

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

**EFEITOS DE ORDENAMENTO CHIRAL EM
SUPERCONDUTORES E SISTEMAS
MAGNÉTICOS DESORDENADOS**

Frederik Wolff Fabris

Tese realizada sob a orientação
do Dr. Paulo Pureur e
apresentada ao Instituto de
Física da UFRGS, em
preenchimento parcial dos
requisitos para a obtenção do
título de Doutor em Ciências

Porto Alegre

Novembro de 2004

* Trabalho financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico
(CNPq)

*Este trabalho é
dedicado à Tania,
Felipe e Michele*

Agradecimentos

Agradeço a todas as pessoas que de alguma forma colaboraram para a realização deste trabalho. Gostaria de agradecer em especial:

- Ao Professor Dr. Paulo Pureur, pela sua dedicação e seriedade com o compromisso de orientar esta tese, pelos ensinamentos experimentais e teóricos e pelo companheirismo;

- Ao Professor Dr. Ian Campbell, pelas idéias, sugestões e ensinamentos a respeito da chiralidade e do Efeito Hall anômalo;

- Ao Professor Dr. Jacob Schaf pelas valorosas discussões e sugestões dadas à este trabalho;

- À minha mãe, Tania, e meu irmão, Felipe, pelo amor e carinho ao longo de minha vida e pelo exemplo a ser seguido de dedicação, persistência e competência;

- À minha amada Michele, pelo seu amor e carinho dedicados nestes últimos anos e pelo incentivo e compreensão com relação a este trabalho;

- Aos amigos de longa data Fábio Dias e Valdemar Viera, pelas discussões experimentais e teóricas, pelo bom convívio e pela sincera amizade;

- Aos técnicos e amigos Rodrigo e Leandro, por todo o tipo de auxílio no laboratório e pela amizade;

- Aos inesquecíveis Jairo Rojas e Alcione Jurelo, pelos ensinamentos experimentais ainda no meu tempo de iniciação científica;

- Aos Professores Dr. Gilberto Fraga e Dr. Mário Baibich e demais colegas do laboratório pelas sugestões e pelo convívio;

- Ao pessoal da criogenia, Luís e Péricles, pelo fornecimento de nitrogênio e hélio líquidos, indispensáveis à realização deste trabalho;

- Aos funcionários da biblioteca, em especial à Letícia e à Sílvia.

“ *Ciência sem consciência é a ruína da alma* ”

(Rabelais)

Resumo

Este trabalho apresenta uma investigação experimental sobre as propriedades magnéticas e de transporte elétrico de sistemas caracterizados por desordem e frustração. Tais sistemas são amostras granulares do supercondutor de alta temperatura crítica $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ e amostras do tipo vidro-de-spin e reentrantes das ligas magnéticas diluídas $\text{AuMn } 8\text{at}\%$ e $\text{AuFe } x\text{at}\%$ ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21). No supercondutor granular foram estudados os efeitos de flutuações termodinâmicas na magnetocondutividade nas proximidades da transição supercondutora e a linha de irreversibilidades magnéticas. A transição para o estado de resistência nula é um processo que ocorre em duas etapas. Inicialmente, a transição de pareamento estabiliza a supercondutividade no interior dos grãos. A transição de coerência ocorre em temperaturas inferiores e ativa ligações fracas entre os grãos através de um processo do tipo percolação. O regime que antecede a transição de coerência é caracterizado por flutuações na fase do parâmetro de ordem. A linha de irreversibilidades magnéticas, estudada a partir da magnetoresistência e magnetização DC, revela um comportamento do tipo Almeida-Thouless em baixos campos magnéticos aplicados, seguido de um crossover, em $\mu_0 H = 0.1$ T, para um comportamento do tipo Gabay-Toulouse. A linha de irreversibilidades é interpretada como sendo uma manifestação experimental de uma transição de vidro chiral. As ligas magnéticas diluídas foram estudadas através do efeito Hall extraordinário. Os resultados mostram claramente que dois termos de sinais contrários contribuem para este efeito nestes sistemas. Em particular, é observada uma anomalia no coeficiente de Hall extraordinário em temperaturas próximas à temperatura de ordenamento dos vidros-de-spin e de “canting” dos reentrantes que não é prevista por nenhuma teoria convencional de efeito Hall. A interpretação dos resultados é feita em termos do modelo de vidro chiral, mostrando a importância de uma contribuição de origem puramente chiral. Esta é a primeira vez que a chiralidade, uma propriedade intrínseca de sistemas desordenados e frustrados, é observada experimentalmente de modo direto.

Abstract

This work presents an experimental study of magnetic and electrical properties of disordered and frustrated systems. The investigated systems are a granular sample of the high temperature superconductor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ and spin-glasses and reentrant samples of the diluted alloys AuMn 8at% and AuFe x at% ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21). Effects of thermal fluctuations in the magnetoconductivity near the critical temperature and the magnetic irreversibility line are studied in the granular superconductor. The resistive transition in this system is a two-step process. At higher temperatures, the pairing transition stabilizes the superconductivity in the grains. At lower temperatures a percolation-like coherence transition occurs and a long-range ordered and zero-resistance state sets in. Fluctuations of the superconducting order parameter phase are important in this transition. The magnetic irreversibility line is determined from magnetoresistivity and magnetization measurements. In low magnetic fields the irreversibility line shows an Almeida-Thouless-type behavior. Close to $\mu_0 H = 0.1$ T, a crossover to a Gabay-Toulouse-type behavior occurs. We interpret the irreversibility line as a transition to the chiral glass state. The spin-glasses and reentrant systems were studied by measurements of the extraordinary Hall effect. The results show that two different contributions are needed to describe this effect. In particular, we observe anomalous features that they are not explained by conventional Hall effect theories. We interpret the extraordinary Hall effect in terms of the chiral model and the analysis shows the relative importance of a purely chiral contribution. This is the first time that chirality, a property of disordered and frustrated systems, is experimentally observed in a direct way.

Índice

<u>Introdução</u>	1
<u>1. Propriedades Físicas dos Sistemas Estudados</u>	4
1.1 – O sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	4
1.1.1 – Histórico	4
1.1.2 – Propriedades estequiométricas e estruturais	6
1.1.3 – Propriedades de transporte	9
1.1.4 – Propriedades magnéticas	11
1.2 – Os sistemas AuFe x at% e AuMn x at%	14
1.2.1 – Vidros-de-spin	14
1.2.2 – Sistemas reentrantes	16
1.2.3 – Propriedades magnéticas e diagrama de fases	18
1.2.4 – Propriedades de transporte	21
<u>2. Conceitos Teóricos</u>	24
2.1 – Flutuações termodinâmicas e a linha de irreversibilidades magnéticas nos supercondutores granulares	24
2.1.1 – Flutuações na condutividade elétrica em $T > T_C$	25
2.1.2 – Flutuações em $T < T_C$ - Sistemas supercondutores granulares	29
2.1.3 – Frustração e chiralidade	33
2.1.4 – Vidro chiral em supercondutores granulares	36
2.1.5 – Linha de irreversibilidades magnéticas em supercondutores	37
2.2 – Os vidros-de-spin e o modelo de vidro chiral	40
2.2.1 – Ordenamento chiral	40
2.2.2 – Efeito Hall anômalo	42
<u>3. Procedimentos Experimentais</u>	47
3.1 – Produção de amostras	47

3.1.1 – Amostras policristalinas de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	47
3.1.2 – Amostras dos sistemas $\underline{\text{AuFe}}$ x at% e $\underline{\text{AuMn}}$ x at%	49
3.2 – Técnicas de medidas: transporte eletrônico	51
3.2.1 – Contatos elétricos	51
3.2.2 – Resistividade elétrica e magnetoresistência	53
3.2.2.1 – Equipamento eletrônico	53
3.2.2.2 – Sistema criogênico para baixos campos magnéticos	55
3.2.2.3 – Sistema criogênico para altos campos magnéticos	56
3.2.2.4 – Procedimentos de medida	58
3.2.3 – Condutividade Hall	60
3.2.3.1 – Equipamento eletrônico e sistema criogênico	60
3.2.3.2 – Procedimentos de medida	61
3.3 – Técnicas de medidas: magnetização DC	63
3.3.1 – Preparação das amostras	63
3.3.2 – Magnetômetro de Squid	64
3.3.3 – Procedimentos de medida	67

4. Transição de Coerência e Linha de Irreversibilidades Magnéticas no Supercondutor Granular $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

	69
4.1 – A transição para o estado supercondutor	69
4.2 – Flutuações na fase normal	73
4.2.1 – Método de análise	73
4.2.2 – Comportamento de χ_σ^{-1} na fase normal	76
4.3 – Flutuações na fase supercondutora	80
4.3.1 – Método de análise, flutuações na condutividade e transição de coerência	80
4.3.2 – Interpretação dos expoentes associados à transição de coerência	86
4.3.3 – Scaling da transição de coerência	87
4.4 – Linha de irreversibilidades magnéticas	90
4.4.1 – Comportamento magnético do supercondutor granular YBCO	90
4.4.2 – Determinação da linha de irreversibilidades	92
4.4.2.1 – Medidas de magnetização	92
4.4.2.2 – Medidas de magnetoresistência	93

4.4.3 – Análise da linha de irreversibilidades	97
4.4.3.1 – Discussão qualitativa sobre a origem da linha de irreversibilidades magnéticas	101
4.4.4 – Linha de irreversibilidade e transição de coerência	105
<u>5. Efeito Hall Anômalo em Vidros-de-Spin e Sistemas Reentrantes</u>	109
5.1 – Coeficiente Hall total nos sistemas estudados	109
5.2 – Resultados de magnetização DC	111
5.2.1 – Amostras do tipo vidro-de-spin	111
5.2.2 – Sistemas reentrantes	114
5.3 – Resultados de resistividade Hall: análise qualitativa	117
5.3.1 – Vidros-de-spin	117
5.3.2 – Sistemas reentrantes	121
5.3.2.1 – Resultados para a liga <u>AuFe</u> 15at%	121
5.3.2.2 – Demais sistemas reentrantes	123
5.4 – Determinação da contribuição de Lorentz	126
5.5 – O coeficiente Hall anômalo	131
5.5.1 – Vidros-de-spin	131
5.5.2 – Sistemas reentrantes	133
5.5.3 – Discussão dos resultados	136
5.5.3.1 – Obtenção da contribuição de side-jump ao efeito Hall anômalo	137
5.5.3.2 – Obtenção da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo dos sistemas <u>AuFe</u> x at% e <u>AuMn</u> 8at%	142
5.5.4 – Estimativa da susceptibilidade chiral para as amostras <u>AuMn</u> 8at% e <u>AuFe</u> 8at%	150
5.5.5 – Discussão Final	154
<u>Conclusões</u>	155
<u>Referências Bibliográficas</u>	160

Introdução

A investigação experimental das propriedades magnéticas e de transporte de sistemas desordenados tem motivado muitos esforços dos pesquisadores especialistas da física da matéria condensada. Em particular, os supercondutores granulares de alta temperatura crítica e as ligas magnéticas desordenadas apresentam características que ainda não são completamente entendidas do ponto de vista teórico. Um exemplo típico e intensamente debatido é a transição ao estado de resistência nula nos supercondutores granulares. Outro ponto a ser esclarecido diz respeito ao verdadeiro mecanismo responsável pela ordem magnética nos sistemas vidros-de-spin.

Os supercondutores de alta temperatura crítica apresentam uma estrutura cristalina complexa e uma pluralidade de átomos que favorecem a ocorrência de vários tipos de defeitos. Esta estrutura de defeitos, aliada ao pequeno comprimento de coerência, característico destes sistemas, faz com que os efeitos provocados pela desordem se manifestem em diversas propriedades das fases normal e supercondutora. Em especial, as amostras preparadas pelo processo de reação em estado sólido apresentam granularidade, formando uma classe especial de materiais na qual os defeitos também se manifestam em escala mesoscópica. A fenomenologia destes sistemas é fortemente dominada pelos efeitos de granularidade. Estes efeitos são evidenciados, por exemplo, nas propriedades de magnetotransporte nas proximidades da transição para o estado supercondutor e na linha de irreversibilidades magnéticas. Nestes materiais, a transição resistiva é um processo em duas etapas. Inicialmente, à medida em que a temperatura decresce, o estado supercondutor é estabilizado no interior de regiões homogêneas da amostra, de tamanho mesoscópico (grãos). Em temperatura inferior, ocorre uma transição na qual as fases do parâmetro de ordem dos grãos supercondutores individuais acoplam-se por tunelamento Josephson ou por efeito de proximidade, estabelecendo um estado coerente com ordenamento de longo alcance. Nestas condições, o estado de resistência nula é alcançado. Esta transição resistiva, denominada de transição de coerência, é precedido por efeitos de flutuações termodinâmicas e pode ser descrita em termos do Hamiltoniano de tunelamento de pares num meio de Josephson, que é análogo ao Hamiltoniano 3D-XY que descreve o comportamento de um sistema desordenado de spins planares. As flutuações na fase do parâmetro de ordem são associadas à estrutura de

defeitos e estão fortemente relacionadas às irreversibilidades magnéticas observadas na fase supercondutora.

A relevância da chiralidade, relacionada às correntes orbitais em anéis fechados de grãos, também tem sido discutida em conexão com a fenomenologia dos supercondutores granulares. Em especial, um ordenamento do tipo vidro chiral foi postulado para descrever a fase de baixa temperatura de um arranjo granular formado por um supercondutor de alta temperatura crítica em que junções Josephson do tipo π estejam presentes.

Os sistemas magnéticos do tipo vidros-de-spin e reentrantes são caracterizados pela presença de desordem não-trivial, ou seja, acompanhada de frustração, que resulta da competição entre interações conflitantes. Estes sistemas foram exaustivamente estudados ao longo das últimas décadas como exemplos de sistemas complexos cuja fenomenologia é caracterizada por desordem e frustração. Nos vidros-de-spin, as interações ferromagnéticas e antiferromagnéticas ocorrem com igual intensidade e probabilidade, de forma que o sistema evolui, com a diminuição da temperatura, de uma fase paramagnética diretamente para um estado em que os spins são congelados em direções aleatórias. O estado fundamental é considerado frustrado pois não é possível a minimização simultânea da energia de todos os pares de spins interagentes. Contudo, a verdadeira natureza desta transição e do congelamento dos spins na fase ordenada não é completamente conhecida, apesar dos grandes esforços na busca deste entendimento. Como alternativa para solucionar esta dificuldade foi proposta a existência de um parâmetro de ordem chiral em adição com o ordenamento de spins do tipo Edwards-Anderson. Sugere-se que estes estados cooperativos são acoplados entre si através dos termos de anisotropia Dyzalooshinski-Moriya, sendo a chiralidade o ingrediente primário no ordenamento dos vidros-de-spin. Além da presença da chiralidade, supõe-se a existência de um genuíno estado de ordenamento chiral. Porém, as evidências experimentais do estado de ordenamento chiral permanecem indiretas. Recentemente, foi proposto que o efeito Hall anômalo poderia levar a um teste direto para a existência do ordenamento chiral nos vidros-de-spin metálicos.

Este trabalho é dedicado ao estudo experimental das propriedades de magnetotransporte e da linha de irreversibilidades magnéticas do supercondutor granular $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ e do efeito Hall anômalo nas ligas magnéticas diluídas AuMn 8at% e AuFe x at% ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21), buscando-se compreender um pouco mais da fenomenologia associada a estes sistemas desordenados. Em especial, visa-se identificar efeitos possivelmente relacionados à chiralidade, tanto no sistema supercondutor quanto nas ligas magnéticas. Esta tese está assim dividida:

No capítulo 1 é feita uma descrição qualitativa das propriedades físicas dos supercondutores granulares de alta temperatura crítica $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ e dos sistemas magnéticos do tipo vidros-de-spin e reentrantes $\text{AuMn } x \text{ at\%}$ e $\text{AuFe } x \text{ at\%}$. Enfatizam-se as propriedades que estão relacionadas com as investigações desta tese, como, por exemplo, as propriedades magnéticas e de transporte elétrico.

No capítulo 2 é apresentada uma revisão dos conceitos teóricos ligados aos sistemas estudados. Destacam-se os modelos relacionados às flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica e à linha de irreversibilidades magnéticas no caso do supercondutor granular, e faz-se uma revisão de conceitos como desordem, frustração e chiralidade. Finalmente, é introduzido o modelo de vidro chiral bem como a sua implicação ao efeito Hall anômalo de magnetos desordenados.

No capítulo 3 são abordados os métodos utilizados na preparação das amostras estudadas neste trabalho, as técnicas experimentais empregadas, as caracterizações, e os equipamentos e procedimentos de medida necessários para a obtenção dos resultados.

No capítulo 4 são apresentados e discutidos os resultados experimentais de magnocondutividade e magnetização relativos ao supercondutor granular $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Nosso objetivo concentra-se no estudo dos efeitos de flutuações termodinâmicas no regime de aproximação ao estado de resistência nula. A análise é feita com medidas magnéticas e de transporte elétrico. Discute-se também a linha de irreversibilidades magnéticas. Os resultados mostram que os efeitos de granularidade estão presentes e que a fenomenologia é descrita em termos da desordem e da frustração. Os resultados são compatíveis com previsões do modelo de vidro chiral aplicado à supercondutores granulares.

No capítulo 5 são abordados os resultados, análise e interpretação do efeito Hall nos sistemas vidros-de-spin e reentrantes. Buscamos, em especial, identificar uma contribuição ao efeito Hall anômalo cuja origem deve-se puramente às chiralidades e assim obter elementos que possam justificar a aplicabilidade do modelo de vidro chiral a sistemas magnéticos desordenados e frustrados.

1. Propriedades Físicas dos Sistemas Estudados

1.1 – O sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

1.1.1 – Histórico

Um dos principais objetivos da pesquisa em supercondutividade é a busca por materiais que apresentem temperaturas críticas elevadas, possibilitando seu uso em aplicações tecnológicas. Na fase inicial, os esforços eram concentrados na superação dos valores observados nos supercondutores metálicos puros, conhecidos de longa data, os quais apresentam temperaturas críticas máximas da ordem de alguns Kelvins. Um passo importante nesta direção foi a descoberta dos compostos intermetálicos A-15. Alguns destes sistemas apresentam temperaturas críticas da ordem de duas dezenas de Kelvin. Esta fase atingiu seu ponto culminante em 1973, quando Gavaler¹ mostrou que um filme fino de Nb_3Ge atingia o estado de resistência nula em 22.3 K. Este valor foi superado apenas em 1986. Naquele ano, J. G. Bednorz e K. A. Muller² reportaram que um sistema óxido cerâmico, com estrutura cristalina do tipo perovskita e estequiometria nominal $\text{La}_{1-x}\text{Ba}_x\text{Cu}_5\text{O}_{5(3-y)}$ apresentava comportamento supercondutor. Para uma concentração correspondente à $x = 0.75$, o composto tem transição resistiva em temperatura próxima a 35 K. Esta descoberta causou um grande impacto na comunidade científica e abriu novas perspectivas para a pesquisa de materiais com temperaturas críticas ainda mais elevadas. Pouco tempo após foi obtido um aumento no valor da temperatura crítica deste sistema para aproximadamente 40 K através da substituição de Ba por Sr³.

Na seqüência desta evolução, Wu e col.⁴ anunciaram, em março de 1987, a descoberta de um novo material, modificado em relação ao composto de Müller e Bednorz apenas pela substituição do La por um íon menor, o Y. Isto originou um composto, cuja estequiometria é $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, em que a transição para a fase supercondutora ocorre em surpreendentes 90 K,

conforme mostrado na figura 1.1. Esta temperatura crítica também foi observada em compostos de mesma estequiometria, nos quais o Y é substituído por quaisquer outros terras-raras, com exceção de Ce, Pr e Tb. Este resultado representou um grande avanço também do ponto de vista das expectativas tecnológicas, pois esta temperatura é sensivelmente superior à do ponto de liquefação do nitrogênio (77 K).

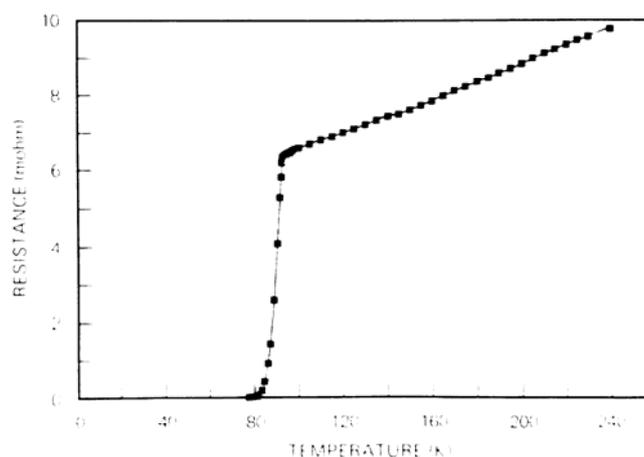


Figura 1.1 – Transição supercondutora para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ medida resistivamente por Wu e col.⁴

Apesar de não estar ainda totalmente esclarecido o mecanismo que origina a supercondutividade nestes compostos, acredita-se que os planos atômicos de Cu-O₂, característicos de sua estrutura cristalina, sejam responsáveis pelo estabelecimento deste fenômeno.

Outros compostos contendo planos de Cu-O₂ foram descobertos. Em 1988, Maeda e col.⁵ anunciaram um novo óxido supercondutor com temperatura crítica em torno de 110 K, cuja composição é Bi₂Sr₂Ca₂Cu₃O_{10+x}. Mais tarde, foi descoberta supercondutividade no composto⁶ Tl₂Ca₂Ba₂Cu₃O_y, no qual $T_c \cong 125$ K. Algum tempo depois, A. Schilling e col.⁷ observaram o fenômeno no composto HgBa₂Ca₂Cu₃O_z, com $T_c = 135$ K.

Atualmente, as principais linhas de pesquisa nestes e noutros compostos de óxido de cobre desenvolvem-se com o objetivo principal de buscar um entendimento quanto ao mecanismo responsável pela estabilização da supercondutividade em temperaturas tão elevadas, sendo realizados grande número de estudos experimentais e teóricos sobre suas propriedades nos estados normal e supercondutor.

1.1.2 - Propriedades estequiométricas e estruturais

O $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ foi o primeiro supercondutor com temperatura de transição superior ao ponto de ebulição do nitrogênio líquido. O trabalho original de Wu e col.⁴ indicava a ocorrência da supercondutividade em torno de 90 K para uma amostra com a composição nominal $\text{Y}_{1.2}\text{Ba}_{0.8}\text{CuO}_{4.6}$. Estudos posteriores determinaram que a fase responsável pela supercondutividade de alta temperatura tem composição dada por $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, onde δ varia entre 0 e 1. Assim, o conteúdo de oxigênio pode variar entre 6 e 7 átomos por cela unitária. A estrutura cristalina do composto e suas propriedades dependem fortemente desta concentração. No limite em que $\delta = 1$, o sistema é tetragonal, antiferromagnético e isolante. Abaixo de $\delta \approx 0.5$ o estado fundamental se torna supercondutor. Para $\delta \approx 0.08$ tem-se a concentração ótima de oxigênio e verifica-se o mais alto valor para a temperatura crítica neste composto, $T_c \approx 92$ K. O interesse nestes cupratos tornou-se cada vez maior, uma vez que apresentam certas peculiaridades como estrutura cristalina atípica, alta temperatura de transição e excelentes propriedades supercondutoras, tais como os elevados valores de campo crítico. A descoberta do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ motivou os pesquisadores a substituírem o íon Y por elementos terras-raras, como o Dy, Gd, Ho, Er, entre outros. Surpreendentemente, os óxidos $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ apresentam temperaturas críticas superiores a 90 K. Este resultado não era esperado, uma vez que se poderia pensar que a presença de um íon magnético $4f$ (R^{3+}) levasse à supressão da supercondutividade, o que em geral ocorre nos supercondutores convencionais. Um exemplo⁸ é a diluição de íons de terras-raras no La, a qual causa quebra de pares de Cooper e forte diminuição de T_c .

