionado à velocidade das ondas de spin por meio de  $A \propto 1/D^{1/3}$  ou  $A \propto 1/\Gamma^3$ , onde  $\Gamma$  é um acoplamento magnético efetivo entre os íons de *Ce*.

Os dados de resistividade para nossas amostras foram ajustados de acordo com a Eq. 5.4, onde o valor  $\rho_0(P)$  é um parâmetro fixo obtido a partir da extrapolação do comportamento abaixo de 250mK (ver seção 5.1.3). Somente dados abaixo de  $\approx 0.65T_N$  ( $k_BT < \Delta$ ) foram usados para o ajuste, mas este, quando extrapolado, descreve toda a região de temperatura abaixo de  $T_N$ , como pode ser observado na Figura 5.11[69].



Figura 5.11. Curvas de resistividade em baixas temperaturas para diferentes pressões. As linhas sólidas representam o ajuste considerando a Eq.  $K_{BT} < \Delta$  (ver texto) [69].

O gap  $\Delta$  e a quantidade  $A \propto (1/D^3)$ , obtidos do ajuste, são mostrados na Figura 5.12, juntamente com  $T_N(P)$ . O valor do gap das ondas de spin por nós obtido para P = 0 foi  $\Delta/\kappa_B = 9,0 K$ , o que está em concordância com aquele encontrado em ajustes de dados de calor específico [12, 73]. Pode-se observar uma clara correlação entre  $T_N(P)$  e  $\Delta(P)$ : ambos decrescem com o aumento da pressão, sugerindo o colapso da ordem magnética de longo alcance e o desaparecimento do gap à medida que o  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  aproxima-se de  $P_C$ . Observamos também, na mesma figura, que a quantidade  $A \propto (1/D^3)$  permanece quase constante no intervalo de pressão investigado.



Figura 5.12. O gap e a quantidade  $A \propto 1/D^3$ , comparadas com a variação de  $T_N$ . Acima de 4,5kbar observa-se uma correlação entre  $\Delta(P)$  e  $T_N(P)$ : a linha representa o ajuste de  $\Delta(P)$  levando a uma pressão crítica igual a 6,19 kbar [69].

Para valores de *P* acima de 4,5 *kbar*, como vista na Figura 5.12, o gap das ondas de spin apresenta uma dependência linear com a pressão. O gap é descrito por uma função linear,  $\Delta(P) = 2,57(P_C^{gap} - P)$  com  $P_C^{gap} = 6,19 \, kbar$  [69], que é o valor de pressão para a qual o gap vai a zero. Este valor de pressão crítica também está próximo do valor anteriormente calculado a partir da forma da curva crítica  $(P_C = 6,18 \, kbar)$ . De acordo com a correlação observada entre a variação de  $T_N$  e  $\Delta$  em função da pressão, esperamos que  $T_N \Rightarrow 0$  quando  $\Delta \Rightarrow 0$ . Esta observação parece implicar que as flutuações magnéticas relevantes em nosso sistema não possuem caráter 3D e o caso de um sistema 2D parece estar mais de acordo com os resultados que obtivemos.

Os valores de  $T_N$  e  $\Delta$  encontrados para medidas com pressões acima de 5,5 *kbar* (onde é observada a correlação entre eles) foram utilizados para calcular o valor do acoplamento efetivo  $\Gamma$ , usando a equação da linha crítica para o caso de um sistema 3D (Eq. 5.6) e 2D (Eq. 5.7):

$$k_{B}T_{N} = \frac{\Gamma}{2\sqrt{1 + (\Delta/\Gamma)^{2}} \left[1 - \frac{\sqrt{3}}{D}\frac{\Delta}{\Gamma}\arctan g\left(\frac{\pi\Gamma}{\sqrt{3}\Delta}\right)\right]}, [12] \qquad \text{Eq. 5.6}$$

$$k_{B}T_{N} = \frac{2(S + 1/2)\Gamma}{\sqrt{1 + (\Delta/\Gamma)^{2}} \ln\left[1 + \frac{\pi^{2}}{2(\Delta/\Gamma)^{2}}\right]}, [12]$$
 Eq. 5.7

P(kbar)	T(K)	$\Delta/k_B(K)$	$\Gamma / k_B(K)$	$\Gamma / k_B(K)$
	$I_N(\mathbf{n})$		3D	2D
5,5	1,7	1,8	2,1	2,6

Tabela 5.2. Valores de  $T_N$ , e  $\Delta$  para da medida com pressão de 5,5 kbar substituídos nas equações 5.6 e 5.7 para obter o valor de  $\Gamma$ .