A supercondutividade de alta temperatura nos $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ originou questões relativas à coexistência de magnetismo e supercondutividade nestes compostos. Diversas técnicas experimentais mostram que os íons R^{3+} não têm influência sobre a temperatura de transição supercondutora. Uma explicação para este fato reporta-se à estrutura cristalina, segundo a qual os íons R^{3+} estão em posições bem isoladas das camadas responsáveis pela condução (camadas de Cu-O_2), as quais encontram-se entre duas camadas de Ba-O (ver figura 1.2). Desta forma, espera-se que existam apenas interações fracas entre os momentos R^{3+} e as camadas supercondutoras, o que não seria suficiente para degradar a supercondutividade⁹. Diversos estudos sugerem que os elétrons de condução não estão acoplados com os íons magnéticos, reforçando a idéia de que a interação dipolo-dipolo¹⁰ é

responsável pela transição magnética que se observa em temperaturas muito baixas na maior parte dos compostos $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

A estrutura cristalina do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ supercondutor é do tipo perovskita com simetria ortorrômbica (quando $0 < \delta < 0.5$) e está mostrada na figura 1.2. Os demais compostos $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ têm a mesma estrutura, com o átomo de terra-rara (R) ocupando o sítio do Y. Esta estrutura, esquematicamente, consiste de camadas de metal-oxigênio intercaladas por átomos de terra-rara. A característica marcante destes compostos é a presença de dois planos de Cu-O_2 separados por um plano formado pelos átomos de terra rara. Existem ainda camadas intermediárias constituídas por cobre, bário e oxigênio.

Em consequência desta disposição estrutural e da forte anisotropia planar, que se manifesta em diversos resultados experimentais, formou-se a idéia de que os planos de Cu-O_2 são os principais responsáveis pela supercondutividade, ao passo que as camadas intermediárias fornecem os portadores de carga. Assim, os compostos $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ apresentam camadas de condução (camadas de Cu-O_2) e planos intermediários atuando como reservatório de carga¹¹. Este é o modelo de transferência de carga.

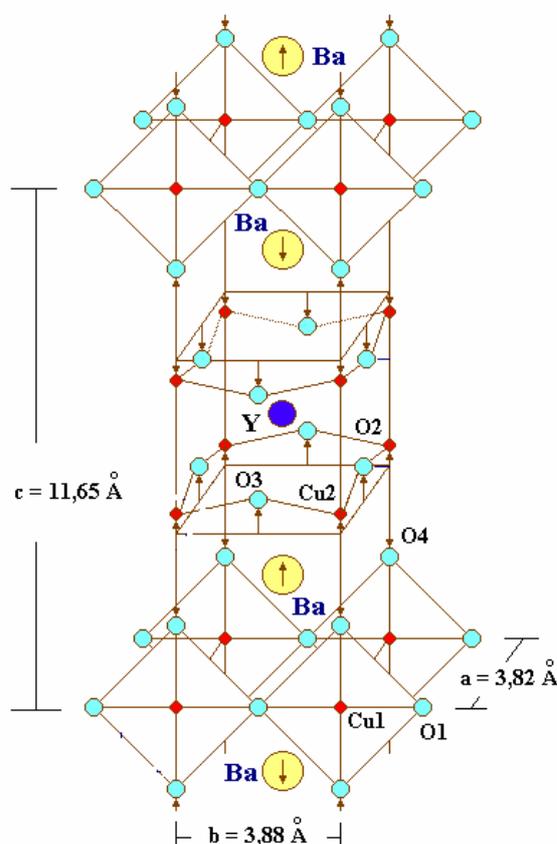


Figura 1.2 – Estrutura cristalina da célula unitária para o $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Outros compostos do tipo $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ tem a mesma estrutura cristalina com o átomo de terra-rara (R) ocupando o sítio do Y.

A química geral do sistema e a quantidade de carga transferida entre os planos atômicos controlam o número de portadores na camada de condução. Por sua vez, a quantidade de carga transferida depende da estrutura cristalina e da sua interação com a oxidação dos átomos metálicos no reservatório de carga.

Nestes compostos, há dois átomos de cobre por cela unitária que estão dispostos na camada de condução (átomos Cu2 na figura). Outro átomo de cobre (Cu1) está situado no reservatório de carga. Em torno do cobre Cu1 estão localizados átomos de oxigênio, formando uma coordenação não-usual, que dão origem a uma estrutura unidimensional ao longo do eixo b da cela. Esta disposição é denominada *cadeias de Cu-O*. Como mencionado anteriormente, estequiometrias entre 6 e 7 átomos de oxigênio por cela unitária podem ocorrer. Os átomos de oxigênio que podem ser removidos ocupam sítios nas cadeias do reservatório de carga. Quando 7 átomos de oxigênio estão presentes, estes estão estruturalmente ordenados formando cadeias intactas de Cu-O. Quando a estequiometria corresponde a seis átomos de oxigênio, a estrutura transforma-se em tetragonal¹² e as cadeias são suprimidas. Esta variação no conteúdo de oxigênio causa uma mudança no estado de oxidação dos átomos de cobre. Um efeito importante é a transferência de carga entre as camadas de condução e o reservatório, criando lacunas no plano de condução quando os elétrons são transferidos ao reservatório. Esta distribuição de carga pode ser medida como uma mudança no estado de oxidação dos átomos de cobre nos planos de condução.

Outro efeito marcante é a relação entre a temperatura crítica e a variação de δ , mostrada na figura 1.3^{12,13}. Além da região plana observada em torno de concentração ótima, onde δ é pequeno e T_c é máximo, observamos outro *plateau* em torno de 60 K, onde a concentração de oxigênio é aproximadamente 6.5 ($\delta=0.5$). Este fenômeno é relacionado com a formação de uma nova fase ordenada, denominada de ortorrômbica II, caracterizada pela presença de cadeias de cobre-oxigênio preenchidas alternadamente, gerando uma cela dupla ao longo do eixo cristalino a ¹⁴.

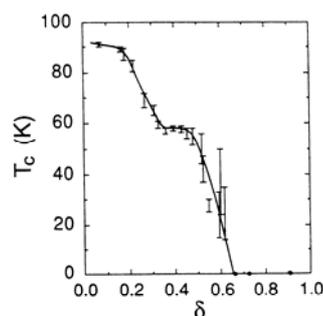


Figura 1.3 – Temperatura crítica para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ em função da concentração de oxigênio¹².

1.1.3 – Propriedades de transporte

A resistividade elétrica de amostras bem oxigenadas dos cupratos de alta temperatura crítica tem comportamento metálico e apresenta forte caráter anisotrópico. Enquanto que nas direções *a* e *b* do cristal a resistividade tem magnitude comparável à de sistemas metálicos clássicos, ao longo do eixo *c* a resistividade normal apresenta valores muitas vezes maiores que na orientação paralela aos planos de Cu-O₂. A figura 1.4 mostra um exemplo¹⁵ representativo para o YBa₂Cu₃O_{7-δ} monocristalino. A anisotropia da resistividade é consequência da configuração planar da estrutura cristalina. O grau de anisotropia é característico de cada família de cupratos e mostra que os planos reservatórios de carga tendem a bloquear o movimento coerente de elétrons entre os planos de Cu-O₂.

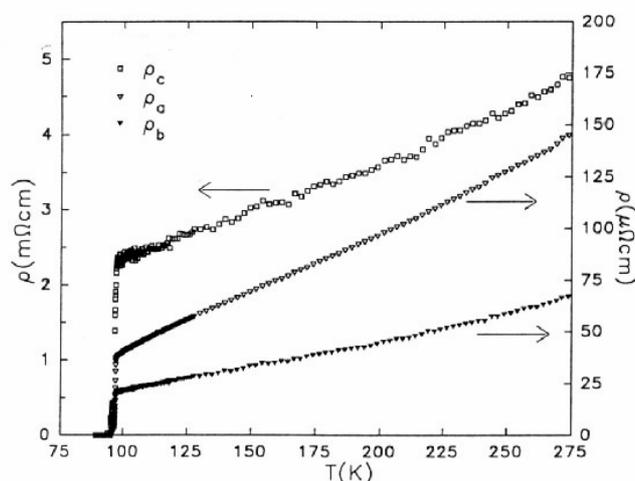


Figura 1.4 – Resistividade elétrica em função da temperatura ao longo das direções *a*, *b* e *c* para o YBa₂Cu₃O_{7-δ}¹⁵.

O método e os parâmetros de preparação das amostras têm forte influência na forma geral da curva de resistividade elétrica em função da temperatura. Diferentemente dos supercondutores convencionais de baixa temperatura crítica, a transição para o estado supercondutor não é tão abrupta, ocorrendo um arredondamento nas proximidades de T_c que é interpretado como uma manifestação de flutuações termodinâmicas. Na fase normal observam-se regimes dominados por flutuações Gaussianas e genuinamente críticas, enquanto que abaixo de T_c ocorrem flutuações da fase do parâmetro de ordem em sistemas

granulares, ou efeitos de deriva de vórtices em monocristais quando campos magnéticos são aplicados.

A largura da transição é maior em amostras policristalinas desordenadas, onde, além da granularidade intrínseca associada aos cristalitos, defeitos estruturais variados (poros, deslocamentos, interstícios e vacâncias de oxigênio) contribuem para a modulação espacial do parâmetro de ordem em escala comparável à do comprimento de coerência. Em muitos destes casos, observa-se que a derivada da resistividade elétrica em relação à temperatura apresenta uma estrutura na forma de dois picos (figura 1.5) nas proximidades de transição. Isto sugere que o estabelecimento do fenômeno da supercondutividade ocorre segundo um processo de duas etapas¹⁶. O pico de maior temperatura corresponde ao estabelecimento do estado supercondutor no interior dos grãos, enquanto que o máximo de mais baixa temperatura é consequência de um processo de percolação controlado pelas ligações fracas entre os grãos. Este acoplamento intergrão pode ser consequência de tunelamento Josephson ou efeito de proximidade, e é dependente da temperatura, da densidade de corrente aplicada e do campo magnético. Assim, num sistema granular, com a diminuição da temperatura, inicialmente os grãos tornam-se supercondutores. Porém, as fases do parâmetro de ordem em cada grão flutuam incoerentemente até o estabelecimento de uma ordem de longo alcance através da ativação das ligações fracas em temperaturas mais baixas do que a temperatura de pareamento intrínseca (supercondutividade estabelecida no interior dos grãos). O ordenamento de longo alcance se traduz no estabelecimento do estado de resistência nula.

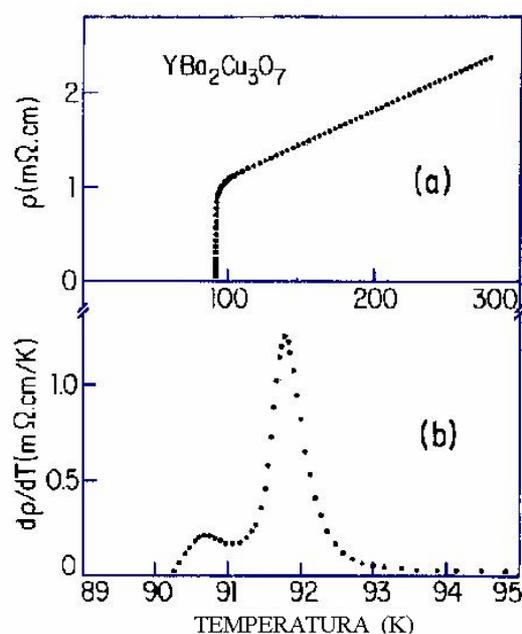


Figura 1.5 – Transição supercondutora em dois estágios para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.¹⁶

Quando se estudam as propriedades de transporte eletrônico da amostra na presença de campos magnéticos aplicados, observa-se o enfraquecimento das ligações intergranulares. Dessa forma, ocorre um alargamento na transição e, conseqüentemente, uma diminuição da temperatura na qual é estabelecido o estado de resistência nula¹⁷. Efeito similar é provocado pelo aumento da densidade de corrente elétrica. Caso o campo magnético seja suficientemente alto, a supercondutividade é afetada no interior dos grãos e a dinâmica de vórtices de Abrikosov passa a desempenhar um papel fundamental nos efeitos dissipativos¹⁸, também originando um alargamento na transição.

1.1.4 – Propriedades magnéticas

Aplicando-se campo magnético a um supercondutor no estado normal ($T > T_c$), e resfriando-o através da transição, observaremos a expulsão abrupta de parte ou da totalidade do fluxo magnético do seu interior em $T = T_c$. Este fenômeno é conhecido como efeito Meissner, o qual constitui-se numa das características mais fundamentais do estado supercondutor. Para os supercondutores $R\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, que são do tipo II, o estado Meissner (com expulsão total do fluxo magnético, constituindo um diamagnetismo perfeito) ocorre até o campo crítico inferior H_{C1} , cujo valor em temperatura nula é aproximadamente 500 Oe ¹⁹. Em temperaturas próximas de T_c , este campo crítico diminui sensivelmente. Acima de H_{C1} , a energia de superfície do supercondutor torna-se negativa, favorecendo a penetração parcial do campo magnético em seu interior na forma de linhas de fluxo quantizadas (vórtices de Abrikosov). Apesar disto, a supercondutividade se mantém até o campo crítico superior, H_{C2} , o qual alcança valores superiores a 100 T em²⁰ $T=0$. Assim, para valores de campos magnéticos correspondentes a $H_{C1} < H < H_{C2}$, consideramos que o sistema encontra-se na fase mista, onde o material é subdividido em regiões supercondutoras e regiões normais. Logo, a fase mista é caracterizada pela existência de um efeito Meissner incompleto devido à penetração parcial do fluxo magnético na forma dos vórtices de Abrikosov. À medida que a intensidade do campo magnético aproxima-se de H_{C2} , a densidade de vórtices aumenta até que, em H_{C2} , os núcleos normais dos vórtices percolam e a supercondutividade é suprimida.

Em um supercondutor homogêneo na fase mista, os vórtices arranjam-se no interior da amostra formando uma rede hexagonal denominada de rede de Abrikosov. Entretanto, a grande maioria das amostras dos cupratos supercondutores é granular. Nestes materiais, o

acoplamento entre os grãos supercondutores é feito por efeito de proximidade ou por tunelamento Josephson. Devido ao fato de que estes acoplamentos são fracos, o campo magnético penetra com maior facilidade e profundidade na região situada entre os grãos. Dessa forma, é definido o campo crítico de Josephson H_{C1J} , menor que H_{C1} , e que mede a blindagem do fluxo magnético através das junções fracas. Portanto, quando $H > H_{C1J}$, o campo magnético externo penetra no supercondutor na forma de vórtices intergranulares de Josephson. A diferença básica entre os vórtices de Abrikosov e de Josephson é que este último passa através de regiões intergranulares, onde o parâmetro de ordem é fraco ou nulo, e não através do grão (caso do vórtice de Abrikosov). Os vórtices de Josephson são caracterizados por apenas um comportamento crítico: o comprimento de penetração de Josephson, que mede a escala espacial onde são definidas as correntes de blindagem. Os vórtices de Abrikosov, ao contrário, dependem do comprimento de coerência intrínseco, que descreve a seção transversal do carôço normal atravessado pelo campo magnético e do comprimento de penetração de London intergranular.

Outra característica magnética interessante nestes compostos é a existência do fenômeno de irreversibilidade magnética, que pode ser observada em experimentos de magnetização DC (ou magnetoresistência) realizados segundo os procedimentos descritos a seguir:

- *ZFC (Zero Field Cooled)*: Diminui-se a temperatura através da transição para o estado supercondutor na ausência de campo magnético. Quando a amostra se encontra em baixas temperaturas, aplica-se o campo e faz-se a medida da magnetização durante seu aquecimento. Um momento fortemente diamagnético é em geral observado, o qual representa a expulsão do fluxo magnético devido à blindagem originada pela circulação das supercorrentes na superfície da amostra.

- *FC (Field Cooled)*: O campo magnético é aplicado quando a amostra se encontra no estado normal e a coleta de dados é feita durante o resfriamento através de T_c . Observa-se um momento diamagnético causado pelo efeito Meissner, correspondendo à expulsão parcial do fluxo magnético aplicado. Realizando-se as medidas durante o aquecimento da amostra após o resfriamento em campo, o procedimento é denominado de FCW (Field Cooled Warming).

Quando se examinam curvas ZFC e FC, como no exemplo da figura 1.6 ²¹, nota-se que abaixo de uma certa temperatura, $T_{irr} (< T_c)$, que é função do campo aplicado, o material exhibe um comportamento magnético não-reversível. Na região $T > T_{irr}$, as curvas ZFC e FC

convergem em um comportamento reversível. O fenômeno surpreendente é a existência deste regime reversível na região $T_{irr} < T < T_C$ (que pode se estender por vários graus nos compostos $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$), uma vez que o aprisionamento dos vórtices por defeitos no material (pinning) poderia fazer com que T_{irr} e T_C fossem praticamente coincidentes, tal como ocorre nos supercondutores metálicos de baixa temperatura crítica.

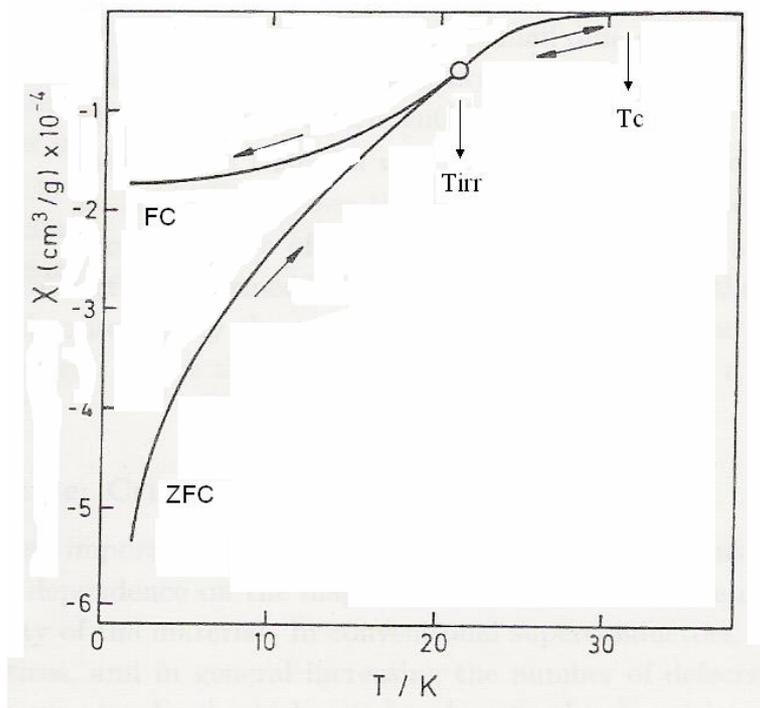


Figura 1.6 – Ocorrência do fenômeno de irreversibilidade magnética a partir de medidas de magnetização DC realizada segundo os procedimentos ZFC e FC para uma amostra de $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-y}$.

Realizando-se as medidas de magnetização DC ou magnetoresistência sob diferentes campos magnéticos aplicados, podemos determinar uma linha de irreversibilidades através de um diagrama de fases $H \times T$. Esta linha separa uma região de altas temperaturas magneticamente reversível de uma região de baixas temperaturas magneticamente irreversível. A linha de irreversibilidades magnéticas é uma das propriedades mais estudadas nos cupratos supercondutores. Porém, a sua interpretação, do ponto de vista teórico, ainda se encontra em discussão.

A irreversibilidade magnética nos supercondutores do tipo II origina-se a partir do movimento dos vórtices. Este movimento é relacionado à energia de ativação térmica dos vórtices, os quais conseguem superar as forças de aprisionamento. Na região magneticamente reversível, os vórtices têm energia suficiente e podem se mover livremente, enquanto que em temperaturas abaixo de T_{irr} , a mobilidade é restringida e os vórtices permanecem aprisionados nos centros de pinning.

1.2 – Os sistemas AuFe x at% e AuMn x at%

1.2.1 – Vidros-de-spin

Os materiais chamados de vidros-de-spin são magneticamente desordenados e frustrados. O interesse por suas propriedades físicas surgiu a partir dos anos de 1970. Neste trabalho estamos interessados nos vidros-de-spin clássicos, que são formados a partir da diluição de impurezas magnéticas (metal de transição 3d) em uma matriz de metal nobre.

Uma das principais características magnéticas destes compostos é a existência de um pico agudo, do tipo cúspide, no comportamento da susceptibilidade magnética AC em função da temperatura. Os primeiros experimentos de susceptibilidade magnética em vidros-de-spin de AuFe x at%, em baixos campos magnéticos, foram realizados por Canella e col.²² utilizando uma ponte de indutância mútua com alta sensibilidade. Nestas experiências o campo magnético aplicado foi de 5 mT (5 Oe). A variação da susceptibilidade magnética em função da temperatura para alguns compostos de AuFe x at% está mostrada na figura 1.7, que ilustra o comportamento típico da susceptibilidade magnética nos sistemas vidro-de-spin.

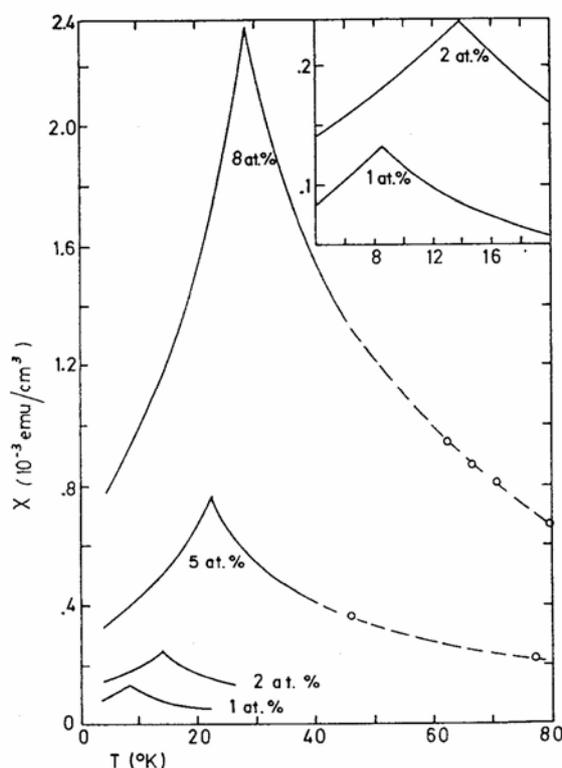


Figura 1.7 – Susceptibilidade magnética AC medida²² para o vidro-de-spin AuFe x at% e campo aplicado $H = 5$ Oe. A temperatura e a intensidade do pico aumentam com o aumento da concentração.

O comportamento representado na figura 1.7 é a assinatura de uma “transição de congelamento”, que ocorre na temperatura T_g (definida pela cúspide), de um estado paramagnético de alta temperatura para um estado cooperativo no qual os spins das impurezas magnéticas são congelados em direções aleatórias. Em medidas de susceptibilidade DC (um exemplo está ilustrado na figura 1.8) observa-se, abaixo da temperatura onde ocorre o cuspide, o surgimento de efeitos de irreversibilidade magnética em medidas realizadas segundo os procedimentos ZFC e FC. Associado à descrição do comportamento magnético destes sistemas, estão os conceitos de desordem e frustração, a qual resulta da competição entre interações conflitantes. A natureza deste tipo de ordenamento bem como sua descrição teórica ainda é objeto de discussão entre os pesquisadores da área.

Nas próximas seções, serão apresentadas as propriedades físicas das ligas diluídas que são pertinentes à realização deste trabalho. Posteriormente, será apresentada uma breve revisão de algumas das idéias teóricas utilizadas para descrever o comportamento dos vidros-de-spin.

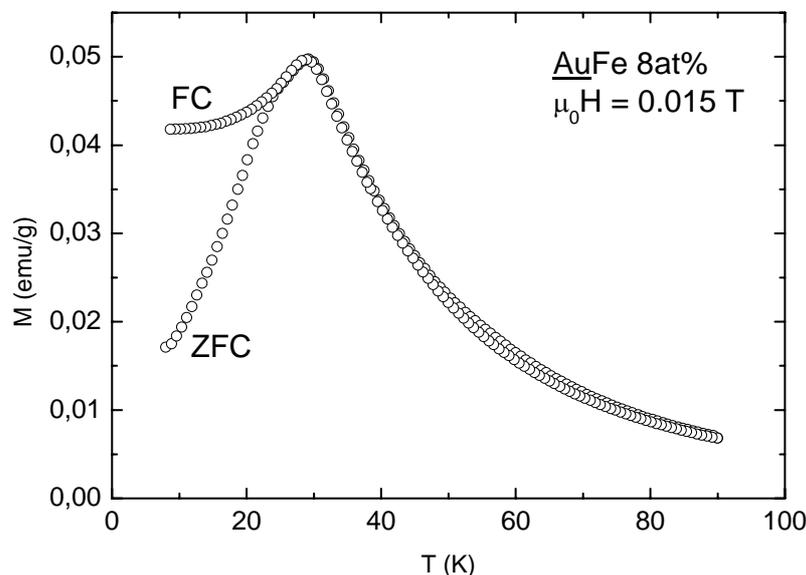


Figura 1.8 – Comportamento da susceptibilidade magnética DC em função da temperatura para um vidro-de-spin AuFe 8at%. Observa-se um pico agudo que denota a temperatura de congelamento dos spins e o fenômeno de irreversibilidade magnética na fase ordenada, que é evidenciada pela diferença entre as curvas ZFC e FC.

Como mencionado anteriormente, os vidros-de-spin confeccionados para a realização deste trabalho são os conhecidos sistemas formados pela diluição de átomos magnéticos em

um metal nobre. Para a formação deste tipo de materiais, são considerados dois critérios básicos²³: (a) a presença de bons momentos magnéticos, ou seja, a temperatura de Kondo deve ser inferior a 1 K, de tal forma que não há complicações decorrentes do enfraquecimento dos momentos locais em baixas temperaturas; (b) a existência de uma boa solubilidade, tal que ao menos 10at% do metal 3d possa ser dissolvido no metal nobre hospedeiro. Este último critério, em conjunção com um processo de homogenização específico a cada sistema, assegura que as impurezas se distribuem aleatoriamente. Além dos compostos arquétipos CuMn e AuFe, há somente três outros sistemas de vidros-de-spin simples que podem ser formados pela combinação entre metal nobre e metal de transição: AuCr, AuMn e AgMn. Propriedades físicas, como a susceptibilidade magnética em baixos campos e a resistividade elétrica, são muito similares para estes cinco sistemas. Outras combinações apresentam problemas, tanto pela temperatura Kondo elevada e/ou, especialmente, pelo baixo limite de solubilidade.

As ligas preparadas e estudadas neste trabalho são os sistemas AuFe x at% ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21) e AuMn 8at%. No intervalo de concentração de íons magnéticos nas amostras de nosso interesse, os sistemas são soluções sólidas onde os átomos de Fe ou Mn substituem átomos de Au na estrutura cristalina fcc do ouro. Assim, estes sistemas são caracterizados por desordem química e estrutural. No entanto, cuidados especiais devem ser tomados no tratamento térmico ao qual são submetidas estas ligas, pois há uma tendência de segregação tanto do Fe quanto do Mn quando diluídos em Au.

1.2.2 – Sistemas reentrantes

O comportamento magnético dos sistemas formados a partir da diluição de impurezas magnéticas em uma matriz de átomos de metal nobre depende da concentração dos íons magnéticos. Quando se estuda a susceptibilidade magnética AC em função da temperatura para o sistema AuFe x at% em diferentes concentrações de Fe, observa-se que a magnitude do pico aumenta fortemente com o acréscimo de impurezas magnéticas. Em concentrações superiores²⁴ a $x \approx 15.0$ ocorre, à medida que a temperatura é diminuída, o aparecimento de uma transição do estado paramagnético para um estado do tipo ferromagnético em uma temperatura T_C . Em temperaturas mais baixas, ocorre uma transição análoga àquela dos vidros-de-spin, correspondente ao congelamento dos spins em orientações aleatórias e que se

manifesta experimentalmente na presença de campos magnéticos fracos ou moderados. Acredita-se que, em razão da frustração, o sistema “reentra” para uma fase desordenada do tipo vidro-de-spin. Estes sistemas são conhecidos como sistemas reentrantes²⁵. A figura 1.9 ilustra a evolução do comportamento magnético do $\text{AuFe } x \text{ at\%}$ com relação à concentração de íons magnéticos. Para $x \geq 16$, aproximadamente, a susceptibilidade caracteriza o comportamento reentrante.

Em contraste com os vidros-de-spin canônicos (baixas concentrações de Fe), nos sistemas reentrantes as curvas de susceptibilidade magnética mostram características de ordenamento ferromagnético (ver figura 1.9). As curvas apresentam um aumento pronunciado de χ (T) denotando a posição da temperatura de Curie, T_C . Abaixo de T_C , χ (T) varia lentamente com a temperatura, evidenciando efeitos de magnetização limitada pelo fator desmagnetizante. Em temperatura mais baixa, observa-se uma queda abrupta em χ (T) indicando o estabelecimento de um estado com ordem do tipo vidro-de-spin. A temperatura T_g é dada, aproximadamente, pelo ponto em que χ (T) diminui fortemente a partir do plateau determinado pelos efeitos desmagnetizantes.

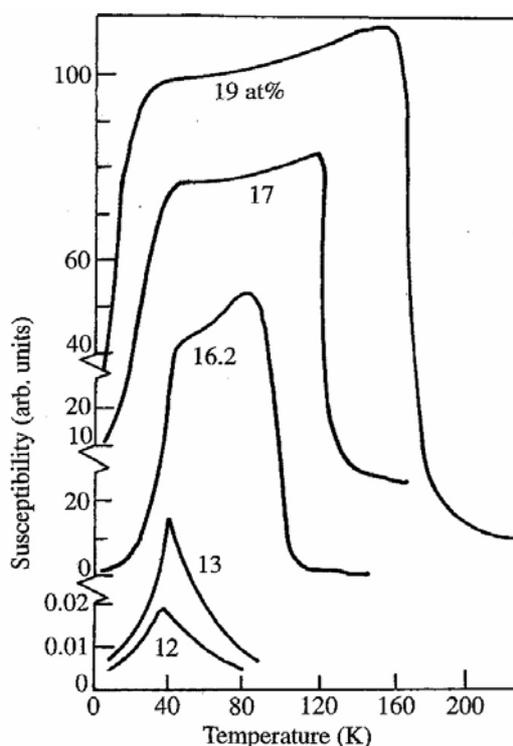


Figura 1.9 – Susceptibilidade magnética AC para os sistemas $\text{AuFe } x \text{ at\%}$. Nos materiais reentrantes ($x \geq 15.0$), observa-se a ocorrência de uma transição paramagnética – ferromagnética em altas temperaturas, seguida de uma transição do tipo vidro-de-spin em temperaturas mais baixas.

As medidas de magnetização DC em função da temperatura segundo os procedimentos ZFC e FC (ver figura 1.10) mostram que os efeitos de irreversibilidade magnética estão presentes em temperaturas abaixo de T_g na situação em que baixos campos magnéticos são aplicados.

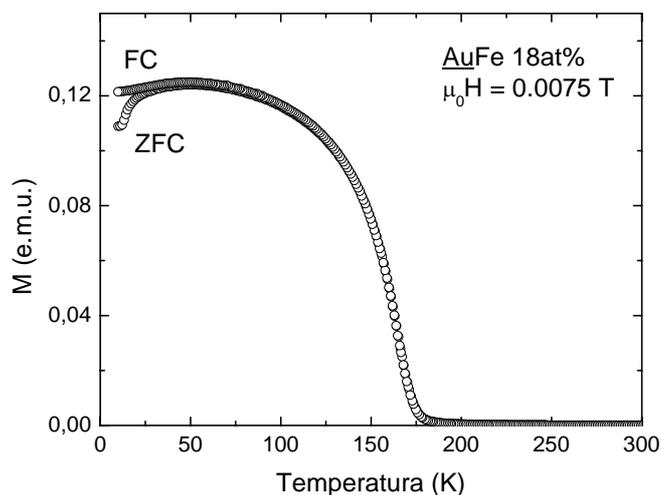


Figura 1.10 – Magnetização DC medida em função da temperatura para uma amostra reentrante de AuFe 18at%, mostrando os efeitos irreversíveis abaixo de T_g .

1.2.3 – Propriedades magnéticas e diagrama de fases

Várias técnicas experimentais são empregadas no estudo das propriedades magnéticas dos vidros-de-spin e dos sistemas reentrantes, tais como a magnetização em função da temperatura e do campo aplicado, a histerese, a remanência magnética, as propriedades de transporte e outras.

Nos vidros-de-spin, os acoplamentos ferromagnéticos e antiferromagnéticos ocorrem com igual intensidade e probabilidade, de forma que o sistema evolui de uma fase paramagnética diretamente para um estado de congelamento de spins em direções aleatórias. Em temperaturas acima da temperatura de congelamento T_g , uma forma modificada da lei de Curie-Weiss²³ pode ser ajustada aos dados de susceptibilidade magnética:

$$\chi = ng^2 \mu_B^2 S(S+1) / 3k_B (T - \theta) \quad (1.1)$$

onde o momento efetivo e θ (temperatura de Curie paramagnética) são funções da concentração e n é a densidade de íons magnéticos.

Para temperaturas baixas, no sistema AuFe, $\chi(T) = \chi(0) + bT^n$, com $n \cong 2$. Assim, χ extrapola para um valor finito quando $T \rightarrow 0$ e uma razão $\chi(0)/\chi(T_g) \approx 0.6$ é obtida para concentrações magnéticas entre 0.1 e alguns átomos por cento.

Algumas das propriedades magnéticas para vidros-de-spin do sistema AuFe x at% estão listadas na tabela 1.1.

	c (at%)	Tg (K)	$P_{eff} = g\mu_B \sqrt{S(S+1)}$	$\chi(0)/\chi(T_g)$	θ (K)
<u>AuFe</u>	0.1	2.1	~ 3.3	0.6	~ 0
	0.2	3.0	~ 3.3	0.6	~ 0
	0.5	5.4	~ 3.3	0.6	~ 0
	0.9	8.5	3.4	0.5	~ -2
	1.0	9.0	-	-	-
	2.0	13.9	3.6	0.5	~ -1
	5.0	22.2	4.9	0.39	~ 1.5
	7.6	27.9	7.1	0.27	~ 4
	12	36.0	11.4	0.11	~ 12
	13	38.0	15.5	0.11	~ 17

Tabela 1.1 – Propriedades magnéticas obtidas a partir de medidas de susceptibilidade AC em baixo campo magnético aplicado para vidros-de-spin de AuFe x at%²³.

Nos sistemas reentrantes, por outro lado, ocorre um desequilíbrio nas interações, de modo que o sistema atinge um estado de tipo vidro-de-spin após passar por uma fase intermediária com características ferromagnéticas. A reentrância²⁴ resulta quando a concentração das impurezas magnéticas é aumentada a partir da região onde é observado o comportamento do tipo vidro-de-spin simples.

O diagrama de fases da figura 1.11 para o sistema AuFe x at%, determinado²⁵ a partir de medidas de susceptibilidade magnética AC, espectroscopia Mössbauer e ressonância de spin eletrônico, mostra que três fases magnéticas podem ser identificadas.

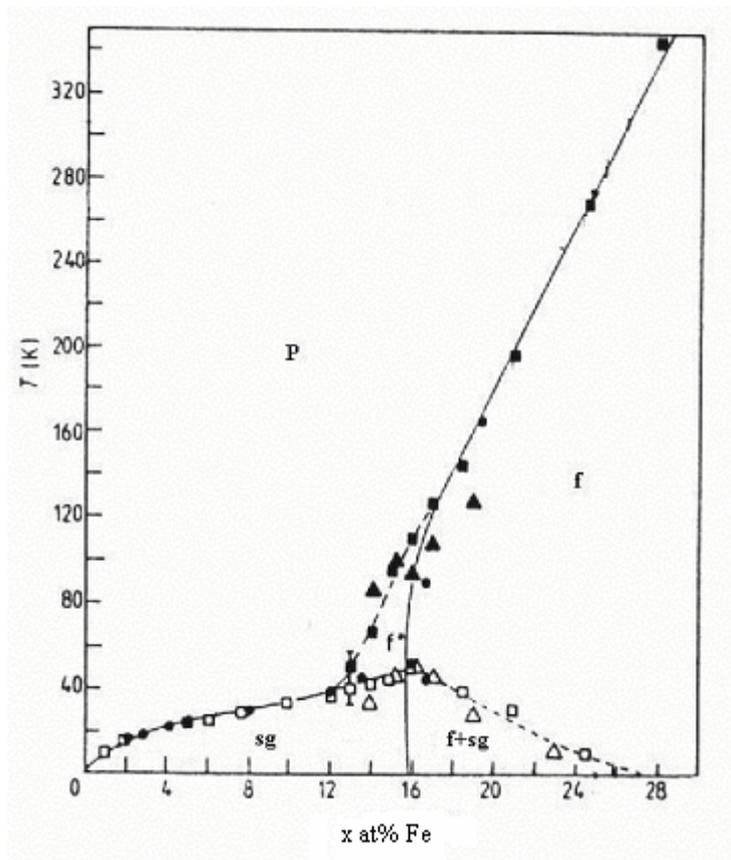


Figura 1.11 – Diagrama de fases magnéticas para o sistema $AuFe$ x at% em função da concentração do íon magnético²⁵.

O diagrama de fases nos permite visualizar que na região de baixas concentrações de Fe (menor que ~ 13 at%) o sistema evolui, em baixas temperaturas, da fase paramagnética (indicada por P) para um estado fundamental de tipo vidro-de-spin (região sg). A linha que delimita estas regiões é dada pela temperatura de congelamento T_g . No intervalo entre 16at% e 25at%, à medida que a temperatura decresce, o sistema passa de um estado paramagnético para um comportamento tipo ferromagnético e, em baixas temperaturas, o sistema reentra para um estado desordenado (região f+sg) do tipo vidro-de-spin. Os autores diferenciam as fases reentrante e vidro-de-spin. Porém, o comportamento de muitas propriedades físicas nos dois estados é muito similar. Na região de transição, em concentrações entre 13 e 16at%, os autores identificam uma fase do tipo ferromagnética em temperaturas intermediárias (fase f^*). Em tal região de concentrações, o “canting” dos momentos magnéticos de Fe é particularmente pronunciado. Em concentrações de íons de Fe acima de 26at%, a transição para um estado do tipo vidro-de-spin não é mais identificada e o sistema apresenta apenas a passagem de uma fase paramagnética diretamente para o estado ferromagnético.

1.2.4 – Propriedades de Transporte

A resistividade elétrica ρ de um metal magnético é facilmente medida, ainda que nem sempre o resultado é de fácil interpretação. Devido a seu potencial como fonte de informação, muitos estudos experimentais sistemáticos de transporte elétrico foram realizados^{26,27,28} no CuMn, AuMn, AuCr, AuFe e AgMn. Os resultados não mostram nenhum tipo de anomalia nas proximidades de T_g para estes sistemas. A figura 1.12 mostra um exemplo para o AuFe 8at%. Curvas de magnetoresistência seguem a mesma linha e não permitem a identificação de T_g . Mesmo sob fortes pressões aplicadas, não se observam efeitos²⁹ em ρ (T) nas proximidades de T_g . Um bom número de trabalhos teóricos^{28,30,31} foram propostos com o objetivo de descrever a dependência de ρ com a temperatura nos vidros-de-spin.

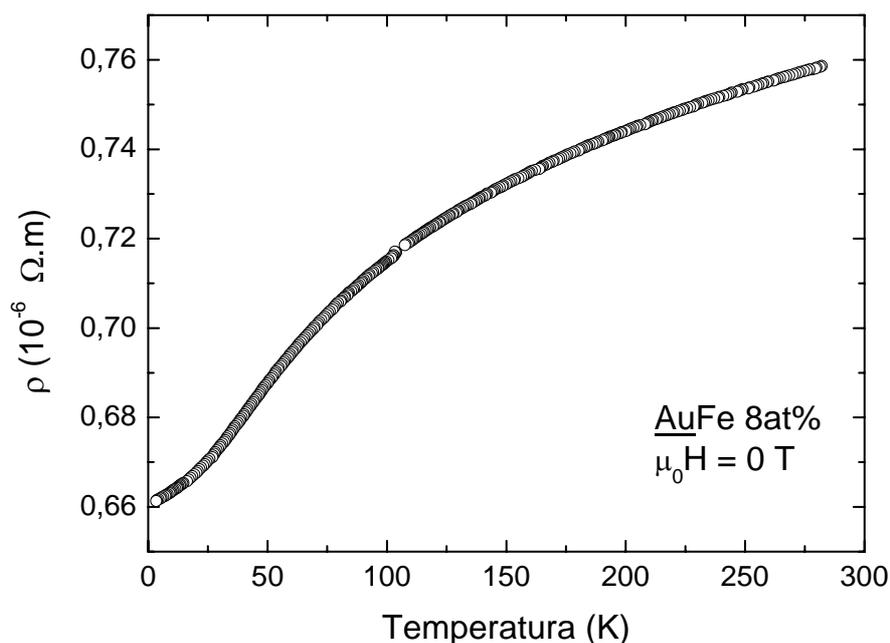


Figura 1.12 – Comportamento da resistividade elétrica em função da temperatura para uma amostra de AuFe 8at% em campo magnético nulo. Não é observado qualquer tipo de anomalia em T_g .

Medidas de efeito Hall são úteis no sentido de se identificar se a condução elétrica é feita por elétrons ou lacunas. A dependência do efeito Hall com a temperatura e o campo foi originalmente estudado por McAllister e Hurd³² nos sistemas CuMn, AuMn, AuFe e AgMn. As figuras 1.13A e 1.13B demonstram a existência^{32,33} de um pico anômalo na resistência

Hall extraordinária de vidros-de-spin típicos, cuja temperatura coincide com a temperatura de congelamento T_g observada em medidas de susceptibilidade magnética AC. Isto mostra que uma correlação muito estreita existe entre estas duas quantidades. Porém, a existência deste pico é limitada à região de baixos campos magnéticos, ocorrendo o seu arredondamento na presença de campos magnéticos mais intensos (ver figura 1.13B).

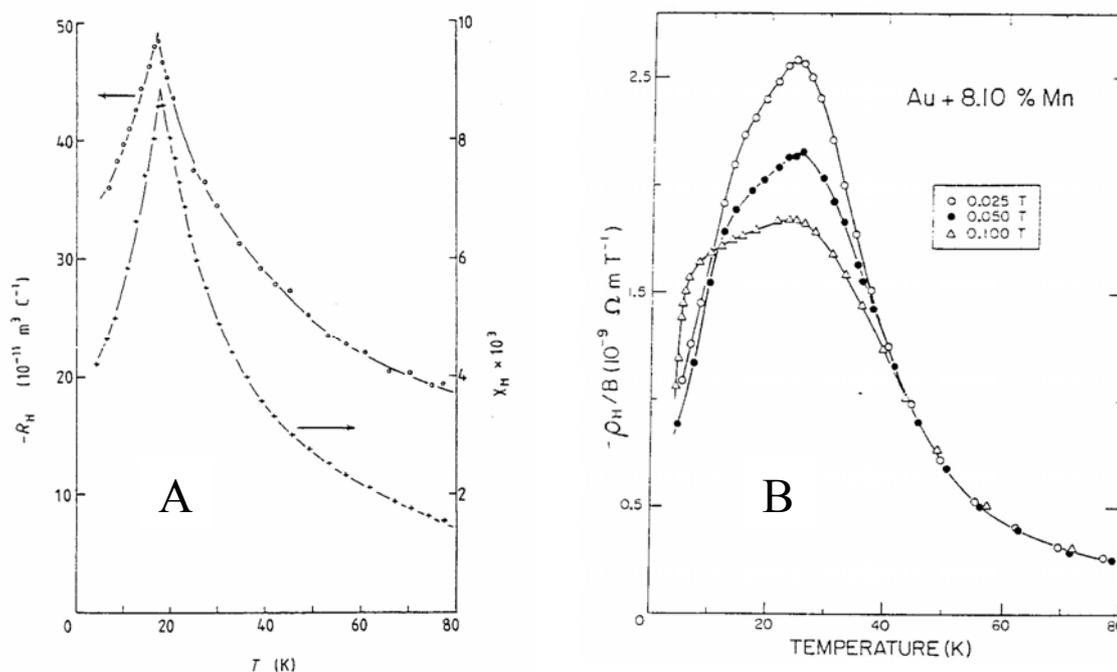


Figura 1.13 – Parte A: curva superior ilustra a dependência da constante Hall R_H em função de T para uma amostra de AuFe 3at\% ³³. O resultado de susceptibilidade magnética AC para a mesma amostra corresponde à curva inferior no gráfico. Parte B: dependência com a temperatura para a constante Hall observada na amostra de AuMn 8.1at\% sob diferentes campos magnéticos aplicados³². O efeito Hall permite a obtenção da temperatura de congelamento T_g dos vidros-de-spin.

Os efeitos de irreversibilidade são observados nos resultados de efeito Hall extraordinário segundo os procedimentos ZFC e FC para baixos valores de campos magnéticos, conforme ilustra a figura 1.14. A discussão do efeito Hall nos vidros-de-spin será apresentada posteriormente em uma seção específica, pois se constitui num dos tópicos centrais abordados neste trabalho.

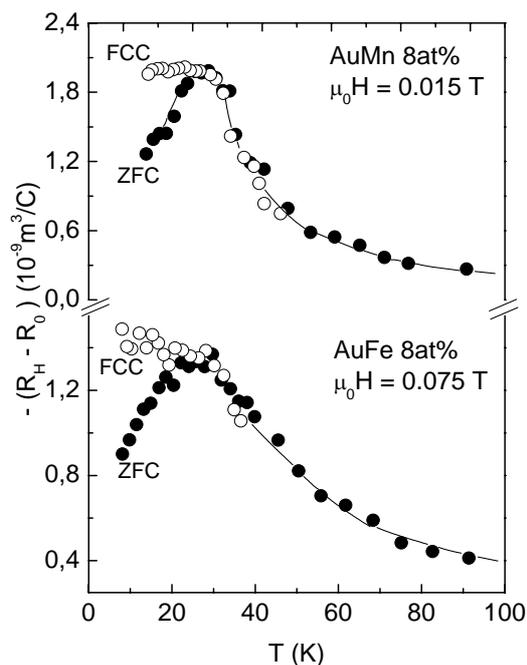


Figura 1.14 – Efeitos de irreversibilidade são observados abaixo da temperatura de congelamento T_g na variação da constante Hall extraordinária com a temperatura quando aplicam-se campos magnéticos fracos.

Uma propriedade de transporte interessante é o poder termoelétrico. Canella e colaboradores³⁴ foram os primeiros a medir o poder termoelétrico em alguns dos vidros-de-spin. Porém, nenhuma anomalia em T_g foi percebida. Contudo, Foiles e colegas³⁵ mediram o poder termoelétrico para o sistema AuMn x at% (figura 1.15) e apontaram que a temperatura na qual o poder termoelétrico muda de sinal corresponde à temperatura T_g .

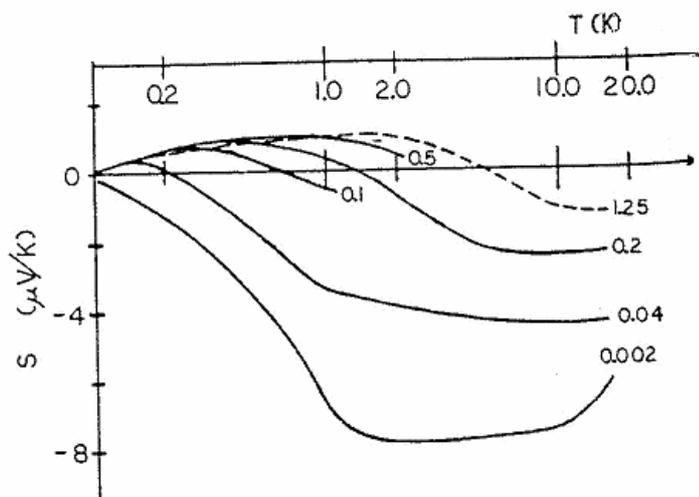


Figura 1.15 – Poder termoelétrico $S(T)$ para a liga AuMn em diferentes de concentrações de Mn. Um máximo positivo em baixas temperaturas é observado seguido de uma reversão de sinal em uma temperatura que coincide com a temperatura de congelamento observada em medidas de susceptibilidade.

2. Conceitos Teóricos

Neste capítulo serão discutidos os fundamentos teóricos necessários ao desenvolvimento deste trabalho. Temas como os efeitos das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica e a linha de irreversibilidades magnética em supercondutores granulares serão abordados. Também será discutido o conceito de desordem não-trivial, associada à frustração e será apresentado o modelo chiral aplicado aos cupratos supercondutores granulares e aos sistemas magnéticos do tipo vidro-de-spin. Todos estes assuntos são relevantes na busca de um entendimento dos resultados experimentais obtidos.