Para  $5 < P < 6 \ kbar$ , o valor do acoplamento efetivo  $\Gamma \propto (1/\sqrt[3]{A})$  parece não variar significativamente com a pressão:  $2,55 < \Gamma/k_B < 2,62 \ K$  para um sistema 2D e  $2,2 < \Gamma/k_B < 2,1 \ K$  para um sistema 3D. De acordo com os parâmetros obtidos no ajuste dos dados de resistividade abaixo de  $\approx 0,65T_N$ , o valor para a velocidade das ondas de spin,  $D \propto (1/\sqrt[3]{A})$ , é independente da pressão. Considerando uma rede quadrada espera-se que  $\Gamma = \sqrt{2}(D/a)$  aumente com a pressão devido ao decréscimo do valor médio das distâncias entre primeiros vizinhos [10]. Entretanto, nossos resultados indicam que a variação de  $\Gamma$  é pequena para dar conta de qualquer variação significativa de  $T_N$ . Se a dependência das quantidades A(P) e  $\Delta(P)$  for mantida até o PCQ, a expressão das ondas de spin para  $T_N$  no caso 3D nunca levaria ao desaparecimento da temperatura crítica no PCQ. Isto não ocorreria, entretanto, se o sistema fosse governado por flutuações bidimensionais. O comportamento crítico neste caso é controlado pelo gap das ondas de spin. A temperatura de Néel decresce a medida que o gap diminui com a pressão mesmo se o acoplamento efetivo aumente.

Dessa forma, considerando pressões acima de 5*kbar*, o valor médio das constantes de acoplamento nestas pressões para o caso 2D ( $\Gamma/k_B = 2,58 K$ ) e uma expressão linear para o gap dada por:  $\Delta/k_B(P) = e(P_C^{gap} - P)$ , ajustamos nossos pontos experimentais com a expressão da linha crítica para um sistema 2D, que agora depende da pressão Eq. 5,8.

$$T_{N} = \frac{\Gamma/k_{B}}{\sqrt{1 + (e|P_{C}^{gap} - P|k_{B}/\Gamma)^{2}} ln \left[1 + \frac{\pi^{2}}{2(e|P_{C}^{gap} - P|k_{B}/\Gamma)^{2}}\right]}, \quad \text{Eq. 5.8}$$

O ajuste mostrado na Figura 5.13 (linha vermelha) reproduz os valores de  $T_N$  obtidos através do mínimo da segunda derivada (em círculos).



Figura 5.13. Linha crítica obtida através de ajuste de  $T_N(P)$  com a Eq. 5.6 para pressões acima de 5 kbar, onde o gap ( $\blacktriangle$ ) e  $T_N$  (o) caem mais rapidamente para zero. A linha tracejada representa uma simulação de  $T_N$  com a expressão para um sistema 3D [69].

Deste último ajuste, obtivemos o valor de 6,11*kbar* para a pressão crítica. Este valor está em concordância com valores prévios obtidos, e reforçam a suposição de que o  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  seja governado por flutuações de spin bidimensionais [69]. A linha tracejada na figura representa uma simulação da linha crítica para o caso 3D, onde se considera o gap como uma função linear da pressão:  $\Delta(P) = 2,57(6,19-P)$ . Observa-se na figura que para o valor da pressão crítica do gap (6,19)  $T_N$  toma um valor finito, como esperado para um sistema 3D.

### 5.2.3. Fase não-magnética ( $6,7 \le P \le 10,2$ kbar)

Em nossas análises das medidas até  $6 \ kbar$ , observamos o desaparecimento da ordem magnética em torno de  $6,18 \ kbar$ , ou seja, acima desta pressão o sistema entra no regime não-magnético. Outros aspectos da criticalidade quântica podem ser obtidos da análise de  $\rho(T)$  com  $6,7 \le P \le 10,2 \ kbar$  em baixas temperaturas. Estas medidas apresentam um *crossover* entre dois