2.1 – Flutuações termodinâmicas e a linha de irreversibilidades magnéticas nos supercondutores granulares

Sabe-se que as flutuações termodinâmicas desempenham um importante papel na descrição das transições de fase de segunda ordem³⁶. Nos supercondutores de baixa temperatura crítica podemos descrever a transição para o estado supercondutor em termos da teoria de Ginzburg-Landau (GL)³⁷. Neste caso, os efeitos de flutuações térmicas na amplitude do parâmetro de ordem nas proximidades da transição supercondutora são pequenos e podem ser bem descritos através da aproximação Gaussiana, na qual pequenas flutuações não interagentes são consideradas. Assim, na expressão para a energia livre de GL apenas o termo proporcional a $|\psi|^2$ é levado em conta. Porém, os cupratos de alta temperatura crítica apresentam características distintas dos supercondutores convencionais, como a acentuada anisotropia planar e o pequeno comprimento de coerência. Neste caso, os efeitos das flutuações termodinâmicas na amplitude e na fase do parâmetro de ordem devem ser considerados em temperaturas próximas à transição supercondutora. Algumas propriedades físicas, como a condutividade elétrica, têm o comportamento completamente modificado nas

proximidades da transição devido à efeitos de flutuações termodinâmicas. Nas temperaturas imediatamente acima de T_C , os efeitos das flutuações termodinâmicas na amplitude do parâmetro de ordem são mais evidentes, ao passo que, sob a aplicação de campos magnéticos, os efeitos de flutuação na fase do parâmetro de ordem são significativos em temperaturas inferiores à T_C , como será discutido posteriormente.

2.1.1 – Flutuações na condutividade elétrica em $T > T_C$

Um estudo teórico pioneiro sobre o efeito das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica nas proximidades da transição supercondutora foi apresentado³⁸ por Azlamazov-Larkin em 1968. Estes autores demonstraram que o efeito provocado pelas flutuações termodinâmicas é dependente da dimensionalidade do sistema.

Muitas são as contribuições teóricas para descrever as manifestações das flutuações na condutividade (paracondutividade). Dentre estas destacam-se as teorias de Aslamazov-Larkin (AL)³⁸, de Maki-Thompson (MT)³⁹ e o modelo de Lawrence-Doniach (LD)⁴⁰.

A Contribuição de Aslamazov-Larkin

Este modelo considera a presença de pares de Cooper fora do equilíbrio em temperaturas pouco acima da transição supercondutora³⁹. A presença destes pares metaestáveis acarreta a existência de um novo canal de transferência de carga não-dissipativo. O cálculo desta contribuição é feito com base na teoria BCS tratada na aproximação de campo médio. Porém, uma derivação a partir da teoria GL dependente do tempo é também possível.

A contribuição AL para o excesso de condutividade $\Delta\sigma$ (ou paracondutividade, definida como $\Delta\sigma = \sigma - \sigma_R$, onde σ é a condutividade total e σ_R é a contribuição regular, que não é divergente) depende da dimensionalidade do sistema. Em particular, os expoentes críticos são dados por $\lambda = 2 - \frac{d}{2}$, onde d é a dimensionalidade. As previsões para o excesso de condutividade $\Delta\sigma$ são:

$$\Delta\sigma_{AL} = \frac{e^2}{32\hbar\xi(0)} \varepsilon^{-\frac{1}{2}} \quad (3D), \quad (2.1)$$

$$\Delta\sigma_{AL} = \frac{e^2}{16\hbar s} \varepsilon^{-1} \quad (2D), \quad (2.2)$$

$$\Delta\sigma_{AL} = \frac{\pi}{16} \frac{e^2 \xi(0)}{\hbar a} \varepsilon^{-\frac{3}{2}} \quad (1D), \quad (2.3)$$

onde $\xi(0)$ é o comprimento de coerência extrapolado à temperatura nula, $\varepsilon = \frac{T - T_C}{T_C}$ é a temperatura reduzida, s é a espessura do filme no caso 2D e a é a área da seção transversal de uma amostra filamentar.

A contribuição de Maki-Thompson

Esta contribuição se deve ao espalhamento elástico e coerente que acontece com elétrons que compõem os pares de Cooper. Esta contribuição é bastante sensível a processos que podem alterar a função de onda eletrônica. Desse modo, o tempo de vida das quasipartículas correlacionadas é extremamente curto, sendo limitado por processos tais como o espalhamento elétron-fónon, o espalhamento por impurezas magnéticas e pela aplicação de campos eletromagnéticos. Este último é responsável pela quebra de simetria por reversão temporal, resultando no desapareamento. A contribuição de MT é pequena se comparada à de AL no caso dos cupratos de alta temperatura crítica³⁹.

O modelo de Lawrence-Doniach

Lawrence e Doniach⁴⁰ desenvolveram um modelo levando em consideração a anisotropia planar e as equações de GL, o qual pode ser aplicado a supercondutores nos quais o parâmetro de ordem seja fracamente acoplado em camadas adjacentes mediante tunelamento Josephson. Este modelo pode ser aplicado aos supercondutores de alta temperatura crítica e a expressão para o excesso de condutividade é dada por

$$\Delta\sigma_{LD} = \frac{e^2}{16\hbar \left(\frac{T}{T_C} - 1\right)} \left\{ 1 + \left(\frac{2\xi_c(T)}{s} \right)^2 \right\}^{-\frac{1}{2}}, \quad (2.4)$$

onde s é o espaçamento entre as camadas e $\xi_C(T)$ é o comprimento de coerência na direção perpendicular às camadas.

A equação (2.4) expressa um *crossover* de um regime bidimensional para um comportamento 3D que ocorre quando a temperatura se aproxima de T_C . Se o espaçamento entre os planos supercondutores for maior que o comprimento de coerência na direção perpendicular à estes, os mesmos estarão desacoplados e teremos um regime 2D, sendo que a equação (2.4) recai na equação (2.2). Por outro lado, se $\xi_C(T) > s$, os planos estarão acoplados e teremos um regime tridimensional, com a equação (2.4) recaindo na equação (2.1).

Flutuações Críticas

O critério de Ginzburg delimita a validade da teoria GL, de modo que, numa região de temperaturas próximas a T_C a termodinâmica do supercondutor não pode mais ser descrita em termos da teoria de campo médio, que é válida somente na região dominada pelas flutuações Gaussianas. Primeiramente, a temperatura onde ocorre a transição é distinta daquela prevista pela teoria de Ginzburg-Landau. Ademais, as propriedades críticas divergem com expoentes diferentes dos expoentes Gaussianos, os quais dependem exclusivamente da dimensionalidade do sistema. Nas proximidades da transição, as flutuações tendem a interagir tornando-se correlacionadas. O alcance destas correlações torna-se infinito em $T = T_C$. Esta região é chamada de genuinamente crítica e o estudo dos efeitos de flutuações na condutividade deve ser feito com base nas teorias de scaling estático e dinâmico⁴¹, que governam a fenomenologia nas proximidades da transição para o estado supercondutor.

Na região genuinamente crítica, espera-se que ocorra uma divergência no excesso de condutividade em T_C segundo a expressão:

$$\Delta\sigma = A\varepsilon^{-\lambda} = A\varepsilon^{-\nu(2+z-d-\eta)} \quad , \quad (2.5)$$

onde A é uma amplitude, ν é o expoente crítico para o comprimento de coerência, z é o expoente crítico dinâmico, d é a dimensionalidade e η é o expoente crítico da função de correlação para o parâmetro de ordem.

As propriedades supercondutoras dentro da região crítica são análogas às do modelo 3D-XY, considerando-se um parâmetro de ordem complexo com 2 componentes. Dentro deste modelo, ν assume o valor aproximado de 0.67. De acordo com o trabalho de Lobb⁴², existem dois regimes para a condutividade dentro da região crítica, um estático e outro dinâmico. Independentemente de qual regime seja, o expoente ν assume o mesmo valor,

enquanto que o expoente z assume valores diferentes. No regime crítico dito estático teremos $z = 2$, conservando o valor da teoria de campo médio. Supondo-se que $\eta \approx 0$, obtemos $\lambda = 0.67$. Aproximando-se ainda mais de T_C , teremos um crossover para um regime crítico dito dinâmico, no qual $z = 3/2$, resultando em $\lambda = 0.33$ para o expoente da condutividade em sistemas 3D.

Sistemas Inomogêneos

O modelo AL foi desenvolvido para supercondutores homogêneos. Para estender estes resultados para materiais inomogêneos, Char e Kapitulnik⁴³ aplicaram o modelo de percolação à teoria AL. Acima de T_C , o supercondutor é considerado homogêneo, com dimensionalidade d , quando a escala de comprimento L das regiões homogêneas for maior que o comprimento de correlação do problema de percolação ξ_p .

Por outro lado, se o comprimento de correlação de percolação ξ_p for maior que L , deve-se considerar o material inomogêneo como um fractal aleatório com dimensão espectral \tilde{d} . Neste caso, a contribuição direta às flutuações da condutividade do tipo AL depende da temperatura reduzida como

$$\Delta\sigma_{CK} \approx \varepsilon^{-\tilde{\lambda}} \quad , \quad (2.6)$$

onde

$$\tilde{\lambda} = 2 - \frac{\tilde{d}}{2} \quad . \quad (2.7)$$

Este resultado é geral para qualquer fractal. No caso de um agregado de percolação, $\tilde{d} \approx 4/3$ para todas as dimensionalidades. Nesta situação, espera-se que $\tilde{\lambda} \approx 1.33$.

Em sistemas fortemente desordenados, nas imediações de T_C o comprimento de coerência diverge, eventualmente tornando-se maior que o comprimento de correlação típico da estrutura de desordem. Neste limite, o sistema torna-se efetivamente homogêneo, fazendo com que o espaço relevante às flutuações adquira uma dimensionalidade inteira. Assim, espera-se que regimes Gaussianos em temperaturas afastadas de T_C sejam afetados pela desordem. Porém, nas vizinhanças imediatas da temperatura crítica um crossover para um comportamento homogêneo pode ocorrer.

Se a fractalidade do espaço de flutuações também for relevante na região crítica, o expoente obtido através da relação (2.5) passa a ser descrito como

$$\lambda \cong \frac{4}{3}(z - 1) \quad (2.8)$$

para sistemas 3D. Na relação acima foi feita a suposição que $\nu = 4/3$, como no caso do problema de percolação⁴⁴ e $\eta \approx 0$. Como a desordem tende a aumentar os tempos de relaxação em comparação com a dinâmica de campo médio do caso ordenado, devemos esperar $z > 2$.

2.1.2 – Flutuações em $T < T_C$ - Sistemas supercondutores granulares

Conforme foi apresentado anteriormente na seção 2.1.1, a transição resistiva da fase normal para o estado supercondutor nos materiais granulares pode ser descrita como um processo de duas etapas. Este fenômeno é entendido supondo-se que o pareamento estabiliza o estado supercondutor em regiões mesoscópicas da amostra (grãos) em T_C . Em temperaturas inferiores ocorre um processo do tipo percolação que ativa ligações fracas entre os grãos supercondutores, conduzindo o sistema a um estado com coerência de fase de longo alcance e resistência nula. Muitos autores consideram que este processo corresponde a uma transição de fase termodinâmica, cuja temperatura crítica T_{C0} é inferior a T_C e é praticamente coincidente com a temperatura que denota o estabelecimento de estado de resistência nula⁴⁵. A ativação das junções fracas entre os grãos depende fortemente da temperatura, da corrente elétrica de medida e do campo magnético externo. As junções podem ser do tipo Josephson ou por efeito de proximidade. Na região entre T_C e T_{C0} , dominam as flutuações na fase do parâmetro de ordem. Assim, desordens a nível mesoscópico e macroscópico passam a ser relevantes.

Devido à presença de ligações fracas, que se distribuem de modo aleatório tanto espacialmente quanto nas energias de acoplamento, o supercondutor passa a mostrar propriedades típicas de sistemas desordenados, tais como o comportamento irreversível na magnetização e a presença de fenomenologia crítica em medidas de magnetotransporte em baixos campos aplicados. Efeitos como a localização de Anderson, percolação, granularidade e outros se tornam relevantes para descrever a fenomenologia dos supercondutores fortemente desordenados.

A fenomenologia referida acima é descrita em termos de um modelo de transição *paracoerente-coerente* ou de *coerência*, proposto para supercondutores granulares⁴⁶, no qual

as fases do parâmetro de ordem de GL de cada grão adquirem ordem de longo alcance em $T = T_{CO}$. A figura 2.1 ilustra os estados paracoerente e coerente na ausência de campo magnético. A identificação de ambos os estados é feita através da transição resistiva, tal como é mostrado na figura 2.2. É importante observar que a região dominada pelas flutuações na fase do parâmetro de ordem (correspondente à região paracoerente indicada na figura) ocorre em temperaturas inferiores à temperatura crítica de pareamento, T_C .

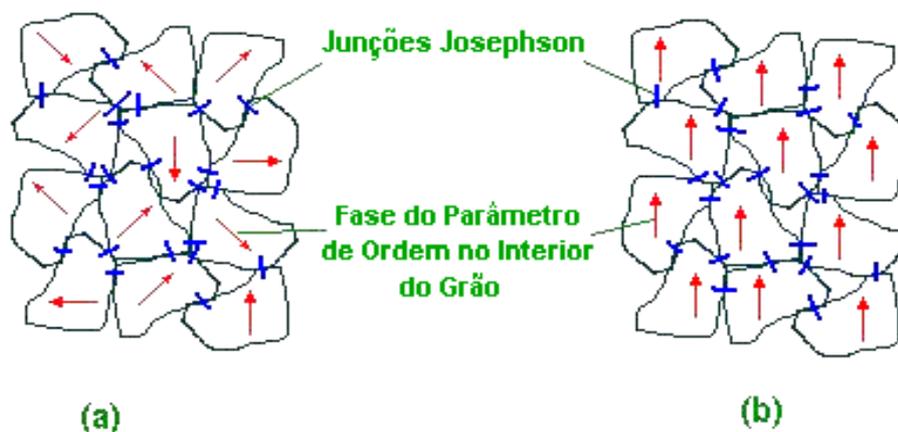


Figura 2.1 – (a) Estado Paracoerente, onde as fases do parâmetro de ordem GL flutuam livremente. (b) Estado Coerente, com ordem de longo alcance na fase do parâmetro de ordem e resistividade nula. O esquema representa o ordenamento na ausência de campo magnético. Supõe-se também que ocorram apenas energias de Josephson positivas.

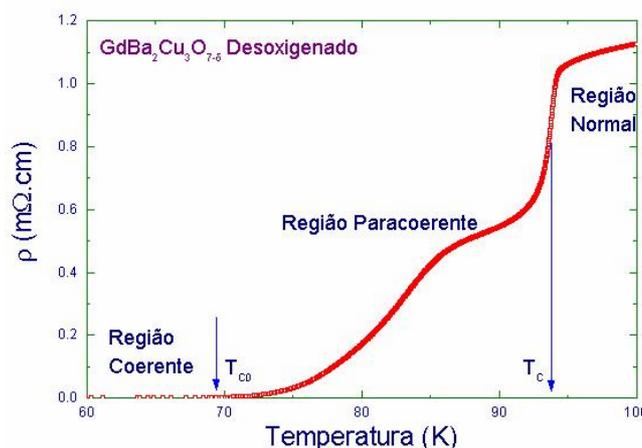


Figura 2.2 – Regiões Normal, Paracoerente e Coerente na transição resistiva.

A transição de coerência não é facilmente observada em propriedades de equilíbrio como o calor específico e a magnetização, embora se acredite que este processo corresponda

a uma legítima transição de fase. Há evidências da transição de coerência em experimentos de calor específico⁴⁵ numa amostra de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, enquanto que nas experiências de magnetização a observação da transição de coerência é, em geral, mascarada pelos efeitos de irreversibilidade magnética entre as curvas ZFC e FC, uma vez que ela ocorre em temperaturas abaixo da linha de irreversibilidades. Além disso, a transição de coerência é fortemente afetada pela presença de um campo magnético. Campos fracos ressaltam os efeitos de flutuações acima de T_{C0} . Porém, na medida que a intensidade do campo aumenta, muitos vórtices de Abrikosov são estabilizados dentro dos grãos e os efeitos de dinâmica de fluxo passam a dominar as propriedades de transporte.

Um sistema supercondutor granular clássico corresponde àquele em que os grãos têm tamanho típico muito maior que o comprimento de coerência intrínseco do condensado supercondutor. Nas amostras policristalinas de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, em que o diâmetro dos grãos metalúrgicos (1-10 μm) é muito maior do que o comprimento de coerência intrínseco, tem-se uma situação típica onde se deve observar os efeitos da granularidade. É importante ressaltar que a anisotropia intrínseca das propriedades eletrônicas do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ tem uma importância secundária na transição de coerência, já que no intervalo de temperaturas correspondente à esta transição a supercondutividade ao longo das três dimensões espaciais encontra-se totalmente estabilizada no interior dos grãos.

Pode-se imaginar um sistema supercondutor granular como sendo formado por um conjunto de N grãos acoplados entre si de maneira aleatória. Como já mencionado, as junções entre esses grãos podem ser do tipo Josephson (supercondutor-isolante-supercondutor) ou por efeito de proximidade (supercondutor-normal-supercondutor).

O Hamiltoniano modelo proposto para descrever esses sistemas é dado por uma generalização da energia de tunelamento de pares⁴⁷, e é expresso como

$$H = -\sum_{i,j} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij}) \quad , \quad (2.9)$$

onde J_{ij} é a energia de acoplamento entre os grãos vizinhos i e j , θ_i e θ_j são as fases do parâmetro de ordem dos grãos i e j e o termo A_{ij} é dado por

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\phi_0} \int_i^j \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad , \quad (2.10)$$

onde \vec{A} é o potencial vetor e a integral de linha é avaliada do centro do grão i até o centro do grão vizinho j .

O modelo representado pelo Hamiltoniano de tunelamento de pares pertence à classe de universalidade 3D-XY no caso desordenado. O arranjo granular do sistema é claramente tridimensional, ao passo que as fases (relacionadas com o fator exponencial do parâmetro de ordem superconductor) comportam-se como spins bidimensionais. Isto é consistente com a ocorrência de uma transição de fase de segunda ordem paracoerente-coerente na temperatura crítica T_{C0} . O Hamiltoniano (2.9) para um superconductor granular de alta temperatura crítica é análogo àquele que descreve o comportamento de um sistema desordenado de spins planares.

O fator A_{ij} pode introduzir frustração no modelo⁴⁷. Como estes termos variam aleatoriamente entre 0 a 2π , em geral, num anel fechado de grãos, não é possível que se encontre uma configuração que minimize simultaneamente as energias de acoplamento entre todos os pares de grãos. Logo, trata-se de uma frustração induzida pelo campo. Contudo, quando supõe-se a existência de junções do tipo π , inerentes a supercondutores com simetria de pareamento do tipo onda-d, e para os quais os acoplamentos J_{ij} são negativos, pode-se introduzir frustração em anéis com número ímpar de grãos⁴⁸ mesmo na ausência de campo magnético aplicado. A introdução de frustração via a distribuição aleatória dos acoplamentos J_{ij} é ainda mais provável quando houver a coexistência de junções normais e junções do tipo π . No caso em que a frustração é causada pela distribuição aleatória dos acoplamentos J_{ij} , a descrição do problema é análoga à do vidro-de-spin XY na ausência de campo aplicado.

Na presença de campos magnéticos externos, o fator de frustração A_{ij} também contribui para produzir no sistema um estado do tipo vidro-de-spin. Genericamente, o Hamiltoniano (2.9) caracteriza um sistema chamado de “vidro superconductor” ou “vidro-de-fases”. Quando a aleatoriedade é introduzida pelos fatores A_{ij} , a versão do modelo é denominada de “gauge-glass”. No caso em que a desordem e a frustração são introduzidos pelos fatores J_{ij} , denomina-se a versão do modelo de “chiral glass”. Possivelmente, numa situação real, tanto a desordem nos acoplamentos J_{ij} quanto nos fatores de calibre A_{ij} são responsáveis pela frustração.

O modelo expresso pelo Hamiltoniano (2.9) supõe implicitamente que o comprimento de penetração é igual ou maior que o tamanho dos grãos. Pode-se, no entanto, reformular o modelo e introduzir um termo de blindagem. Ademais, nos cálculos teóricos usualmente considera-se que os fatores J_{ij} são constantes e diferentes de zero apenas para os primeiros vizinhos. Numa aproximação mais realística deve-se considerar a aleatoriedade na distribuição dos J_{ij} e sua dependência com a temperatura e com o campo magnético aplicado.

2.1.3 – Frustração e chiralidade

Dada a variedade de propriedades macroscópicas dos supercondutores, o número e a natureza das fases termodinâmicas possíveis adquire central importância. Muitos estudos foram realizados nos supercondutores de alta temperatura crítica na presença de campos magnéticos aplicados⁴⁹. Para amostras suficientemente desordenadas, uma verdadeira fase termodinâmica com resistividade nula é prevista pelo modelo de vidro-de-vórtices. Contudo, simulações mostram que efeitos de blindagem eventualmente desestabilizam esta fase⁵⁰. Em campo nulo, a única fase reconhecida para supercondutores “limpos” ou mesmo desordenados é a fase Meissner. Outra possibilidade, que tem sido objeto de intensos estudos teóricos em sistemas granulares é a chamada fase de vidro chiral, que foi apresentada na seção anterior.

Os supercondutores de alta temperatura têm simetria de pareamento anisotrópica, provavelmente do tipo onda-d. Naturalmente, espera-se que esta anisotropia leve à novas propriedades termodinâmicas que não são verificadas em supercondutores do tipo onda-s, possibilitando o surgimento de novas fases termodinâmicas.

Os supercondutores de alta temperatura crítica granulares ou cerâmicos podem ser considerados como uma rede de junções de Josephson conectadas. Uma possibilidade sugerida para interpretar algumas manifestações experimentais, como o efeito Meissner paramagnético, é a existência de junções π , caracterizadas pelo acoplamento de Josephson negativo ($J < 0$). Quando ocorre o tunelamento dos superelétrons através destas junções, a fase do parâmetro de ordem supercondutor muda por um fator π . Como discutimos, uma consequência importante da presença destas junções é o surgimento de frustração, mesmo em campo magnético externo nulo⁵¹.

A frustração em um sistema de spins vetoriais frequentemente leva ao ordenamento não-colinear ou não-coplanar entre os spins, o qual pode ser caracterizado pelos chamados graus de liberdade chirais. A chiralidade é um conceito familiar na química molecular, porém, a idéia de chiralidade em materiais magnéticos somente foi proposta por Villain⁵² em 1977.

A maneira mais simples de se introduzir o conceito de chiralidade⁵² é através do modelo XY, definido pelo Hamiltoniano

$$H = -\sum_{ij} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -\sum_{ij} J_{ij} \cos(\phi_i - \phi_j) \quad , \quad (2.11)$$

onde $\vec{S}_i = (\cos \phi_i, \sin \phi_i)$ é o vetor unitário de spin. O modelo dado pela equação acima não leva em consideração o campo externo e os efeitos de blindagem.

Para um melhor entendimento do conceito de chiralidade, consideramos uma rede triangular 2D e assumimos que a interação entre os spins é uniforme e antiferromagnética ($J_{ij} = J < 0$), conforme a ilustração da figura 2.3. O estado fundamental é dito “canted” e frustrado, pois não é possível a minimização simultânea da energia de todos os pares de spins (parte A). Dessa forma, o estado fundamental dos três spins localizados nos vértices do arranjo triangular é duplamente degenerado. A energia global do sistema é, então, claramente superior à energia de um sistema não-frustrado (alinhamento ferromagnético). Os ângulos entre os spins vizinhos são 120° e -120° para a parte B e a parte C da figura 2.3, respectivamente. Chama-se de chiralidade o parâmetro τ que caracteriza a degenerescência discreta do estado fundamental, indicando se a rotação dos spins é no sentido horário ou anti-horário ao longo de um ciclo pelo sistema.

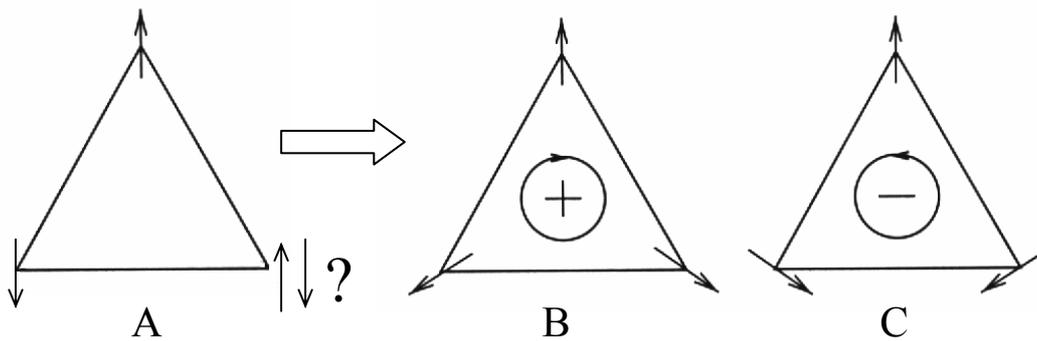


Figura 2.3 – Configuração do estado fundamental de três spins XY antiferromagneticamente acoplados numa rede triangular. A minimização da energia com satisfação de todas as ligações torna-se impossível (parte A). O estado fundamental é duplamente degenerado, com a rotação dos spins podendo ser no sentido horário (parte B: $\tau = 1$) ou no sentido anti-horário (parte C: $\tau = -1$).

A chiralidade τ é definida, para o exemplo da figura 2.3, via a soma sobre os três pares de spins do produto vetorial entre dois spins vizinhos, ou seja:

$$\tau = \frac{2}{3\sqrt{3}} \sum_{ij} [\vec{S}_i \times \vec{S}_j]_z = \frac{2}{3\sqrt{3}} \sum_{ij} \text{sen}(\phi_i - \phi_j) \quad , \quad (2.12)$$

Claramente, $\tau = 1$ para a rotação dos spins no sentido horário (parte B da figura 2.3), enquanto que $\tau = -1$ para uma configuração cujo sentido de rotação dos spins é anti-horário

(parte C da figura 2.3). No caso dos spins XY considerados, a chiralidade é um pseudo-escalar. Para transformar um estado chiral com $\tau = 1$ em um estado com $\tau = -1$ é necessário que se faça uma reflexão global dos spins. Assim, a chiralidade quebra a simetria por reflexão do sistema.

Caso a interação entre os spins fosse ferromagnética, o sistema seria geometricamente não-frustrado (todos os spins vizinhos no estado fundamental seriam paralelos) e $\tau = 0$. Nota-se, assim, que o conceito de chiralidade faz sentido apenas para sistemas frustrados (canted).

Num sistema onde os spins são tridimensionais, a situação é mais complexa. A configuração que os spins adquirem neste caso não é apenas definida pelo sentido de rotação dos spins em um plano, como no caso bidimensional mostrado anteriormente. Agora, deve-se levar em consideração que a rotação do spin pode ocorrer em torno dos três eixos espaciais. Isso leva a um número maior de possibilidades.

Para três spins num sistema 3D (figura 2.4), a chiralidade τ_{ijk} pode ser expressa pelo ângulo sólido formado pelos três spins:

$$\tau_{ijk} = \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \times \vec{S}_k \quad , \quad (2.13)$$

que assume os valores +1 ou -1, supondo que os spins sejam unitários. A chiralidade definida acima é freqüentemente chamada de uma chiralidade escalar. Seu valor é diferente de zero quando os três spins estão numa configuração não-coplanar na representação do espaço de spins, enquanto que o sinal da chiralidade representa o sentido da helicidade do arranjo dos três spins não-coplanares.

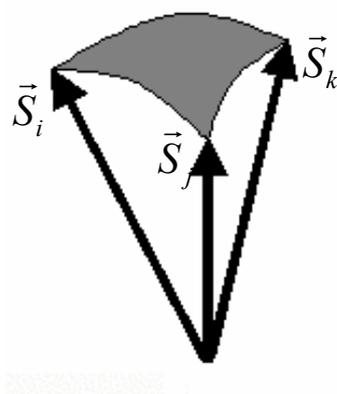


Figura 2.4 – Representação da chiralidade para três spins de um sistema 3D.

2.1.4 – Vidro chiral em supercondutores granulares

O modelo de vidro chiral, que estuda a ocorrência de uma nova fase de equilíbrio termodinâmico para supercondutores granulares em campo nulo, foi proposto por H. Kawamura⁴⁸. Este estado é caracterizado pela quebra de simetria por reversão temporal. O parâmetro de ordem é a própria chiralidade, que representa a direção da corrente nos circuitos de supercorrente através de anéis de grãos. Observa-se que a corrente através de uma junção Josephson depende do seno da diferença de fase entre os eletrodos vizinhos, o que permite associar seu sentido com a chiralidade bidimensional definida na equação (2.12). Os efeitos de frustração, que surgem através da distribuição aleatória de junções σ e π com energia de acoplamento J_{ij} positiva e negativa, respectivamente, são essenciais para a formação e estabilidade desta fase. No estado de vidro chiral, a fase do condensado não é ordenada em grandes distâncias, mesmo que aleatoriamente. O ordenamento ocorre nos loops de supercorrentes, ou seja, nas chiralidades.

O modelo chiral assume que as ligações fracas que conectam os grãos vizinhos estão distribuídas de uma maneira suficientemente densa, de tal forma que o sistema pode ser modelado por uma rede 3D infinita de junções Josephson. Sendo cada plaqueta caracterizada por uma auto-indutância finita. Formalmente, o Hamiltoniano em campo aplicado nulo⁴⁸ é escrito como:

$$H = -\sum_{i,j} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij}) + \frac{1}{2L} \left(\frac{\Phi_0}{2\pi} \right)^2 \sum_p (\nabla \times A)^2, \quad (2.14)$$

onde θ_i é a fase do condensado do grão no i -ésimo sítio de uma rede cúbica simples, A é o potencial vetor flutuante, devido às supercorrentes, Φ_0 é o quantum de fluxo, J_{ij} é a energia de acoplamento entre os grãos i e j e L é a auto-indutância de um loop de supercorrente. A primeira soma é tomada sobre todos os vizinhos mais próximos, enquanto que a segunda soma é tomada sobre todos os loops de supercorrentes da rede. Neste modelo, a frustração é introduzida via distribuição aleatória da energia de acoplamento de Josephson, J_{ij} , o qual é assumida tendo valores J ou $-J$ com igual probabilidade, representando junções σ ou π . Uma vez que o ordenamento intergranular ocorre a uma temperatura consideravelmente inferior à temperatura da transição de pareamento, no modelo de Kawamura assume-se também que J_{ij} é independente da temperatura e do campo magnético.

Os resultados de simulações de Monte Carlo para o modelo descrito pelo Hamiltoniano (2.14) mostram que uma fase de vidro chiral (na qual as chiralidades são

aleatoriamente congeladas) pode ser estabilizada mesmo na presença dos efeitos de blindagem (correntes Meissner) em temperaturas finitas. Esta fase de equilíbrio termodinâmico apresenta quebra de simetria por reversão temporal. Os expoentes críticos associados à transição de vidro chiral são estimados^{48,53} como $\nu_{CG} = 1.3 \pm 0.2$ (expoente crítico para o comprimento de correlação) e $\eta_{CG} = -0.2 \pm 0.2$ (expoente para a função de correlação do parâmetro de ordem). Estes valores são próximos àqueles experimentalmente encontrados nos vidros-de-spin de tipo Ising.

2.1.5 –Linha de irreversibilidades magnéticas em supercondutores

Uma estrutura supercondutora granular e desordenada apresenta propriedades semelhantes àquelas dos vidros-de-spin, nos quais a frustração, aliada à desordem, desempenha papel de central importância. Com a presença do campo magnético, as supercorrentes circulam através de vários grãos, formando anéis de corrente. Devido à estrutura aleatória do sistema, existem muitas configurações para estes anéis de corrente e, conseqüentemente, muitos estados com configurações de corrente energeticamente quase equivalentes, levando o sistema à formação de estruturas frustradas. Estes anéis atuam como centros de pinning e ocasionam os fenômenos de irreversibilidade abaixo de T_C . Diversos modelos ligados à desordem, genericamente denominados de vidro-de-vórtices, são utilizados para explicar este comportamento. A seguir é feita uma sucinta descrição das versões mais estudadas.

Vidro-de-Vórtices

A maioria dos cupratos supercondutores se caracteriza pelo forte caráter inhomogêneo. As inhomogeneidades atuam como centros de “pinning” para as linhas de fluxo magnético, deformando a rede de vórtices e quebrando a ordem translacional de longo alcance da rede 2D dos vórtices.

O modelo de vidro-de-vórtices foi proposto para descrever o crossover reversível-irreversível do estado misto dos supercondutores de alta temperatura crítica incorporando os

efeitos de desordem⁵⁴. O modelo prevê a ocorrência de uma fase vidro-de-vórtices numa região de baixas temperaturas em que a rede de vórtices perde a ordem translacional de longo alcance, ou seja, a rede de vórtices congela em uma rede 2D exibindo apenas ordem de curto alcance. Porém, na fase vidro-de-vórtices, o parâmetro de ordem supercondutor ainda mantém a correlação de longo alcance. A fase vidro-de-vórtices em supercondutores se assemelha à fase vidro-de-spin de sistemas magnéticos. Dessa forma, no estado de vidro-de-vórtices a desordem e a frustração estão relacionadas à distribuição aleatória dos centros de pinning. No limite em que o sistema é desordenado e com características granulares, o estado de vidro-de-vórtices é aproximadamente descrito pelo modelo do vidro supercondutor, que será descrito posteriormente.

O efeito das flutuações termodinâmicas desestabiliza a fase de vidro-de-vórtices. Na região de alta temperatura ocorre uma fase fluida (líquido de vórtices), acima da linha de fusão, B_m (H). Na fase líquido de vórtices o comportamento magnético de B_m (H) (ver diagrama de fases para o modelo de vidro-de-vórtices, ilustrado na figura 2.5) é reversível.

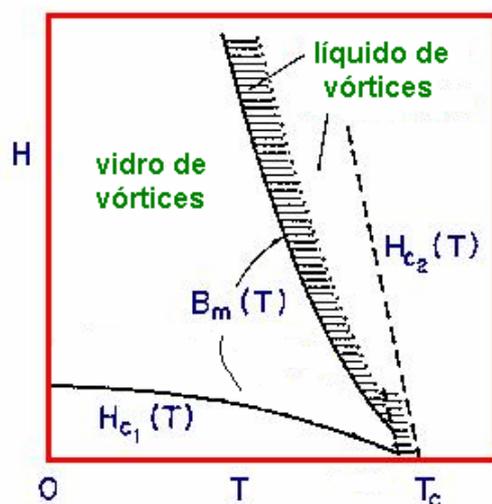


Figura 2.5 – Diagrama de fases de um supercondutor do tipo II segundo o modelo de vidro-de-vórtices que associa a linha de irreversibilidade à linha de fusão $B_m(T)$.

A transição de fase correspondente à fusão da rede de vórtices é descrita em termos de uma transição de segunda ordem. Acima de B_m (H) e abaixo de H_{c2} ocorre a fase denominada de líquido de vórtices e que é magneticamente reversível.

Vidro Supercondutor

O modelo baseia-se no Hamiltoniano da equação 2.9 e foi originalmente estudado por Ebner e Stroud⁴⁷ para a susceptibilidade em “clusters supercondutores”. O modelo supõe que grãos supercondutores são fracamente acoplados via tunelamento Josephson. Como vimos, a frustração é introduzida via distribuição aleatória dos termos A_{ij} . Para os primeiros vizinhos, os autores consideraram que $J_{ij} = J$. Os efeitos de irreversibilidade magnética estão associados a uma transição de fase com quebra de ergodicidade do tipo vidro-de-spin. Acima das temperaturas de irreversibilidade, T_{irr} , o aprisionamento dos vórtices não é efetivo e o sistema se comporta como um líquido de vórtices. Sendo assim, a linha de irreversibilidades representa uma linha de separação entre a fase de vidro supercondutor e a fase desordenada formada por um sistema de grãos desacoplados. Porém, este modelo não descreve totalmente os supercondutores granulares. Caso as energias de acoplamento J_{ij} forem distribuídas aleatoriamente em intensidade, será possível que anéis fechados de corrente envolvendo vários grãos sejam formados antes que o limite termodinâmico seja atingido. Uma vez que estes anéis fechados formam uma estrutura frustrada, as respostas magnéticas metaestáveis podem ocorrer em temperaturas superiores àquelas em que um estado de coerência de longo alcance é estabelecido. Neste caso, a linha de irreversibilidade não coincide com a linha de transição de fase. O modelo originalmente denominado de vidro supercondutor é atualmente chamado de vidro de calibre (gauge-glass), na qual a frustração e a desordem estão relacionados com o fator de calibre A_{ij} da equação 2.9.

Vidro Chiral

Tal como discutido na seção 2.1.4, outra versão possível para a teoria baseada no Hamiltoniano de tunelamento de fases generalizado é o modelo de vidro chiral. Neste caso, a frustração é primariamente introduzida através das energias de acoplamento J_{ij} e o comportamento do tipo vidro-de-spin existe mesmo em campo magnético aplicado nulo. Segundo este modelo, a linha de irreversibilidades tem o mesmo significado que nos vidros-de-spin, ou seja, denota o estabelecimento de um estado de ordenamento chiral. A irreversibilidade magnética resulta do acoplamento entre as ordens chiral e de spin (no caso, as fases dos parâmetros de ordem dos grãos individuais).

2.2 – Os vidros-de-spin e o modelo do vidro Chiral

Os vidros-de-spin têm sido extensivamente estudados ao longo das três últimas décadas como um protótipo de sistema “complexo” cuja fenomenologia é caracterizada pela desordem e frustração. Dentre a grande variedade de sistemas vidros-de-spin, os mais familiares são os chamados “vidros-de-spin canônicos”, originados – como já foi mencionado - pela diluição de um metal de transição magnético 3d em uma matriz de metal nobre. Nestes materiais, a interação RKKY mediada pelos elétrons de condução via o acoplamento de troca s-d é responsável pela interação entre os momentos localizados. A natureza oscilatória da interação RKKY, combinada com a disposição espacial aleatória dos momentos localizados levam à desordem e à frustração no sistema. Uma vez que a interação RKKY é isotrópica no espaço dos spins, os vidros-de-spin canônicos são considerados isotrópicos. Assim, espera-se que estes materiais sejam descritos pelo modelo de Heisenberg tridimensional. A fraca anisotropia magnética local e aleatória é devida à existência de uma interação do tipo Dzyaloshinski-Moriya (DM) causada pelo efeito combinado entre o acoplamento s-d e a interação spin-órbita. A anisotropia DM deve-se à soma de termos spin-spin na forma $D_{ij} \cdot (S_i \times S_j)$, onde D_{ij} representa a interação spin-órbita. O caráter aproximadamente isotrópico da interação magnética nos vidros-de-spin canônicos contrasta com diversas aproximações teóricas que têm sido baseadas no modelo de Ising, que se aplica no limite extremamente anisotrópico⁵⁵. Contudo, diversas observações experimentais estão em melhor acordo com as previsões baseadas no modelo de Ising do que com o modelo de Heisenberg. Este aparente paradoxo é uma das questões que ainda não está inteiramente resolvida no problema dos vidros-de-spin metálicos.

2.2.1 – Ordenamento Chiral

Experimentalmente, é bem conhecido que os vidros-de-spin exibem uma transição de fase de equilíbrio para uma fase termodinâmica de baixas temperaturas que mostra os efeitos metaestáveis devido à desordem e frustração. Contudo, a verdadeira natureza desta transição e do congelamento dos spins na fase ordenada não são completamente conhecidas, apesar dos grandes esforços na busca deste entendimento. Estudos experimentais de fenomenologia crítica^{56,57} são compatíveis com a existência de uma temperatura de ordenamento finita,

enquanto que por um longo tempo, as simulações em sistemas Heisenberg em 3 dimensões indicavam que um tipo de ordenamento de Edwards-Anderson ocorre somente em temperatura nula^{58,59}.

Como tentativa de resolver esta dificuldade, foi proposto a existência de um parâmetro de ordem chiral em adição ao ordenamento de spins do tipo Edwards-Anderson⁵². Muitas investigações numéricas concretas sobre o mecanismo de ordenamento controlado pela chiralidade foram feitas^{60,61,62,63}, postulando-se um cenário para o congelamento nos vidros-de-spin de Heisenberg. O modelo assim proposto é o de um vidro chiral, cuja chiralidade $\tau = \pm 1$ varia aleatoriamente com a posição no interior do material. Outras simulações mostram evidências de que ambas as contribuições de ordenamento de vidro chiral e de spin ocorrem na mesma temperatura finita^{64,65}. Sugere-se que estas contribuições estão ligadas entre si através dos termos de anisotropia Dyzaloshinski-Moriya, sendo a chiralidade o ingrediente primário no ordenamento dos vidros-de-spin.

Conforme apresentado na seção 2.1.3, a frustração em um sistema de spins vetorial leva a um ordenamento não-colinear ou “canted” dos spins, onde a frustração, que induz a uma estrutura não-colinear dos spins, é conhecida por produzir a degenerescência discreta, chamada de chiralidade. Assim, nos sistemas de spins vetoriais aleatoriamente frustrados, a chiralidade não pode ser ignorada. A idéia central introduzida por Kawamura e colegas⁶⁰ é a de admitir, além da presença da chiralidade, a existência de um genuíno estado de ordenamento chiral, estabilizado por uma transição de fase termodinâmica.

O modelo é descrito em termos do modelo de Heisenberg clássico, definido pelo Hamiltoniano

$$H = - \sum_{i,j} J_{ij} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \quad , \quad (2.15)$$

onde $\vec{S}_i = (S_i^x, S_i^y, S_i^z)$ é um vetor unitário com três componentes e a soma é feita sobre todos os vizinhos mais próximos. As interações J_{ij} são variáveis Gaussianas aleatórias com média nula e variância J . A chiralidade local τ_{ijk} é definida, como já foi dito, pelo produto triplo de três spins vizinhos através da equação 2.13.

A chiralidade escalar definida pela equação 2.13 é invariante frente às rotações do spin mas muda seu sinal sob a reflexão global dos spins (ou inversão, a qual pode ser vista como uma combinação de reflexão e rotação). A ordem chiral pode ser entendida como uma manifestação da quebra da simetria de reflexão, tal como discutido na seção 2.1.3.

No modelo chiral, é assumido que um vidro-de-spin Heisenberg 3D exibe uma transição para um estado de vidro chiral em uma temperatura finita sem que necessariamente ocorra o convencional ordenamento de vidro-de-spin. Como foi visto, a chiralidade é uma variável multispin do tipo Ising (assume valor +1 ou -1) que representa a helicidade local das estruturas de três spins não-coplanares induzidas pela frustração. Neste cenário, as propriedades de um sistema totalmente isotrópico são determinadas pela transição chiral e pelo estado ordenado de vidro chiral, no qual a chiralidade exibe um ordenamento de longo alcance, conservando a resposta paramagnética do sistema de spins (desacoplamento spin-chiralidade). Contudo, em um caso real, a fraca anisotropia local e anisotrópica inerente aos sistemas vidros-de-spin faz com que a chiralidade e a ordem de spins nunca estejam totalmente desacoplados. Assim, um teste experimental do cenário chiral nas proximidades da transição magnética (como a susceptibilidade, por exemplo) tem sido impossível. Dessa forma, as evidências do estado de ordenamento chiral permanecem indiretas e são baseadas principalmente na criticalidade do tipo Ising observada na transição de vidro-de-spin.

Recentemente, Tataru e Kawamura⁶⁶ propuseram que o efeito Hall anômalo poderia levar a um teste direto para a existência do ordenamento chiral nos vidros-de-spin metálicos.

2.2.2 – Efeito Hall anômalo

O efeito Hall é observado quando um material condutor transportando corrente sofre a ação de um campo magnético aplicado perpendicularmente ao plano do condutor. Os portadores de corrente são defletidos pelo campo em razão da força de Lorentz, sendo forçados a percorrer trajetórias curvas e causando um acúmulo de cargas elétricas nas extremidades do material. Conseqüentemente, é induzido um campo elétrico transversal, chamado de campo Hall, que é perpendicular à corrente e ao campo magnético (ver figura 2.6), cuja expressão é dada por⁶⁷:

$$E_{Hall} = \rho_L j = R_0 j B \quad , \quad (2.16)$$

onde ρ_L é a resistividade Hall de Lorentz, j é a densidade de corrente, $B = \mu_0 H$ na ausência de campo magnético e $R_0 = -\frac{1}{ne}$ é chamado de coeficiente Hall de Lorentz, ou ordinário (n é a densidade de portadores e e é a magnitude da carga elétrica).

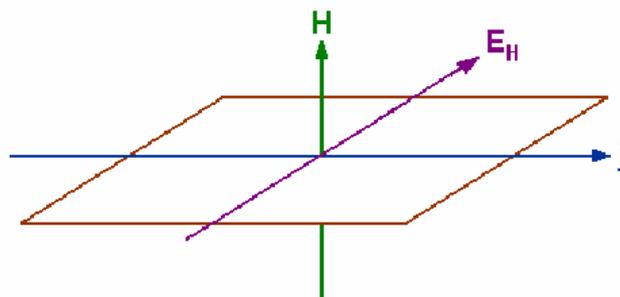


Fig. 2.6 – Campo elétrico Hall E_H originado pela aplicação de um campo magnético H perpendicular ao sentido da corrente j que percorre a amostra.

A partir da equação 2.16, definimos a relação para a resistividade Hall de Lorentz:

$$\rho_L = R_0 \mu_0 H \quad . \quad (2.17)$$

O coeficiente R_0 é inversamente proporcional à densidade de portadores de carga. Isso torna sua determinação experimental importante. O seu sinal depende dos portadores de carga e indica se a condução é feita por elétrons ($R_0 < 0$) ou por lacunas ($R_0 > 0$).

Consideramos agora uma placa metálica contendo átomos com momento magnético. Supomos que a magnetização seja normal à placa. Se passarmos uma corrente elétrica através da placa, os elétrons serão espalhados por estes átomos e, devido à seu momento magnético, este espalhamento será assimétrico. Esta assimetria no espalhamento produz um campo elétrico perpendicular à corrente e à magnetização, denominado de campo Hall anômalo⁶⁸, o qual se adiciona ao efeito Hall de Lorentz. Esta componente anômala do efeito Hall é originada pelo acoplamento spin-órbita durante o espalhamento dos elétrons. A figura 2.7 ilustra o efeito Hall normal (ou de Lorentz) e o efeito Hall anômalo, também chamado de efeito Hall extraordinário. Formalmente, o efeito Hall anômalo tem o mesmo sinal do efeito Hall ordinário.

O campo de Hall anômalo é proporcional à corrente j e à magnetização M , na forma⁶⁷:

$$E_S = \rho_S j = R_S \mu_0 M j \quad , \quad (2.18)$$

onde ρ_S é a resistividade Hall anômala e R_S é o coeficiente Hall anômalo. A relação entre estas duas quantidades é dada como $\rho_S = R_S \mu_0 M$.

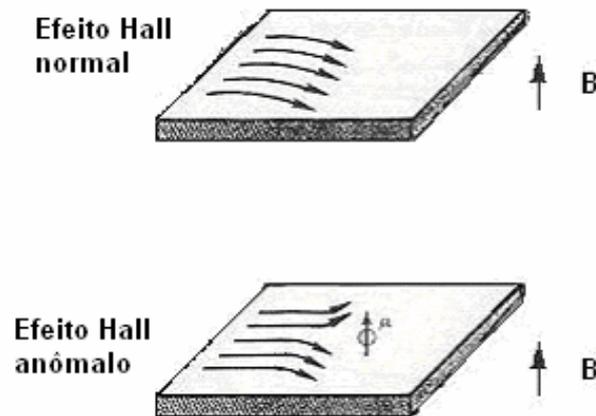


Figura 2.7 – Origem do efeito Hall anômalo: na figura inferior particulariza-se um átomo magnético que causa, na presença de um campo magnético externo, um espalhamento assimétrico dos portadores de corrente.

Um evento de espalhamento elástico por um íon magnético é assimétrico com relação ao plano contendo o momento do íon e a velocidade do elétron em movimento. O campo magnético externo alinha os momentos magnéticos microscópicos através da amostra de tal maneira que os eventos de espalhamento assimétricos individuais se combinam aditivamente originando um efeito macroscópico. Inevitavelmente, contudo, a presença do campo magnético produz uma componente Hall ordinária a partir da força de Lorentz. Dessa forma, a componente devida ao efeito anômalo é dominante somente em baixos campos aplicados⁶⁹.

Levando-se em consideração ambas as contribuições ao efeito Hall, uma amostra com magnetização M na presença de um campo magnético aplicado H apresenta uma resistividade Hall total definida como

$$\rho_h = R_0 \mu_0 H + R_S \mu_0 M \quad . \quad (2.19)$$

Assim escrita, a resistividade Hall total tem um termo devido ao campo magnético aplicado e um termo suplementar devido à magnetização. O termo suplementar contém, implicitamente, o termo de Lorentz dependente de M . O coeficiente Hall de Lorentz R_0 é praticamente independente da temperatura.