115

comportamentos em baixas temperaturas (T < 1K) [69]. Abaixo de tais temperaturas ( $T_{cross}$ ) o sistema apresenta um comportamento líquido de Fermi e, à medida que se distancia de  $P_C$ , a temperatura associada ao crossover desloca-se para valores maiores. Para determinar o comportamento das medidas de resistividade em baixas temperaturas, iniciamos fazendo um gráfico de  $R \times T^2$  e identificamos visualmente a temperatura onde o sistema se afasta da reta. Em seguida, um ajuste da lei de potência  $\rho(T) = \rho_0 + BT^n$  abaixo da temperatura de crossover é realizado. O ajuste é baseado no método de mínimos quadrados, que trata um problema de minimização numérica de uma função não-linear. O algoritmo garante bons resultados mesmo quando as soluções iniciais, dadas como entrada, estejam distantes da solução final. Tomamos como ponto inicial o mais baixo valor medido (em ~  $100 \, mK$ ) e o ponto final sendo décimos de Kelvin abaixo de onde é observada a mudança de comportamento. Também como dado inicial, utilizamos o valor de  $ho_0$  obtido da extrapolação do comportamento da curva abaixo de  $200 \, mK$ . Os valores de  $\rho_0$  obtidos do ajuste não variam significativamente daquele que foi extrapolado. Em seguida, recorremos à ferramenta chamada de "método da horizontal" [76]. Utilizando os parâmetros obtidos dos ajustes que acabamos de descrever, um gráfico  $(\rho - \rho_0)/T^n \times T$  é feito e um bom conjunto de parâmetros obtidos permitirá que observemos uma tendência praticamente horizontal da curva em uma faixa de temperatura onde o expoente *n* calculado é válido.

A escolha do melhor conjunto de parâmetros é feita após diversos ajustes impondo pequenas variações nos limites do intervalo de temperatura considerado. Do ajuste da lei de potências obtivemos um expoente comum, n = 2, característico de um comportamento LF. O método da horizontal além de servir como um critério de controle para o ajuste, também foi útil para determinar a temperatura característica  $T_{cross}$  (n = 2), abaixo da qual o sistema comporta-se como um LF. As temperaturas características são determinadas a partir dos desvios da tendência horizontal. A Figura 5.14.a) apresenta  $\rho(T)$  para pressões acima de 6,2 *kbar* em baixas temperaturas e o ajuste da lei de potências (linha vermelha). Na Figura 5.14.b) apresentamos a aplicação do método da horizontal. se desvia da horizontal. Na primeira figura as linhas representam o ajuste com a lei de potência (obtendo-se n = 2) e, na segunda, o intervalo de temperatura onde se observa este comportamento LF. Como pode ser visto nos gráficos  $T_{cross}$ aumenta com a pressão. Esse crescimento de  $T_{cross}$  com a pressão é uma clara indicação de que nosso sistema afasta-se do PCQ. Também na Figura 5.14.b), podemos observar a diminuição do valor do coeficiente do termo quadrático  $(B = (\rho - \rho_0)/T^2)$  a medida que o sistema afasta-se de [69]  $P_C$ . Os valores de  $T_{cross}$  e *B* em função da pressão são apresentados na Figura 5.15.



Figura 5.14.a)  $\rho(T)$  em símbolos abertos e o ajuste com  $\rho(T)=\rho_0+CT^n$ , obtendo para todas as pressões apresentadas n=2. b) Aplicação do método da horizontal:  $(\rho(T)-\rho_0)/T^n$  para nossos dados, a linha preta representa o intervalo de temperatura para o qual o expoente n=2 é valido.

Os valores experimentais de  $T_{cross}$  caem num intervalo de temperatura baixo e não apresentam uma dependência linear com a temperatura perto do PCQ.  $T_{cross}(P)$  é bem descrito por um termo de campo médio,  $T_{cross}(P) \propto |\delta|^{1/2}$ . Uma forma similar de  $T_{cross}$  observada na Figura 5.15.a) foi calculada na região nãomagnética do diagrama de fases de  $CeCoGe_{3-x}Si_x$  [77], mas com altos valores de  $T_{coh}$ . A compressão do volume induzida por pressão no  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  (que é o nosso caso) é substancialmente menor que aquela experimentada por substituição de *Si* no  $CeCoGe_{3-x}Si_x$ . Assim, esperamos que os pequenos valores de  $T_{cross}(P)$  por nós obtidos correspondam àqueles de  $T_{cross}(x)$  no regime bem próximo ao PCQ.