A idéia de componente anômala do efeito Hall foi aplicada aos vidros-de-spin formados pela diluição de impurezas magnéticas em um metal nobre⁷⁰. Nestes compostos, o acoplamento spin-órbita exerce uma importante influência no movimento dos elétrons.

A contribuição anômala ao efeito Hall pode ser originada a partir de duas componentes. A componente devida à contribuição denominada de “skew scattering” em vidros-de-spin diluídos é resultado da interação direta entre os spins dos elétrons de condução com os momentos orbitais das impurezas magnéticas. Esta componente é diretamente proporcional à concentração do íon magnético e é dominante em sistemas fortemente diluídos. A componente⁷¹ denominada de “side jump” para o efeito Hall anômalo é um termo não clássico produzido por um deslocamento lateral do centro de massa do pacote de onda do elétron em razão da interação com a impureza magnética. Esta componente é proporcional ao quadrado da resistividade longitudinal, ρ .

Numa liga diluída, ρ é aproximadamente proporcional à concentração de impurezas. Então, a contribuição à condutividade Hall anômala relacionada aos efeitos da interação spin-órbita pode ser calculada como

$$\rho_s \cong -\lambda M(A\rho + B\rho^2) \quad , \quad (2.20)$$

onde A e B são constantes independentes positivas e λ é a constante de acoplamento spin-órbita. Os termos na equação acima representam as contribuições “skew scattering” e “side jump”, respectivamente.

Kawamura e seus colaboradores⁶⁶ propuseram que, além dos mecanismos convencionais devidos à interação spin-órbita, o mecanismo chiral deve ser adicionado ao efeito Hall de vidros-de-spin. Os autores mostram que a contribuição chiral é independente da contribuição convencional. As chiralidades produzem campos locais, que por sua vez produzem uma contribuição adicional ao efeito Hall anômalo. Como a susceptibilidade chiral acopla-se ao campo aplicado, na presença deste os campos locais produzidos pelas chiralidades não se anulam. A teoria é aplicável no caso em que os elétrons de condução são fracamente acoplados aos spins locais.

Assim, segundo os autores, a resistividade Hall anômala de vidros-de-spin é dada por⁷²

$$\rho_s \cong -\lambda M(A\rho + B\rho^2) + CJ^3\tau = -M(\tilde{A}\rho + \tilde{B}\rho^2) + \tilde{C}\tau \quad (2.21)$$

onde ρ é a resistividade longitudinal, \tilde{C} é uma constante cujo sinal pode ser negativo ou positivo, J é a interação de troca s-d e τ é a chiralidade total do sistema.

Uma vez que os spins de Heisenberg são congelados de uma maneira espacialmente aleatória no estado vidro-de-spin, o sinal da chiralidade local é aleatório, o que leva a uma chiralidade total nula em uma amostra bulk. Contudo, na presença de campo, a chiralidade

total acopla-se com a magnetização resultante. Neste caso, segundo Kawamura⁷², a chiralidade total pode ser escrita como:

$$\tau = -X_\tau(DM) - X_\tau^{nl}(DM)^3, \quad (2.22)$$

onde X_τ e X_τ^{nl} são, respectivamente, as susceptibilidades linear e não-linear de origem chiral e D é uma constante.

Substituindo-se (2.22) em (2.21), obtemos que o termo dependente da chiralidade pode ser escrito como:

$$\rho_h^{chiral} = -\tilde{C}DM[X_\tau + X_\tau^{nl}(DM)^2 + \dots] \quad (2.23)$$

O coeficiente Hall anômalo, R_S , definido como $R_S = \rho_S / \mu_0 M$, é então dado por⁷²

$$R_S = -\tilde{A}\rho - \tilde{B}\rho^2 - \tilde{C}D[X_\tau + X_\tau^{nl}(DM)^2 + \dots], \quad (2.24)$$

onde \tilde{A} , \tilde{B} e \tilde{C} são constantes.

Pode-se observar imediatamente da equação acima que o coeficiente Hall anômalo R_S contém informações sobre a componente linear e não-linear da susceptibilidade chiral. Em particular, no regime linear em que a magnetização é suficientemente pequena e a resistividade Hall é proporcional a M , a contribuição chiral para R_S é proporcional à susceptibilidade chiral linear X_τ .

O coeficiente Hall anômalo dos vidros-de-spin pode ser dominado pelo comportamento singular da susceptibilidade chiral, uma vez que o primeiro e o segundo termos da equação (2.24) podem ser vistos como um background regular devido ao comportamento não-singular de ρ . De fato, como já foi dito, a resistividade longitudinal dos vidros-de-spin não apresenta qualquer anomalia na temperatura de congelamento.

Dessa forma, pode-se fazer as seguintes previsões: (i) A parte linear de R_S deve exibir uma anomalia do tipo cúspide em $T = T_g$, possivelmente acompanhada da separação entre as curvas FC e ZFC, pois esta contribuição está relacionada a X_τ , que apresenta anomalia nesta temperatura; (ii) A parte não-linear de R_S , o qual pode ser extraída da dependência de R_S com relação à M no regime não-linear, exibe uma divergência em $T = T_g$ caracterizado pelo expoente⁷² $\gamma_\tau \sim 2$. Lembramos que, nos vidros-de-spin, é a contribuição não-linear à susceptibilidade que diverge em $T = T_g$ ⁵⁵.

3. Procedimentos Experimentais

Este capítulo tem como objetivo a discussão de todos os aspectos relacionados com o desenvolvimento experimental deste trabalho. Primeiramente, será feita uma descrição dos métodos utilizados nas preparações das amostras policristalinas do supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ e dos sistemas magnéticos $\underline{\text{AuFe}}$ x at% e $\underline{\text{AuMn}}$ x at%. A seguir, serão apresentadas detalhadamente as técnicas e os equipamentos empregados no estudo das propriedades de transporte eletrônico e magnetização destas amostras, bem como de todos os procedimentos adotados para a obtenção dos resultados.

3.1 – Produção de Amostras

3.1.1 – Amostras policristalinas de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

As amostras granulares de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ foram confeccionadas através do processo de reação em estado sólido entre os compostos precursores óxido de ítrio (Y_2O_3), carbonato de bário (BaCO_3) e monoóxido de cobre (CuO). Antes, foi efetuada uma secagem destes compostos com o objetivo de eliminar-se eventual umidade. Estes pós, cuja pureza mínima é de 99,9 %, foram secados por duas horas a uma temperatura de 200 °C.

Após o resfriamento à temperatura ambiente, os pós foram pesados com a precisão de centésimos de mg nas proporções estequiométricas adequadas para a preparação de amostras de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ com aproximadamente 500 mg. A seguir, os compostos precursores foram acondicionados em um almofariz de ágata e macerados durante algumas horas até que fosse obtida uma mistura resultante homogênea. Esta mistura foi levada ao forno para calcinação à temperatura de 950 °C por um período de 8 horas. Durante esta etapa, ocorre a eliminação do carbono e o composto $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ é formado. Após o resfriamento, foi feita uma nova moagem e o pó resultante foi prensado em 300 Kgf/cm^2 para preparar a amostra na forma de uma pastilha cilíndrica com diâmetro de 8 mm. Uma vez realizado este procedimento, um

segundo recozimento em $950\text{ }^{\circ}\text{C}$ por 8 horas foi efetuado, seguido novamente por moagem e novo processo de prensagem.

Um terceiro tratamento térmico (sinterização) em $950\text{ }^{\circ}\text{C}$ ao ar foi realizado com a amostra em forma de pastilha. As características deste tratamento estão mostradas na figura 3.1. Observa-se que a amostra é mantida na temperatura de sinterização por 8 horas seguida de um lento resfriamento controlado até a temperatura ambiente. A transição estrutural tetragonal-ortorrômbica é processada durante a etapa B enquanto que a completa oxigenação da amostra ocorre no resfriamento caracterizado pela etapa C. Com este tratamento, busca-se garantir à amostra propriedades supercondutoras otimizadas.

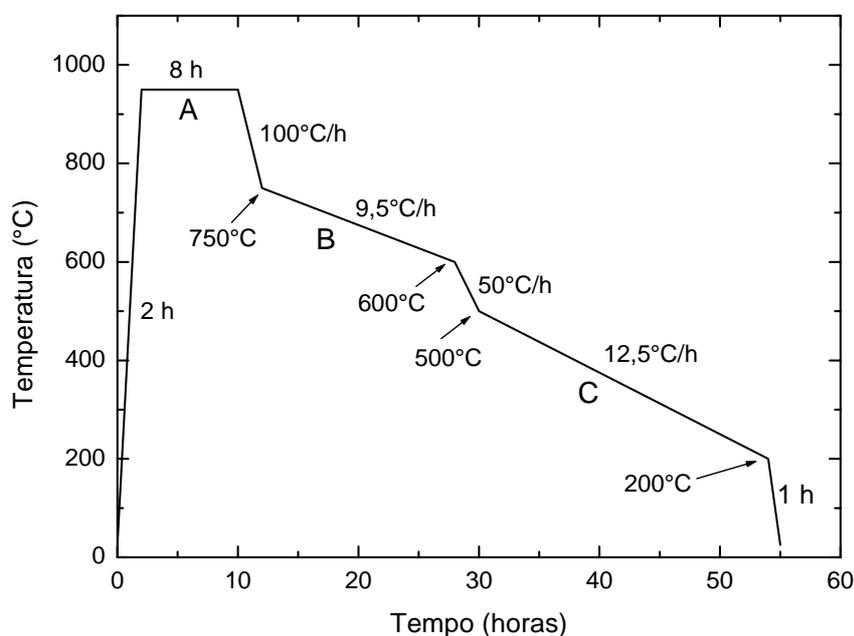


Figura 3.1 – Tratamento térmico final utilizado na produção de amostras granulares de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$.

O tratamento térmico final, aliado à homogeneidade da mistura, mostrou-se fundamental para a obtenção de amostras com resistividade elétrica do tipo metálica em temperaturas acima da transição para o estado supercondutor. Também se tornaram evidentes as características granulares da sua morfologia, as quais são manifestadas através da transição resistiva para o estado supercondutor. Algumas amostras foram preparadas na presença de oxigênio durante o último tratamento térmico, ou com variações na temperatura de sinterização e na taxa de resfriamento. Estas amostras apresentaram um alto valor de resistividade elétrica na temperatura ambiente ($\rho = 5 - 15\text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$), comportamento

semicondutor no estado normal e um alargamento da transição entre os estados normal e supercondutor. Por vezes, não foi observada supercondutividade nestas amostras em temperaturas superiores a 55 K, na situação de campo nulo.

3.1.2 – Amostras dos sistemas AuFe x at% e AuMn x at%

Lingotes das ligas AuFe x at% e AuMn x at% foram produzidas através da fusão dos elementos constituintes em um forno a arco, sob atmosfera de argônio puro. A pureza dos metais utilizados na preparação destas ligas foi de 99.9985% para o Au e 99.99% para o Fe e o Mn. Quantidades estequiométricas apropriadas dos metais foram pesadas com o objetivo de preparar amostras dos sistemas AuFe 8at%, AuFe 12at%, AuFe 15at%, AuFe 18at%, AuFe 21at% e AuMn 8at%.

Após a fusão, cada lingote foi laminado até se atingir uma espessura de aproximadamente 500 μm . Um pequeno pedaço em forma de agulha foi cortado para as medidas de magnetização. Para as medidas de efeito Hall, os lingotes foram novamente laminados e as espessuras atingidas estão listadas na tabela 3.1.

<u>Amostra</u>	<u>Espessura (μm)</u>
<u>AuMn</u> 8at%	10
<u>AuFe</u> 8at%	25
<u>AuFe</u> 12at%	20
<u>AuFe</u> 15at%	30
<u>AuFe</u> 18at%	30
<u>AuFe</u> 21at%	30

Tabela 3.1 – Espessura final das folhas laminadas das amostras de AuMn 8at% e AuFe x at%, as quais foram utilizadas para confeccionar amostras para as medidas de transporte elétrico.

A partir dos lingotes laminados, amostras de 10 mm de comprimento por 2 mm de largura foram preparadas com 5 pontas projetadas (para a instalação de contatos elétricos) possibilitando a realização de experimentos de resistividade elétrica e de efeito Hall. A configuração dos contatos para estas amostras está representado na figura 3.2.

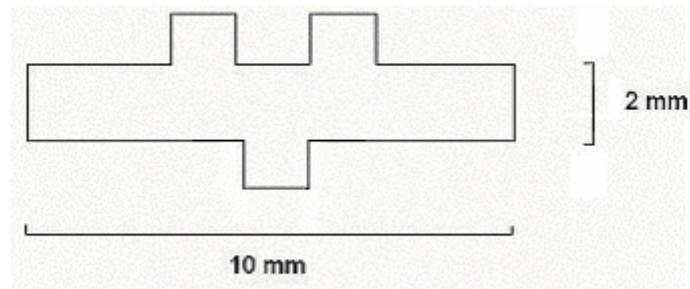


Figura 3.2 – Vista superior das amostras utilizadas para medidas de resistividade elétrica e efeito Hall nos sistemas $\text{AuMn } 8\text{at}\%$ e $\text{AuFe } x \text{ at}\%$. A instalação dos contatos elétricos será discutida posteriormente.

A seguir, cada par de amostras (uma das quais destinada às medidas de magnetização e a outra para medidas de transporte) de cada liga, juntamente com um pequeno pedaço de zircônia, foram selados em uma ampola de quartzo em atmosfera de gás argônio. Nesta condição, as amostras foram submetidas a um tratamento térmico em 900 °C durante 1 hora, seguido de um *quenching* em água. Este processo tem o intuito de homogeneizar a distribuição dos átomos de Fe (ou Mn) na matriz de Au, uma vez que tanto o Fe quanto o Mn apresentam forte tendência de precipitar na forma de agregados quando são diluídos no Au. Como a formação destes agregados é um processo ativado termicamente, as amostras são mantidas permanentemente em nitrogênio líquido.

3.2 – Técnicas de Medidas: Transporte Eletrônico

No supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, foram realizadas medidas de magnetoresistência. Os sistemas $\text{AuFe } x \text{ at\%}$ e $\text{AuMn } 8\text{at\%}$ foram estudados com medidas de condutividade elétrica na ausência de campo magnético e de efeito Hall. Esta seção é dedicada à descrição da preparação das amostras para as medidas de transporte eletrônico, com destaque ao processo de implementação de contatos elétricos, das técnicas e dos equipamentos utilizados. Descreve-se também o procedimento empregado durante a obtenção dos resultados.

3.2.1 – Contatos elétricos

Da amostra cilíndrica de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ foi extraído um pedaço na forma de paralelepípedo para facilitar a determinação do fator geométrico nas medidas de magnetoresistência. Para o estabelecimento de contatos elétricos estáveis sob operação em baixas temperaturas, foram implantados quatro tiras de tinta prata ou epóxi de prata na superfície da amostra, conforme esquematizado na figura 3.3. As tiras externas (contatos 1 e 4) são usadas como entrada e saída da corrente elétrica ao passo que nas tiras internas (contatos 2 e 3) é efetuada a leitura da tensão originada pela passagem da corrente elétrica através da amostra. Esta é a técnica de quatro pontas. A fim de se obter boa adesão dos contatos às amostras, estas foram levadas a uma temperatura de $250 \text{ }^\circ\text{C}$ por 30 minutos. Após, fios de cobre devidamente estanhados foram fixados nestes contatos utilizando-se a mesma tinta prata ou epóxi. Para uma fixação eficaz, manteve-se todo o sistema a $80 \text{ }^\circ\text{C}$ por aproximadamente 10 horas.

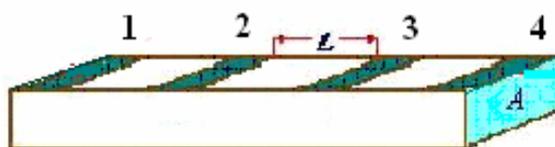


Figura 3.3 – Ilustração dos contatos elétricos colocados nas amostras de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Os contatos 1 e 4 destinam-se à aplicação de corrente elétrica, enquanto que os contatos 2 e 3 destinam-se às medidas de tensão.

Determinando-se a distância, L , que representa o caminho elétrico entre os contatos de tensão, a área da seção transversal da amostra, A , e a resistência elétrica em temperatura ambiente, R_{amb} , determinamos a resistividade elétrica a partir da expressão

$$\rho_{amb} = R_{amb} \frac{A}{L} \quad (3.1)$$

Em temperatura ambiente, a resistividade elétrica da amostra de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ estudada neste trabalho é $\rho_{amb} = 2.506 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$.

Todas as amostras dos sistemas AuFe x at% e AuMn 8at% foram produzidas com a geometria necessária para as medidas de resistividade elétrica e efeito Hall. A figura 3.4 ilustra a preparação dos contatos elétricos. Como nestes sistemas é estudada a condutividade Hall, é necessária a implementação de cinco contatos elétricos. Os contatos 1 e 5 são utilizados para a aplicação de corrente elétrica. A leitura da tensão utilizada para a determinação da resistividade longitudinal é feita através dos contatos 2 e 3 e a condutividade Hall é obtida pelos contatos 3 e 4. Nota-se que no contato 3 são fixados simultaneamente um contato de tensão longitudinal e um contato Hall, pois o método para a medida do efeito Hall usa uma técnica de compensação, que será discutida posteriormente. Uma vez que estes sistemas são metálicos, os contatos elétricos foram implementados soldando-se fios de cobre com o auxílio de solda estanho. A resistividade longitudinal é obtida através da equação 3.1.

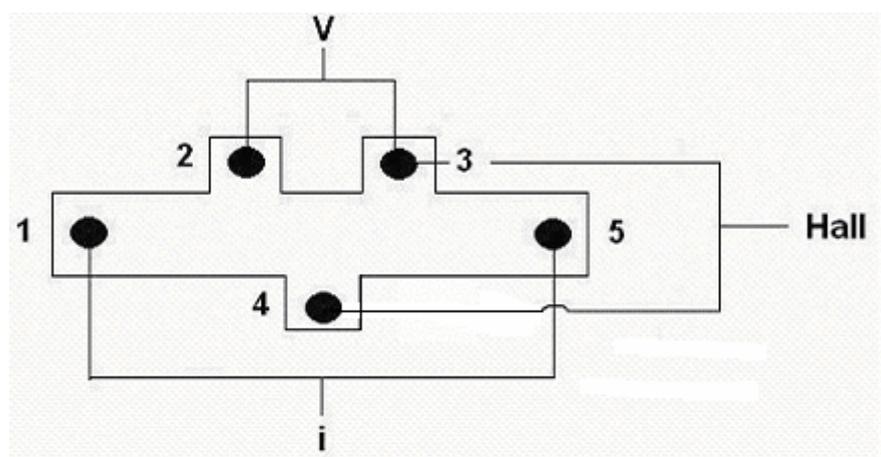


Figura 3.4 – Disposição dos contatos elétricos para as medidas de resistividade elétrica e condutividade Hall nos sistemas AuMn 8at% e AuFe x at%.

3.2.2 – Resistividade elétrica e magnetoresistência

As medidas de resistividade elétrica foram efetuadas com uma técnica de corrente AC. Para o resfriamento e aplicação de campos magnéticos, foram utilizados dois criostatos: um para baixos campos magnéticos e outro que permite o uso de campos magnéticos elevados (até 5T) e operação em temperaturas entre 2.2 K e 300 K.

3.2.2.1 – Equipamento eletrônico

O esquema da montagem eletrônica e os aparelhos utilizados na técnica de corrente AC para as medidas de magnetoresistência estão mostrados na figura 3.5. O aparato experimental utilizado neste método é semi-automatizado e opera na faixa de temperatura desde 4.2 K até 300 K, utilizando a técnica de detecção de sinal nulo de um amplificador lock-in, operando no modo A-B.

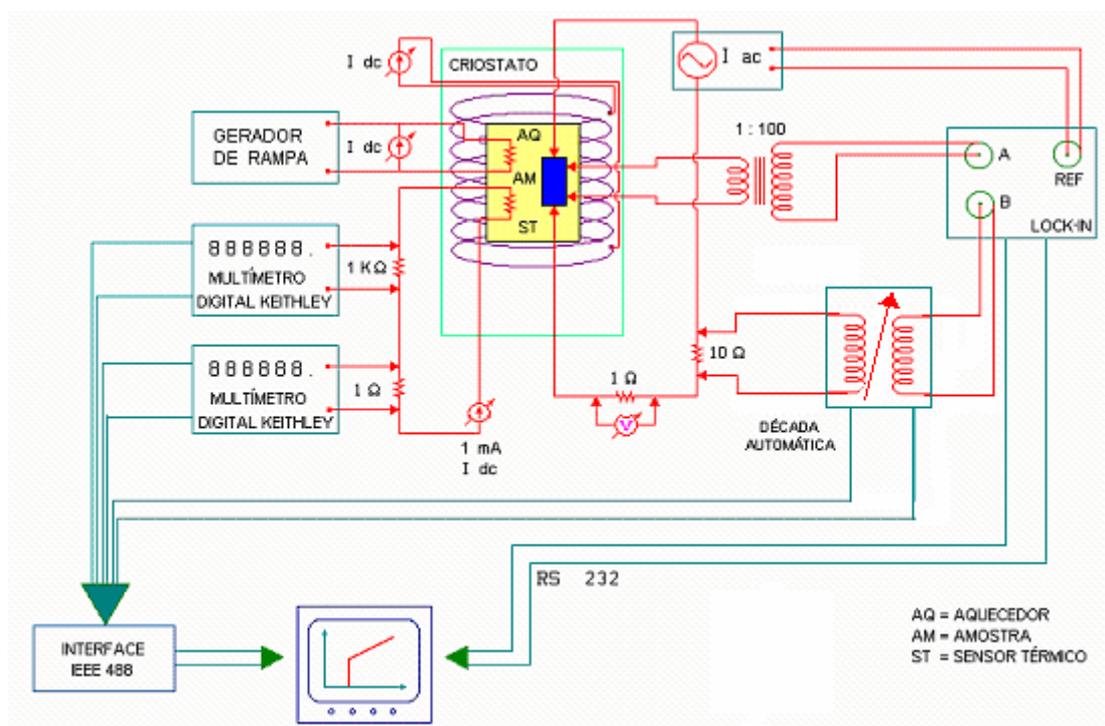


Figura 3.5 – Esquema da montagem eletrônica utilizada nas medidas de resistividade elétrica e magnetoresistência.

São efetuadas medidas do sinal de tensão AC produzido na amostra pela passagem de uma corrente AC de baixa frequência (35.7 Hz). O sinal de tensão é amplificado 100 vezes por um transformador de baixo ruído e enviado para o canal A de um amplificador Lock-in modelo SR830 da “Stanford Research Systems”. Ao canal B é enviado um sinal de compensação ajustado através de uma década indutiva automática modelo 73 da Electro Scientific Industries. Este sinal de compensação tem a função de uma referência pré-estabelecida, conforme será discutido na seção 3.2.2.4. As medidas são realizadas com o Lock-in operando no modo A-B, permitindo assim a detecção de sinal nulo.

Com a variação da temperatura, a resistência elétrica da amostra varia na mesma proporção que o valor de tensão lido pelo Lock-in. Num determinado momento, o valor do sinal A é igual ao valor do sinal gerado pelo sistema de compensação e a resistência da amostra é proporcional ao valor ajustado na década. Neste instante, o valor do sinal A-B do Lock-in é zero e um programa computacional utilizando a linguagem Qbasic faz a leitura da temperatura e do valor de década. Logo a seguir, ocorre um desbalanço automático do valor da década e a conseqüente espera de um novo instante do nulo no Lock-in. Essa técnica permite que a leitura dos sinais seja feita na mesma frequência e fase da corrente aplicada à amostra, resultando numa melhor relação sinal/ruído. A precisão do sinal nas medidas efetuadas nesta técnica está em até uma parte em 10^4 ou $1:10^5$. Esta técnica permite que as medidas sejam efetuadas enquanto a temperatura é variada lentamente. Assim, um grande número de pontos experimentais pode ser registrado.

A temperatura é medida com o uso de sensores térmicos de platina (para a operação em temperaturas acima de 70K) ou de carbon glass (utilizado em temperaturas inferiores a 70K) instalados na cana de medidas. O controle de variação da temperatura é feito através de um gerador de rampa manual que controla a potência que é aplicada em um aquecedor instalado junto ao porta amostra. Com este sistema, é possível obter taxas de variação da temperatura tão baixas quanto 1 K/h, com uma precisão de leitura de 1-2 mK. Dessa forma, podemos obter uma curva de resistividade elétrica com pontos em intervalos de temperatura tão pequenos quanto 0.01 K.