Figura 5.15. Variação de T<sub>cross</sub> e C em função da pressão, as linhas representam os ajustes (ver texto) [69].

Por outro lado, C(P) exibe um moderado decréscimo para pressões pouco acima de  $P_c$ , mas acima de 8*kbar* a variação é pequena. O comportamento de ambos  $T_{cross}(P)$  e C(P) indicam que nosso sistema se afasta de uma região crítica quântica, e isto está de acordo com as predições teóricas para o lado nãomagnético do diagrama de fases de Doniach. Porém, a taxa de diminuição de C(P) logo acima do PCQ é pequena em comparação com outros sistemas FPs perto de um PCQ magnético [78,79]. Do ajuste  $C(P) \propto 1/|\delta|^n$  na vizinhança do PCQ -como mostrado na Figura 5.15.b)- obteve-se n = 0,25(1). Este valor é bastante diferente do menor valor predito pela teoria de flutuações de spin, n = 1/2, [18].

#### 5.2.4. Região não-Líquido de Fermi (5,5 $\leq$ P $\leq$ 8,2 kbar)

Uma análise cuidadosa de  $\rho(T)$  logo acima de  $T_N$  e  $T_{cross}$  para as pressões mais próximas de  $P_C \approx 6,1 \, kbar$  foi realizada. Com um ajuste da lei de potência  $\rho = \rho_0 + AT^n$  e recorrendo novamente ao método da horizontal, determinamos o expoente da temperatura. As medidas com pressões mais próximas da pressão crítica apresentaram uma dependência  $T^{1,21}$  ( $P = 6 \, kbar$ ) e  $T^{1,11}$  ( $P = 6,7 \, kbar$ ) e esse comportamento estende-se até ~15K [69], como pode ser observado na Figura 5.16. Estes valores de n nos indicam o desenvolvimento de um comportamento não-liquido de Fermi, NLF, em ambos os lados do diagrama de fase muito próximo de  $P_c$ , e corroboram a evidência já encontrada para a existência de um PCQ. Os valores do expoente (1,21 do lado magnético e 1,11 do lado não-magnético) foram encontrados para  $5,5 \le P \le 8,2 \, kbar$ . Pressões fora deste intervalo apresentaram dependência com a temperatura com expoente próximo de 1,38. A variação do intervalo de temperaturas em que o estado NLF é observado em nosso sistema aumenta à medida que nos afastamos de  $P_c$ .



Figura 5.16. Método da horizontal para pressões próximas à pressão crítica.

De acordo com modelos de flutuações de spin autoconsistentes para um estado NLF foram determinados alguns expoentes associados a observáveis nesta região. Para o caso da resistividade, considerando um sistema tri ou bidimensional próximo a uma instabilidade antiferromagnética, foram obtidas duas dependências:  $\Delta \rho(T) \propto T$  se o sistema for 2D e  $\Delta \rho(T) \propto T^{3/2}$  se for 3D. Comparando os expoentes obtidos de nossos dados -que foram próximos a 1- com aqueles da teoria de flutuações de spin autoconsistentes, podemos sugerir que este sistema é governado por flutuações de spin bidimensionais.

#### 5.2.5. Resistividade Residual ( $0 \le P \le 10,2$ kbar)

Assume-se que vários mecanismos de espalhamento, embora nem sempre independentes, dão contribuições aditivas para a resistividade residual. Para um

metal convencional,  $\rho_0$ , atribuída à desordem (todos os tipos de defeitos: impurezas, vacâncias, deslocamentos), é independente da temperatura. A situação é muito menos clara para metais com forte correlação eletrônica e/ou ordem magnética a baixas temperaturas. É usualmente observado em sistemas de rede Kondo baseados em *Ce* que a transição de um regime magnético para outro nãomagnético possa vir acompanhada por uma transição de valência 3+ do *Ce* localizado para uma valência intermediária entre 3 e 4. Em medidas de resistividade elétrica sob pressão observa-se um aumento da resistividade residual  $\rho_0(P)$ , a que é associada ao aumento das flutuações de valência. A resistividade residual de vários compostos férmions pesados é mostrada no lado direito da Figura 5.17. Ela varia consideravelmente entre a região magnética e não magnética ou no intervalo de pressão onde  $T_c(P)$  muda acentuadamente. Parece que a resistividade residual depende fortemente das correlações eletrônicas presentes nos sistemas considerados, mas a estrutura na  $\rho_0(P)$  com magnitudes muito diferentes não são necessariamente centradas em  $P_c$  [80].



Figura 5.17. Resistividade residual para vários sistemas férmions pesados apresentando comportamentos diferentes. Os picos vistos acima da pressão crítica estão associados a mudanças de valência [80].

A Figura 5.18.a) mostra as medidas de resistividade abaixo de 10 K em escala semi-logarítmica para uma melhor visualização da variação de  $\rho_0$  com a pressão. No gráfico, podemos observar que o valor da resistividade residual diminui com o aumento da pressão, mas uma melhor visualização desta mudança

pode ser obtida do gráfico da resistividade residual em função da pressão apresentada na Figura 5.18.b). Observamos neste gráfico, que  $\rho_0(P)$  decresce rapidamente para  $P < 4 \, kbar$ . Entre 4 e 6,2  $kbar \rho_0(P)$  parece permanecer constante e acima de 6,2 kbar decresce novamente [69]. De acordo com a variação observada de  $\rho_0(P)$  poder-se-ia-se afirmar que este composto não apresenta transição de valência induzida por pressão no intervalo considerado.



Figura 5.18.a) Medidas de resistividade para diferentes pressões como função da temperatura (apresentada em escala logarítmica). b) Valores obtidos de  $\rho_0$  para CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub> [69].

Do lado magnético, o continuo decréscimo de  $\rho_0$  -tornando-se quase constante para pressões pouco abaixo do PCQ- é consistente com a redução dos processos de espalhamento pelos momentos locais do *Ce* devido ao aumento da blindagem Kondo. No regime não-magnético, o decréscimo contínuo de  $\rho_0$  poderia ser explicado assumindo uma redução das flutuações críticas de spin, as quais estão parcialmente congeladas pela coexistência de momentos locais nãocorrelacionados (aglomerados de spin com ordem de curto alcance) e uma região paramagnética, ou seja, formação de fases de Griffith [25].

## 5.2.6. $T_{max}$ (0 $\le$ P $\le$ 10,2 kbar)

A Figura 5.19 mostra a resistividade magnética  $\rho_m$  (calculada como mostrado na seção 5.1.3) para o composto  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  sob diferentes pressões. A característica mais importante é o pico largo (associado a uma rede de Kondo) em altas temperaturas em todas as medidas. O valor de  $T_{max}$ , definido como o centro do pico, aumenta com a pressão. No cenário do modelo de rede de Kondo,  $T_{max} \propto T_K$ . A variação de  $T_{max}$  em função de P é mostrado na Figura 5.20 na estrutura do diagrama de fases de Doniach a forma de  $T_{max}(P)$  é associada ao aumento da contribuição da blindagem de Kondo devido ao alargamento da hibridização entre os momentos 4f - Ce locais e os estados eletrônicos itinerantes. Estes elétrons de condução poderiam provir principalmente da banda eletrônica 3d - Co [81].



Figura 5.19. Resistividade magnética  $\rho_m$  da amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  como uma função da Temperatura (em escala Logaritmica) para diferentes pressões. As setas indicam a temperatura onde  $\rho_m$  é máxima [69].



Figura 5.20. T<sub>max</sub> obtida da parte magnética da resistividade em função da pressão [69].

#### 5.2.7. Diagrama de fase do CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>

Depois das diversas análises das medidas de resistividade em função da temperatura num intervalo de pressões de 0 a 10 *kbar*, construímos o diagrama de fases temperatura-pressão para a amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ , que encontra-se apresentado na Figura 5.21. Na figura os círculos fechados representam a temperatura de Néel e a linha sólida (cor azul) corresponde ao ajuste com o modelo de ondas de spin para sistemas bidimensionais (Eq.5.7). Os triângulos representam a temperatura de *crossover*, ajustada com contribuições de campo médio (linha tracejada em cor laranja). Os quadrados correspondem aos valores das temperaturas da resistividade máxima da sua contribuição magnética. Dos ajustes do lado magnético e não-magnético e da observação da região não-líquido de Fermi (limitada pelas linhas pontilhadas) podemos sugerir a presença de um PCQ em P = 6,1(1) *kbar* [69].