3.2.2.2 – Sistema criogênico para baixos campos magnéticos

O sistema criogênico utilizado nas medidas de resistividade elétrica em função da temperatura na amostra de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, em campo magnético nulo e em campos fixos até 0.05 T, é ilustrado na figura 3.6.

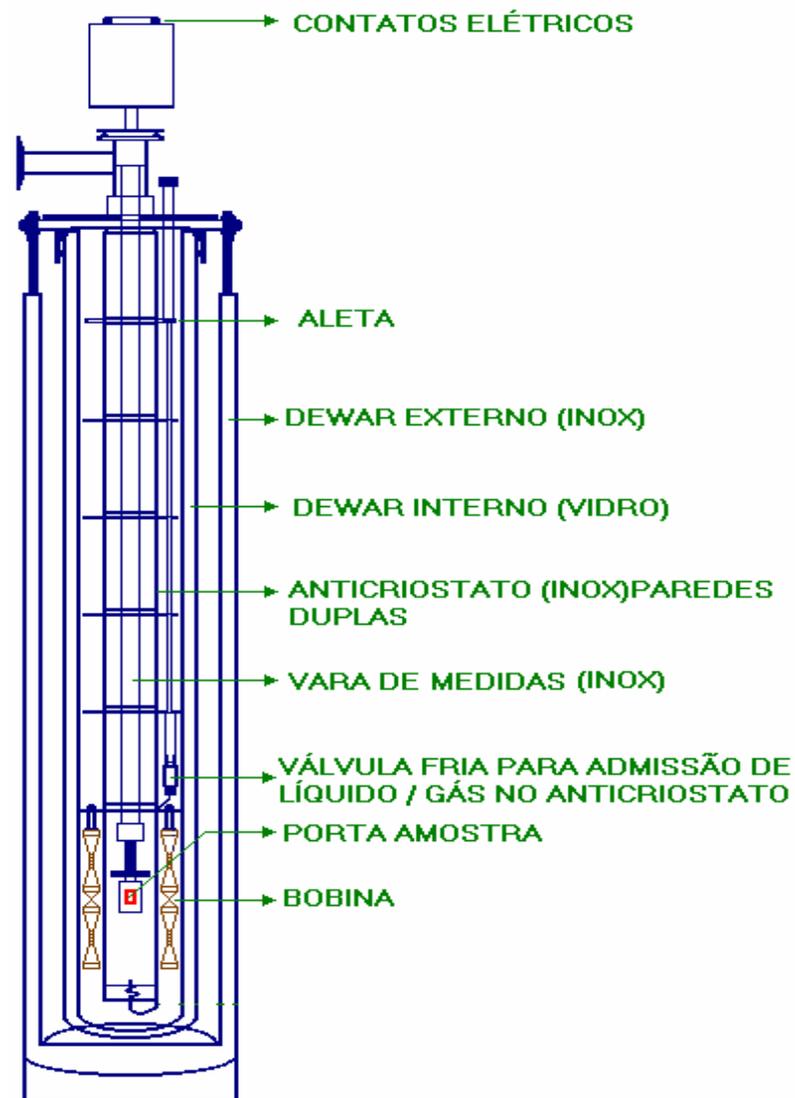


Figura 3.6 – Sistema criogênico com bobina de cobre para medidas de magnetotransporte em baixos campos.

O sistema é formado por um dewar externo de inox utilizado como reservatório de nitrogênio líquido e um dewar interno de vidro que permite a operação com hélio líquido. Nas medidas deste trabalho, não foi necessário o resfriamento deste criostato em

temperaturas inferiores a 70 K. No interior do dewar de vidro existe um anticriostato com paredes duplas de inox e isolado à vácuo. As aletas existentes no anticriostato têm como objetivo a reflexão da radiação eletromagnética e a estabilização do fluxo de gás. Durante as medidas, este anticriostato foi mantido em vácuo, com o objetivo de melhorar a isolamento térmica do sistema.

No interior do anticriostato está localizada a cana de medidas. Na extremidade desta cana está a mesa porta-amostra, os sensores de temperatura e o aquecedor. O porta-amostra é formado por duas placas de cobre justapostas e fixadas por parafusos, e é envolto por uma caneca de cobre cujo objetivo é o de homogeneizar a temperatura. A amostra é instalada na superfície de uma destas placas ao passo que na parte posterior do porta-amostra é instalado um aquecedor, constituído de um enrolamento de Ni-Cr de 28Ω ($100 \Omega/m$) através do qual se faz passar uma corrente elétrica que gera dissipação térmica. O sensor térmico é uma resistência de platina Rosemount de 500Ω em 273 K, calibrada para operar em temperaturas acima de 65 K e com precisão relativa de $1 m\Omega$. Este sensor está instalado entre as placas de cobre para otimizar o acoplamento térmico.

A amostra fica posicionada na região central de um solenóide de cobre capaz de gerar campos magnéticos entre 0 e 0.1 T. O enrolamento deste solenóide é constituído por um total de 14314 espiras de fio de cobre número 28. A homogeneidade do campo magnético na sua região central é melhor que 0.5%.

3.2.2.3 – Sistema criogênico para altos campos magnéticos

Nas medidas de magnetoresistência com campos magnéticos superiores a 0.05 T na amostra de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e nas medidas de condutividade Hall nos sistemas $\underline{Au}Fe$ x at% e $\underline{Au}Mn$ 8at% foi utilizado um criostato *Supervaritemp* da Janis Research Company, mostrado esquematicamente na figura 3.7.

O sistema criogênico é completamente construído em inox e apresenta um dewar externo para nitrogênio líquido, um reservatório intermediário para hélio líquido e um anticriostato no qual está instalada a cana de medidas. Todos são devidamente isolados mediante vácuo na ordem de 10^{-6} torr. A passagem de hélio na forma de gás ou líquido do reservatório para o anticriostato é feita através de um capilar controlado por uma válvula fria,

permitindo um eficiente resfriamento abaixo de 77 K. Com isso, é possível operar o sistema na faixa de temperatura entre 1.8 e 300 K.

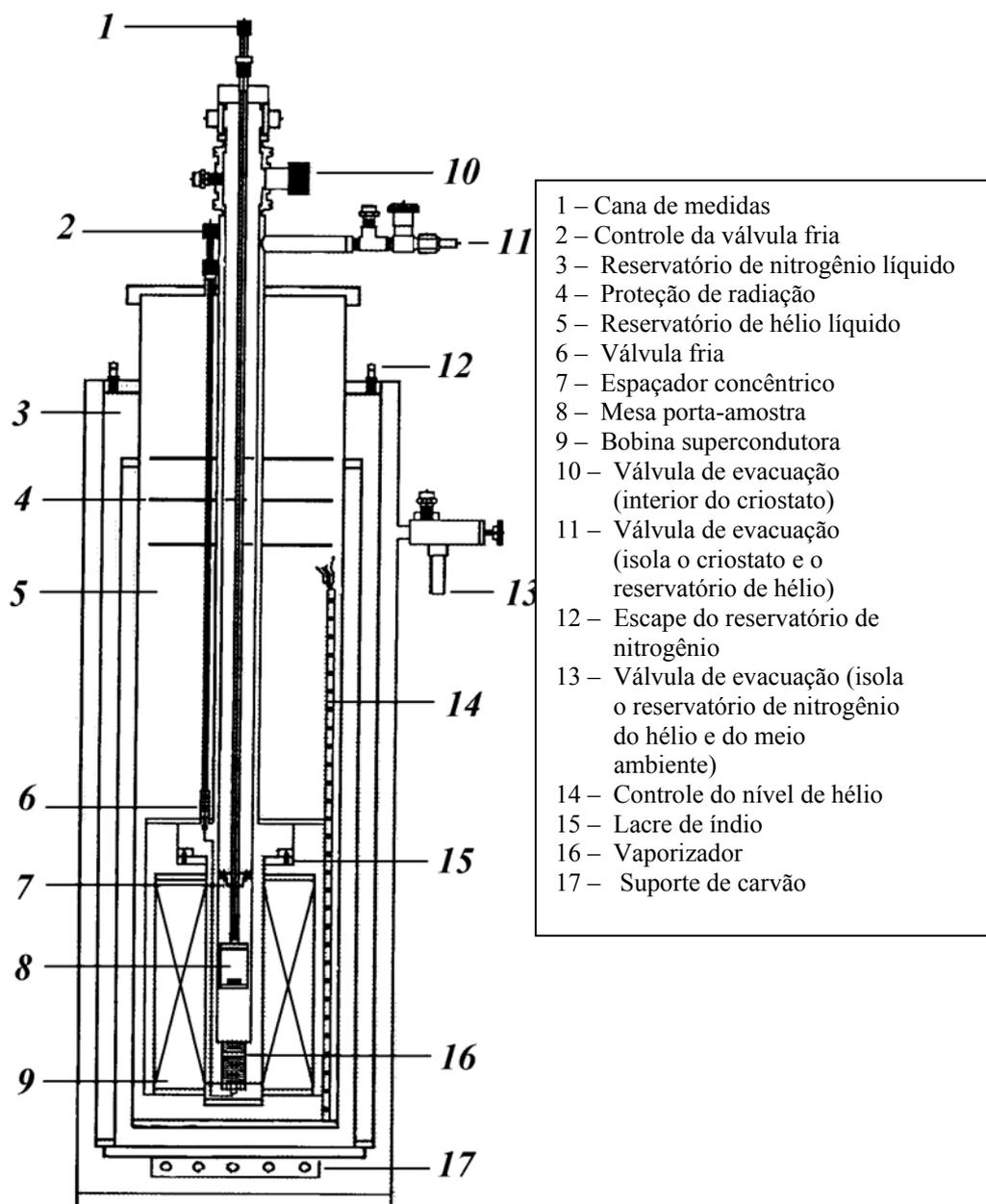


Figura 3.7 – Sistema criogênico utilizado para as medidas de magnetoresistência em alto campo e de efeito Hall.

A cana de medidas possui, em sua extremidade, um porta-amostra rotatório, o qual permite mudar a orientação da amostra com relação à direção do campo magnético aplicado.

Dois sensores térmicos estão acoplados termicamente à mesa do porta-amostra. Para o monitoramento de temperaturas superiores a 65 K, há uma resistência de platina (100 Ω em 273 K), modelo 2005, fabricada pela Hayashi Denko. Para temperaturas inferiores a 65 K, está instalado um sensor de Carbon Glass (2000 Ω em 4.2 K), modelo CGR1-2000 da Lake-Shore. Convém mencionar que a resistência de platina é corrigida pelos efeitos de magnetoresistência. Junto à mesa porta-amostra está instalado um aquecedor formado por um enrolamento de Ni-Cr de 26 Ω .

A geração de campos magnéticos se dá através de um solenóide supercondutor, formado por um enrolamento multifilamentar de NbTi encapsulado em cobre, imerso em hélio líquido, e capaz de gerar campos magnéticos até 6 T. O sistema permite a variação do campo e o funcionamento em modo persistente, em campo fixo. O monitoramento do nível de hélio líquido no interior do criostato é feito por um sensor AMI modelo 110 A.

A variação da temperatura pode ser feita utilizando-se dois recursos: (1) controlando-se o fluxo de hélio que circula através da válvula fria e pela ativação de um vaporizador que está instalado na parte inferior do anticriostato e que foi projetado de modo a garantir a homogeneidade térmica nas proximidades da amostra. Deste modo é possível o aquecimento até a temperatura ambiente mesmo com a presença de nitrogênio e hélio líquidos nos respectivos reservatórios ou (2) pela aplicação de corrente elétrica no aquecedor instalado junto ao porta-amostra. Usualmente, durante as medidas utiliza-se um fluxo contínuo de gás hélio através da válvula fria e o controle da taxa de variação da temperatura é feito pelo aquecedor ou pelo vaporizador. Em alguns casos, pode-se utilizar ambos os recursos simultaneamente.

3.2.2.4 – Procedimentos de medida

No caso da amostra granular de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, foram feitas medidas de resistividade elétrica em função da temperatura em diversos campos magnéticos fixos entre 0 e 5 T, aplicados segundo os procedimentos ZFC (*Zero Field Cooled*) e FC (*Field Cooled*). Um dos objetivos foi o de estudar os efeitos de irreversibilidades magnéticas e compará-los com os resultados obtidos a partir de medidas de magnetização DC. Com o intuito de minimizar os efeitos de deriva dos vórtices, os campos magnéticos sempre foram aplicados paralelamente

à orientação da corrente elétrica ($\mathbf{H} // \mathbf{J}$). Em todas as medidas, a corrente elétrica utilizada foi mantida fixa no valor de 1 mA.

A taxa de variação da temperatura depende do intervalo de temperatura em que foi feita a medida. Por exemplo, nas proximidades da transição supercondutora as taxas foram de no máximo 5 K/h, permitindo a obtenção de pontos experimentais precisos em intervalos de 0.01 K, em média. Esta alta densidade de pontos é necessária para que seja possível a derivação numérica da resistividade elétrica em função da temperatura na região de temperaturas próxima a T_C . Dessa forma, pode-se fazer o estudo dos efeitos de flutuações termodinâmicas com precisão.

Como mencionado anteriormente, os dados de resistividade elétrica são armazenados pelo computador em termos de unidades arbitrárias que devem ser transformadas em unidades convencionais. Para isso, é estabelecida uma relação entre o valor da década indutiva com a medida absoluta da resistividade numa dada temperatura fixa. Este procedimento é sempre realizado à temperatura ambiente, quando a amostra é instalada na cana de medidas. Mede-se a resistência da amostra R e ajusta-se o valor da década (V_D) de tal forma que o sinal lido no modo A-B do Lock-in seja nulo. A resistividade é obtida através da relação

$$\rho = R \frac{A}{L} \frac{1}{100} \quad , \quad (3.2)$$

onde o termo A é a área da seção transversal da amostra, L é o caminho elétrico medido entre os contatos de tensão e o fator $1/100$ deve-se à pré-amplificação do sinal de tensão lido na amostra que é enviado ao canal A do Lock-in. Dessa forma, para a conversão das unidades arbitrárias em unidades convencionais é necessário apenas multiplicar os valores medidos na década indutiva em qualquer temperatura pela razão ρ / V_D calculada à temperatura ambiente.

3.2.3 – Condutividade Hall

3.2.3.1 – Equipamento eletrônico e sistema criogênico

As medidas de resistividade Hall foram realizadas nas amostras de AuFe x at% e AuMn 8at% no sistema criogênico descrito na seção 3.2.2.3. Contudo, para a detecção do sinal Hall, foram feitas algumas modificações no sistema eletrônico, que também é baseado numa técnica AC. O esquema da configuração eletrônica utilizada nas medidas de efeito Hall pode ser visto na figura 3.8.

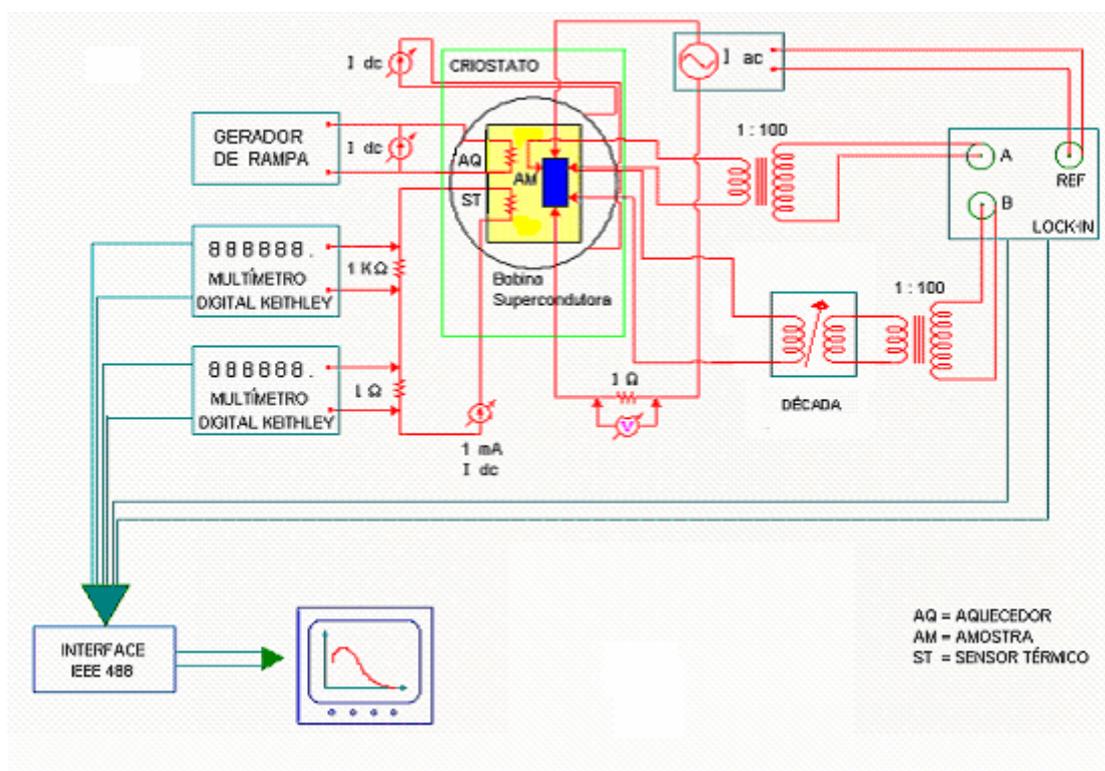


Figura 3.8 – Montagem eletrônica para as medidas de efeito Hall.

O sinal da tensão transversal da amostra (representado pelos contatos 3 e 4 da figura 3.4) é formado por uma componente resistiva e, quando na presença de campo magnético, uma componente Hall. Para a medição apenas da componente Hall, o sinal resistivo é anulado, em campo nulo, através da tensão obtida pelos terminais 2 e 3 (ver figura 3.4) devidamente balanceado com uma década indutiva. Um detector síncrono (Lock-In) auxilia este procedimento. O sinal de tensão transversal da amostra é amplificado 100 vezes por um transformador de baixo ruído e levado à entrada do canal A do Lock-In, enquanto que o sinal

de resistividade longitudinal é levado ao canal B. Com o auxílio da ponte indutiva e de outro transformador de baixo ruído, faz-se a compensação dos sinais de modo que, na ausência de campo magnético, o sinal A-B seja nulo.

Aplicando-se o campo, o desbalanço que surgir entre os sinais A e B do Lock-In é unicamente devido ao sinal Hall da amostra. Esta configuração eletrônica garante que qualquer efeito magnetoresistivo que surgir entre os terminais 3 e 4 (contatos transversais) será perfeitamente compensado pela magnetoresistividade nos terminais 2 e 3 (contatos longitudinais). Esta técnica, em resumo, consiste em usar a própria resistência da amostra como resistência de compensação, para que eventuais efeitos magnetoresistivos sejam compensados e não interfiram na determinação da tensão Hall. A desvantagem deste método está na precisão de leitura do sinal Hall. Esta é feita diretamente pelo Lock-In que, neste caso, não opera como um detector de nulo.

3.2.3.2 – Procedimentos de medida

Nesta seção, são apresentados os procedimentos de medida utilizados na obtenção dos resultados e a determinação da resistividade Hall total a partir da medida de tensão transversal de Hall.

Todas as amostras de $\text{AuFe } x \text{ at\%}$ e $\text{AuMn } 8\text{at\%}$ foram medidas com a configuração em que H é aplicado perpendicularmente à densidade de corrente J em ambos os procedimentos ZFC e FC. As medidas de efeito Hall no procedimento ZFC são realizadas com a técnica de estabilização da temperatura. Na ausência de campo magnético aplicado, a amostra é resfriada a uma dada temperatura que é mantida estável enquanto aplica-se o campo magnético e são feitas as leituras da tensão Hall V_h . Vários campos magnéticos no intervalo entre 0.0075 T e 3 T foram aplicados. As medidas de V_h são realizadas na ordem sequencial de campo magnético crescente. A seguir, o campo magnético é anulado e a temperatura é aumentada até um valor superior à temperatura de congelamento (no caso dos vidros-de-spin) ou à temperatura de Curie (no caso dos sistemas reentrantes). Em campo nulo, o sistema é novamente resfriado até outra temperatura e o procedimento de medida com diversos campos aplicados é recommçado. Para as medidas de efeito Hall segundo o procedimento FC, a amostra é aquecida a uma temperatura bem acima da temperatura de ordenamento magnético e o campo é aplicado. A leitura da tensão Hall é feita durante o

resfriamento da amostra sob campo constante. A corrente elétrica que percorre a amostra durante as medidas de efeito Hall em ambos os protocolos ZFC e FC foi de 30 mA. Utiliza-se uma densidade de corrente alta pois, como vimos ao longo da seção 2.2.2, a intensidade do campo Hall é diretamente proporcional à corrente que percorre a amostra. A leitura de temperatura é feita pelos termômetros mencionados anteriormente e o controle da temperatura foi feito através do aquecedor instalado no porta-amostra e do vaporizador.

O campo elétrico de Hall E_h pode ser determinado a partir da tensão de Hall medida V_h , ou seja,

$$E_h = \frac{V_h}{D} \quad , \quad (3.3)$$

onde D é a largura da amostra. Levando-se em consideração a definição do campo elétrico de Hall, que é expresso pela equação 2.16, e escrevendo a densidade de corrente como $J = \frac{i}{A}$, onde A é a área da seção transversal da amostra, obtemos

$$V_h = \frac{D}{A} \frac{i}{ne} B \quad . \quad (3.4)$$

A razão $\frac{D}{A}$ é a própria espessura da amostra. A quantidade $\frac{1}{ne}$ é definida como o coeficiente Hall total R_h , e assumimos que $B = \mu_0 H$. Dessa forma, lembrando que a tensão de Hall medida é amplificada por um fator 100, podemos expressar a equação (3.4) como

$$V_h = 100 \frac{i}{d} R_h \mu_0 H \quad . \quad (3.5)$$

A quantidade $R_h \mu_0 H$ é a resistividade Hall total ρ_h . Assim, a partir da tensão Hall medida pelo Lock-in, calculamos ρ_h através da expressão:

$$\rho_h = \frac{1}{100} \frac{d}{i} V_h \quad . \quad (3.6)$$

Neste trabalho, os resultados obtidos para as medições de efeito Hall nas amostras de AuFe x at% e AuMn 8at% são apresentadas em termos do coeficiente Hall total R_h .

3.3 – Técnicas de Medidas: Magnetização DC

Foi realizado um estudo magnético em todas as amostras estudadas neste trabalho através de medidas de magnetização em função da temperatura segundo os procedimentos ZFC e FC, as quais, dentre outras propriedades, permitem a determinação da linha de irreversibilidades magnéticas. A seguir, será feita uma descrição da preparação das amostras para a realização destas experiências bem como do equipamento utilizado (magnetômetro de SQUID) e dos procedimentos de medida.

3.3.1 – Preparação das amostras

Dada a sensibilidade do magnetômetro de SQUID, pequenos pedaços das amostras dos supercondutores granulares são cortados preferencialmente com geometria cilíndrica, minimizando-se assim efeitos de campo demagnetizante. As amostras dos sistemas AuFe x at% e AuMn 8at% não necessitam de quaisquer tipo de manipulação pois aquelas destinados às medidas magnéticas são preparadas durante a primeira etapa de confecção, conforme discutido anteriormente.

Outro cuidado necessário na preparação das amostras para medidas magnéticas diz respeito ao porta-amostra utilizado. Segundo o procedimento padrão de magnetometria SQUID, as amostras são instaladas em um canudo feito de plástico, que não produz sinal magnético. É importante que estas amostras sejam fixadas adequadamente de modo a não vibrarem durante as medidas. Assim, as amostras são colocadas em um envelope feito do mesmo material plástico (um pequeno pedaço do canudo) e a fixação é feita com graxa de vácuo ou através do preenchimento completo do envelope com algodão. A seguir, o conjunto é colocado no interior do canudo em uma posição pré-estabelecida, de modo que a amostra fique numa região homogênea do campo magnético. A figura 3.9 ilustra a instalação da amostra.

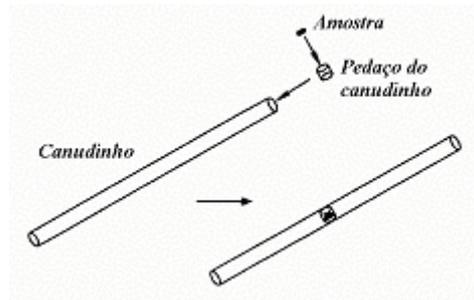


Figura 3.9 – Instalação da amostra para a realização das medidas no magnetômetro SQUID.