Figura 5.21. Diagrama de fases  $P \times T$  para amostra CeCoGe<sub>2,1</sub>Si<sub>0,9</sub>. A linha sólida representa o ajuste com modelo de ondas de spin para um sistema bidimensional, a linha tracejada corresponde ao ajuste de campo médio e as linhas pontilhadas delimitam a região não-liquido de Fermi [69].

#### 5.3. Composto CeCoGe<sub>2,25</sub>Si<sub>0,75</sub>

O composto  $CeCoGe_{2,25}Si_{0,75}$  apresenta uma transição de fase antiferromagnética em 5,5 K [10]. Estudos da parte magnética foram realizados através de medidas de susceptibilidade e resistividade em função da temperatura para diferentes pressões( $0 \le P \le 6,5 \ kbar$ ) [11]. Como foi observado na seção 3.3.1, a temperatura de Néel diminui com o aumento da pressão. Entre 0 e ~ 4 kbar,  $T_N$  cai lentamente mas a queda é mais acentuada para pressões acima desse valor. Para  $P = 6,5 \ kbar$ ,  $T_N \sim 2,7K$ . A partir das análises das medidas de resistividade abaixo de  $T_N$ , assumindo um espalhamento de elétrons de condução por mágnons antiferromagnéticos, os autores propuseram a existência de um PCQ em ~ 7,5kbar [11].

Considerando novamente o valor da constante de compressibilidade obtida da secção 5.1.1,  $\kappa = 1(Mbar)^{-1}$ , deduziremos a pressão equivalente entre os compostos  $CeCoGe_{2.25}Si_{0.75}$  e  $CeCoGe_{2.1}Si_{0.9}$ 

$$\Delta P_{x=0,75 \to x=0,9} = \frac{\frac{V_{x=0,75} - V_{x=0,9}}{V_{0,75}}}{\kappa} = 4,3kbar,$$
 Eq. 5.9

deste modo, o composto com x = 0.9 poderia corresponder ao composto com x = 0.75 com uma pressão aplicada de  $4.3 \, kbar$ . Relacionando este valor de  $\Delta P$ à diferença entre as quantidade estequiométricas nominais de  $Si(\Delta x)$  obtemos que:  $\Delta P \rightarrow 4.3 \, kbar$  é equivalente a  $\Delta x(Si) \rightarrow 0.15$ . Estas relações obtidas estão em acordo com as obtidas por A. Rosch e colaboradores,  $(\Delta P \rightarrow 1.5 \, kbar \equiv \Delta x(Si) \rightarrow 0.05)$  [82].

Com o objetivo de obter um diagrama da fase magnética para o  $CeCoGe_{2,25}Si_{0,75}$  mais próximo da pressão crítica, os valores de pressão para nossas medidas na amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$  foram deslocadas em 4,3 *kbar*. A Figura 5.22 apresentada a variação de  $T_N$  em função da pressão para o sistema  $CeCoGe_{2,25}Si_{0,75}$  com as considerações anteriores. Pode-se observar que os dados parecem seguir uma tendência continua levando a sugerir a existência de um PCQ

em aproximadamente 10,5 *kbar*. Este valor de pressão crítica por nos obtida é bastante diferente dos valores sugeridos, ~ 7,5 *kbar*, em trabalhos prévios [11, 12]. Os dados em todo o intervalo de pressões aparentemente são bem ajustados por uma lei de potencias com expoente próximo a 1/2, como esperado por teoria de campo médio.



Figura 5.22. Temperatura de Néel em função da pressão para o sistema  $CeCoGe_{2,25}Si_{0,75}$ . Os símbolos abertos representam  $T_N$  obtidas de medidas de resistência e susceptibilidade em função da pressão. Os círculos cheios representam  $T_N$  por nos obtidos para a amostra  $CeCoGe_{2,1}Si_{0,9}$ .

# 5.4. Resistividade elétrica sob campo magnético no CeCoGe<sub>2</sub>Si<sub>1</sub>

Com o propósito de realizar um estudo do comportamento do sistema  $CeCoGe_{3-x}si_x$  mais perto do PCQ, o composto  $CeCoGe_2Si_1$  foi estudado por médio de medidas de resistividade elétrica sob campos magnéticos em baixas temperaturas. Este composto, x=1, apresenta ordenamento magnético de curto alcance em aproximadamente 2K, e este ordenamento pode ser observada nas medidas de calor específico susceptibilidade AC e resistividade [83, 84]



Figura 5.23. C/T vs. In T e susceptibilidade magnética AC [83, 84].

As medidas de resistividade para nossa amostra com x = 1 apresentam uma anomalia em ~2 K, a qual associamos a transição de um estado paramagnético ao estado ordenado com ordenamento de curto alcance. Espera-se que o sistema recupere o estado líquido de Fermi com a aplicação de campo magnético, a qual deve suprimir a ordem magnética de curto alcance. Para observar esta transição magnética/não-magnética, realizamos medidas de resistividade com campos de até 4,5T no intervalo de temperaturas entre 100 mK - 3 K. A Figura 5.24 apresenta as medidas de resistividade para campos inferiores a 2T. Para H = 0, observa-se uma transição em aproximadamente 2 K, a qual é deslocada continuamente para temperaturas menores quando o campo magnético é aumentado.



Figura 5.24. Medida de resistividade elétrica para nossa amostra com x=1 com campos magnéticos inferiores a 2 T. As setas representam a temperatura de ordenamento  $(T_N)$ .

Para H = 3,5 T a medida de resistividade apresenta uma dependência linear da temperatura, no intervalo entre 0,5 - 2,8 K, como mostra a Figura 5.25. para temperaturas inferiores a 0,5 K um outro comportamento pode ser visualizado



Figura 5.25. Medida de resistividade elétrica para H=3,5 T. observa-se uma dependência linear entre 0,5 e 2,8 K.

A dependência quadrática com a temperatura da medida de resistividade abaixo de 0,5 K para H = 3,5 T é claramente observada no gráfico  $\rho \times T^2$  mostrada na Figura 5.26. Para campos maiores este comportamento observa-se em intervalos de temperatura maiores.



Figura 5.26. Medida de resistividade elétrica para  $H \ge 3,5$  T. as linhas sólidas representam um ajuste linear que representa a dependência quadrática da resistência com a temperatura.

As temperaturas de ordenamento magnético (obtidas através do mínimo da segunda derivada) e a temperatura de crossover, ou coerência, (obtidas do método da horizontal) são apresentadas em função do campo magnético na Figura 5.27. No gráfico,  $T_N$  decresce continuamente com o aumento do campo magnético. Por outro lado, do outro extremo temos o surgimento do estado LF confirmado pela dependência quadrática da resistividade com a temperatura.



Figura 5.27. Temperatura de ordem e coerência em função do campo magnético aplicado.

Na Figura 5.27 observa-se um intervalo de valores de campo magnético que não tem sido explorados 2T < H < 3,5T. O estudo desta região torna-se fundamental para a determinação da existencia de um PCQ sintonizado por campo magnético neste composto. No caso que um PCQ existiese para um valor de campo crítico  $H_c$  dentro deste intervalo, observaríamos que a a linha crítica magnética  $T_N \rightarrow 0$  quando  $H \rightarrow H_c$ , outro comportamento esperado seria o NLF na região crítica. Um fato importante em nossas medidas de resistividade com H = 3,5T foi a observação do comportamento linear na resistividade com a temperatura, mesmo que tenha sido para temperaturas acima de 0,5K. Esta dependência linear poderia ser o indicativo de um comportamento NLF de um sistema proximo do PCQ.

Uma transição de fase quântica, sintonizada por campo magnético, foi sugerida recentemente por Eom e colaboradores [85] para este sistema. A partir de medidas de resistividade elétrica sob campo magnético aplicado foi observado, para um campo de 4T, uma dependência linear da resistividade com a temperatura num intervalo de temperatura amplo (0,05-7K) a qual implica que a ordem magnética foi suprimida pela aplicação do campo e o sistema apresenta um comportamento tipo NLF em baixas temperaturas [85]. As medidas de resistividade em função de  $T^{1.5}$  com H = 0T, apresentando o ordenamento magnético de curto alcance abaixo de 2*K* e para temperaturas maiores uma

dependência com  $T^{1,5}$  e com H = 4T, mostrando um comportamento linear, são apresentados na Figura 5.28 [85].



Figura 5.28. Resistividade elétrica em campo 0 e 4 T em função de T<sup>1,5</sup> [85].