3.3.2 – Magnetômetro de SQUID

O equipamento utilizado em todas as medidas de magnetização DC foi um magnetômetro de SQUID, modelo MPMS-XL (Magnetic Properties Measurements System) fabricado pela Quantum Design, USA. Neste equipamento, podem ser realizadas medidas com campos magnéticos entre 0 e 5 T, operando em uma faixa de temperatura entre 1.9 K e 400 K. A taxa de variação da temperatura compreende valores entre 0.01 e 10 K/min. O equipamento ainda conta com um sistema de transporte que pode controlar a posição da amostra no interior do criostato com resolução de até 0.0003 cm. A susceptibilidade magnética pode, em casos favoráveis, ser medida com uma precisão de 5×10^{-9} emu. A figura 3.10 mostra o esquema geral do magnetômetro de SQUID, o qual é constituído pelas partes criogênica e eletrônica.

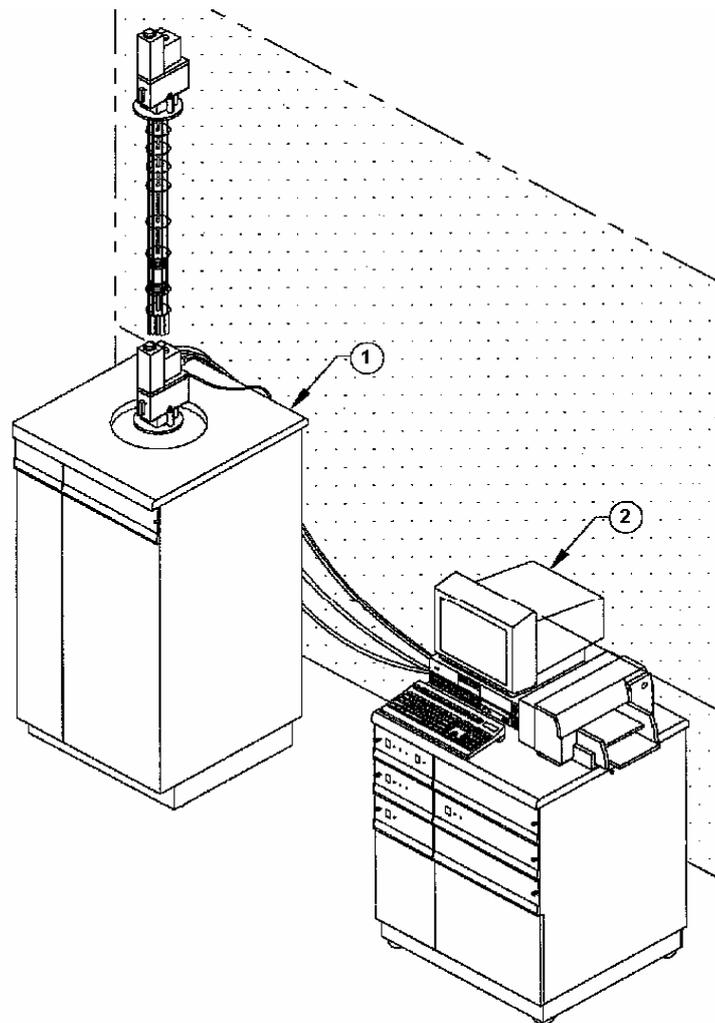


Figura 3.10 – Visualização do magnetômetro SQUID: parte (1) corresponde ao sistema criogênico e parte (2) corresponde ao sistema de controle associado ao equipamento.

A parte criogênica compreende um criostato superisolado, com blindagem adicional de nitrogênio líquido, construído em alumínio com capacidade para 56 litros de hélio líquido. Neste criostato estão o magneto supercondutor, o sensor SQUID, o sistema de termometria, a vara de medidas e a eletrônica associada, conforme se vê na figura 3.11.

O sistema de controle do equipamento é formado por um computador, que controla todo o equipamento através de uma interface IEEE-488. Este computador, através de um software em ambiente Windows, comanda três controladores que são encarregados do funcionamento e operação do magnetômetro.

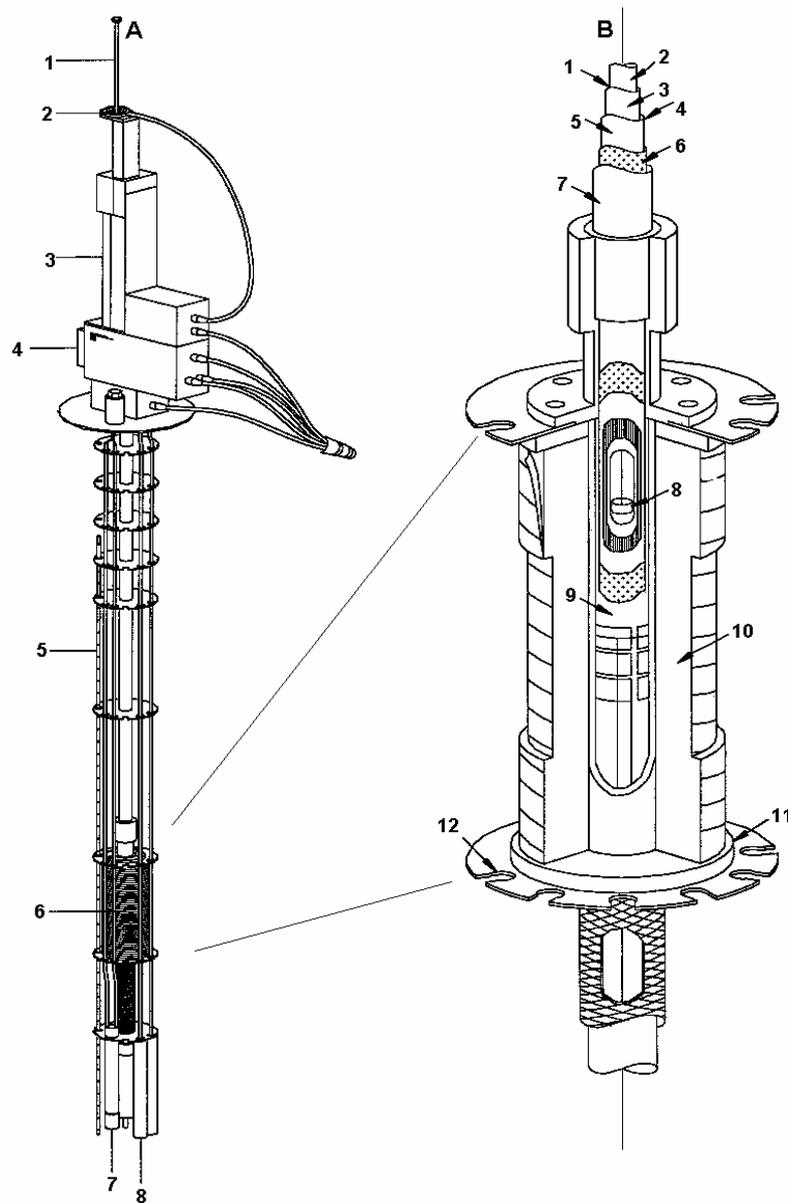


Figura 3.11: Vara de medidas e estrutura do criostato com os componentes magnéticos. Na figura A: 1-cana, 2-rotador da cana, 3-transporte da amostra, 4-sonda, 5-Sensor de nível de hélio líquido, 6- Solenóide supercondutor, 7-Impedância, 8-Cápsula do SQUID. Na figura B: 1-Câmara da amostra, 2-Espaço da amostra, 3- Folha isotérmica com aquecedor, 4- Região de isolamento térmico, 5-Parede de vácuo interno, 6-Superisolamento, 7-Parede de vácuo externo, 8-Amostra, 9-Parede interna da bobina supercondutora, 10-Fio supercondutor multifilamentar, 11-Parede externa da bobina, 12-Culote.

O controlador modelo 1822 é o mais importante, pois é encarregado de todos os mecanismos descritos na figura 3.11A. Ele é responsável pelo transporte da amostra, o acoplamento do aquecedor interno, a detecção do sinal SQUID, a fonte de corrente para a bobina supercondutora, a chave para a operação em modo persistente, a impedância e o sensor de nível de hélio líquido. O segundo controlador é responsável pela chave de fluxo de

gás, a chave do fluxo de ar e o sistema de vácuo. O terceiro e último controlador é uma ponte R/G modelo 1802, responsável pelo sensor de temperatura e aquecimento de gás.

Toda a operação, exceto a colocação da amostra e o abastecimento de nitrogênio e hélio líquidos é feita através do computador. O sistema pode ser programado para realizar diversas medidas durante vários dias, se necessário.

O equipamento conta com dois sistemas de medida e transporte da amostra. Um deles é o sistema DC (método de medida da magnetização por extração da amostra), no qual a amostra excursiona para fora da região central da bobina a cada ponto medido, sendo novamente colocada na região central da bobina supercondutora para a medida do ponto seguinte. Um sistema alternativo para medir o momento magnético da amostra que está presente neste modelo de magnetômetro de SQUID é o RSO (Reciprocating Sample Option). Neste método, a operação é semelhante a um magnetômetro de amostra vibrante, onde a amostra move-se senoidalmente com uma frequência fixa e definida em torno de um ponto fixo centralizado em relação à bobina. O RSO utiliza um “servo motor” de alta qualidade que produz o movimento da amostra durante a leitura dos dados, além de um processador de sinais digitais (DSP), que permite medidas rápidas do momento magnético. O sistema RSO apresenta duas grandes vantagens. Primeiramente, a amostra não pára em cada posição de leitura, permitindo assim que os dados sejam obtidos de uma maneira mais rápida que num magnetômetro DC convencional. Além disso, as técnicas de lock-in empregadas reduzem a contribuição de ruídos de baixa frequência durante as medidas. Dessa forma, todas as medidas de magnetização apresentadas neste trabalho foram efetuadas através do sistema RSO.

3.3.3 – Procedimentos de medidas

Inicialmente, em todas as amostras analisadas neste trabalho, é feita uma medida da magnetização em campo magnético de 0.001 T, num intervalo de temperaturas desde hélio líquido até a temperatura ambiente. O intuito desta experiência inicial é o de caracterizar a amostra e determinar a temperatura da transição supercondutora (caso das amostras de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$) ou da transição magnética, nos casos dos sistemas do tipo vidro-de-spin e reentrantes (amostras AuFe x at% e AuMn 8at%).

As amostras supercondutoras granulares de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$ foram submetidas a medidas de magnetização em função da temperatura, nas proximidades da transição para o estado supercondutor, em campos magnéticos fixos aplicados desde 0.0005 T até 5 T segundo os procedimentos ZFC e FC. A taxa de variação da temperatura foi 0.04 K/min, permitindo assim medidas em intervalos de 0.02 K. Esta grande quantidade de pontos se faz necessária pois, para cada medida, busca-se determinar a temperatura de irreversibilidade magnética com a maior precisão possível.

Para os sistemas magnéticos AuFe x at% e AuMn 8at% foram realizadas medidas de magnetização em função da temperatura no intervalo entre 6 e 300 K. Visando-se a análise dos dados experimentais, os valores de campo magnético utilizados para a obtenção destes resultados foram os mesmos empregados nas experiências de efeito Hall.

4. Transição de Coerência e Linha de Irreversibilidades Magnéticas no Supercondutor Granular $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$

Neste capítulo serão apresentados os resultados experimentais de magnetocondutividade e magnetização obtidos na amostra policristalina do supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, assim como sua discussão e interpretação física. Nosso objetivo concentra-se no estudo dos efeitos de flutuações termodinâmicas nas proximidades da transição para o estado supercondutor a partir das medidas de transporte elétrico e na obtenção da linha de irreversibilidades magnéticas através de experiências de magnetoresistência e magnetização DC. Também será feita uma descrição dos métodos utilizados na análise quantitativa dos resultados experimentais obtidos.

4.1 – A transição para o estado supercondutor

A transição resistiva para o estado supercondutor da amostra granular de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) foi estudada na presença de diversos campos magnéticos aplicados paralelamente à corrente de medida, conforme a técnica e os procedimentos descritos no capítulo anterior. Os resultados de magnetocondutividade obtidos na amostra policristalina de YBCO mostram que ocorre uma transição de coerência envolvendo a fase do parâmetro de ordem do sistema granular, o qual é afetado pela presença de ligações fracas. O objetivo principal desta parte do trabalho consiste na descrição e na interpretação da transição de coerência e da linha de irreversibilidades magnéticas também estudada nesta amostra.

A figura 4.1 mostra o comportamento das curvas de resistividade elétrica em função da temperatura numa região próxima à transição supercondutora para alguns dos campos magnéticos aplicados.

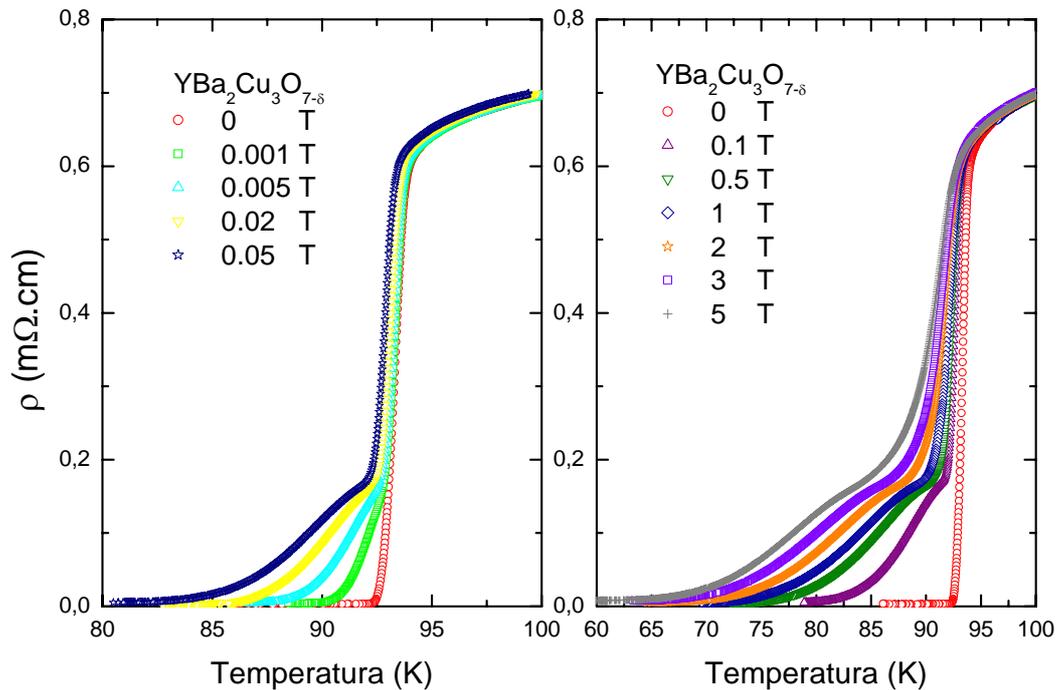


Figura 4.1 – Curvas de resistividade elétrica em função da temperatura na presença de vários campos magnéticos aplicados para a amostra policristalina de YBCO nas proximidades da transição para o estado de resistência nula. Na figura da esquerda são apresentados resultados em campos até $\mu_0H = 0.05$ T. A figura da direita ilustra campos até $\mu_0H = 5$ T.

Como se pode observar nos resultados, a presença de um campo magnético produz um alargamento de toda a transição resistiva. O efeito é mais pronunciado no regime de aproximação ao estado de resistência nula. Em campo nulo, a resistividade elétrica torna-se nula na temperatura $T_{C0} \approx 92.5$ K. Porém, em $\mu_0H = 5$ T, a temperatura na qual a resistividade torna-se indetectável é inferior a 60 K.

A figura 4.2 mostra a derivada da resistividade elétrica com relação à temperatura, $d\rho/dT$, evidenciando o caráter de transição resistiva em duas etapas para nossa amostra.

Na amostra YBCO, o pico da derivada nas proximidades de T_C é alargado pela ação do campo magnético na direção de mais baixas temperaturas, formando uma estrutura de transição com duas etapas, evidenciando os efeitos de ligações fracas no sistema granular. Observa-se ainda que o campo magnético modifica fracamente a queda abrupta da resistividade elétrica que ocorre nas proximidades da transição intragranular (transição de pareamento, definida aproximadamente pela posição do pico principal de $d\rho/dT$ denotado

pela temperatura $T_P(H)$). No entanto, nestas curvas, a estrutura correspondente à região dominada pelos processos intergranulares é fortemente modificada pelo campo magnético, cujo aumento ocasiona uma redução significativa na temperatura $T_{C0}(H)$, que denota o estabelecimento do estado de resistência nula.

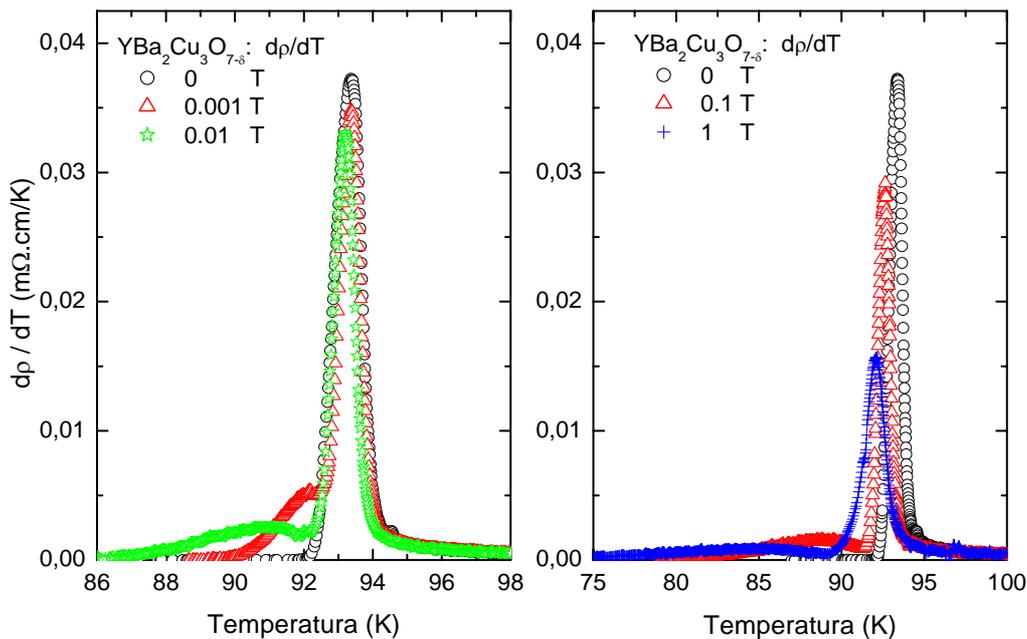


Figura 4.2 – Derivada da resistividade elétrica em relação à temperatura para a amostra YBCO sob diferentes campos magnéticos aplicados. A figura da esquerda mostra os resultados de baixos campos aplicados, enquanto que a figura da direita mostra o comportamento para altos campos.

A temperatura $T_P(H)$ é um parâmetro útil que permite delimitar, na transição resistiva, os efeitos de flutuações térmicas na fase normal ($T > T_P$) e na região paracoerente ($T < T_P$), em que a fase do parâmetro de ordem dos grãos individuais flutua pela ação da energia térmica.

A partir de cada curva $d\rho/dT$ versus T obtida para a amostra YBCO nos diferentes campos magnéticos aplicados, determinamos a respectiva temperatura característica $T_P(H)$. Os resultados são representados juntamente com a temperatura que denota o estabelecimento da resistência nula, $T_{C0}(H)$, em um diagrama H-T, que está mostrado na figura 4.3. Posteriormente, será apresentado com detalhes o método pelo qual se determina a posição de $T_{C0}(H)$. Com o aumento do campo magnético, ocorre um deslocamento progressivo das temperaturas $T_P(H)$ e $T_{C0}(H)$ no sentido de mais baixas temperaturas. Este fenômeno sugere

que o campo magnético afeta a transição resistiva tanto no regime intragranular, que ocorre nas vizinhanças de $T_P(H)$, quanto no regime intergranular entre $T_P(H)$ e $T_{C0}(H)$, região esta que é precursora à transição de coerência. Observa-se ainda que a região paracoerente é fortemente alargada com o aumento do campo magnético. Este comportamento é característico de um arranjo granular conectado através de ligações fracas cujas energias de acoplamento distribuem-se aleatoriamente e são fortemente dependentes do campo magnético aplicado, da corrente elétrica e da temperatura.

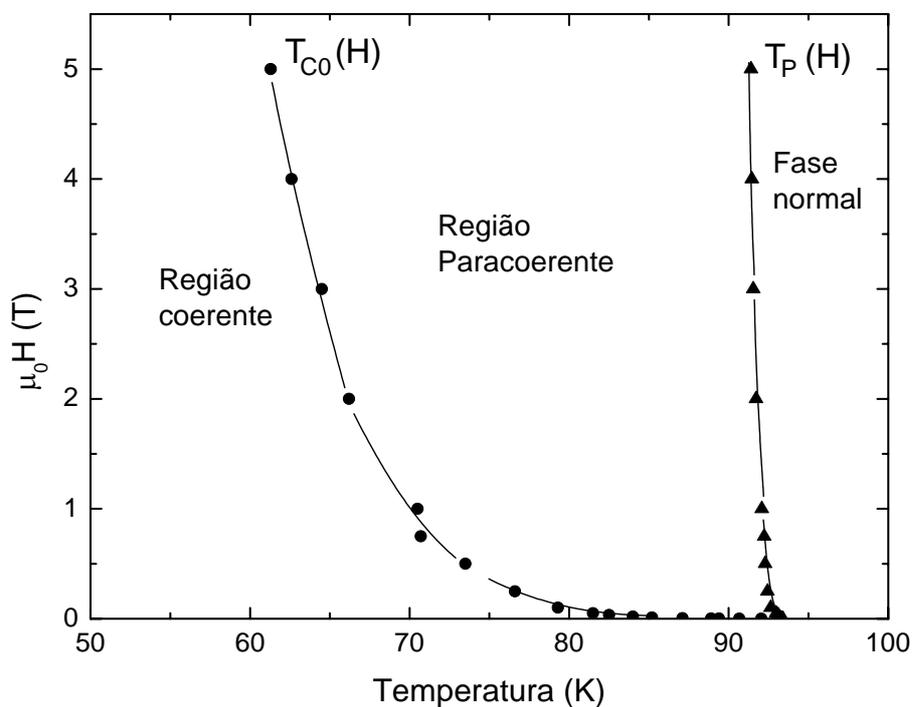


Figura 4.3 – Diagrama H-T esquemático que delimita a fase normal e as regiões paracoerente e coerente da fase supercondutora para a amostra granular de YBCO. As linhas são guias visuais.

4.2 – Flutuações na Fase Normal

Nesta seção serão analisados brevemente os resultados obtidos no estudo das flutuações termodinâmicas na magnetocondutividade do YBCO na região de temperaturas superiores à T_p , ou seja, na fase normal. As medidas foram realizadas conforme a descrição feita no capítulo 2 e foram utilizados campos magnéticos até 5 T aplicados paralelamente à corrente elétrica, cujo valor permaneceu fixo em 1 mA. Todas as medidas foram realizadas no procedimento FC.

4.2.1 – Método de Análise

Experimentalmente, a contribuição das flutuações termodinâmicas à condutividade são obtidas mediante a diferença:

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_R \quad , \quad (4.1)$$

onde σ é o inverso da resistividade medida ($\sigma = 1/\rho$) e σ_R é a condutividade regular, não divergente.

A condutividade regular σ_R é determinada a partir da extrapolação para baixas temperaturas do comportamento linear apresentado pela resistividade elétrica na fase normal, e pode ser expressa como:

$$\sigma_R = \frac{1}{\rho_R} \quad , \quad (4.2)$$

$$\text{onde} \quad \rho_R = \rho_0 + \frac{d\rho_R}{dT} T \quad . \quad (4.3)$$

As constantes ρ_0 e $\frac{d\rho_R}{dT}$ são determinadas a partir do ajuste linear do comportamento da resistividade em altas temperaturas. Desta maneira, fazendo-se o ajuste linear no intervalo de temperaturas compreendido entre 140 e 250 K, determinamos $\rho_0 = 0.42 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}$ e $\frac{d\rho_R}{dT} = 0.0031 \text{ m}\Omega\cdot\text{cm}/\text{K}$. A figura 4.4 ilustra o ajuste que permite a determinação destas constantes.

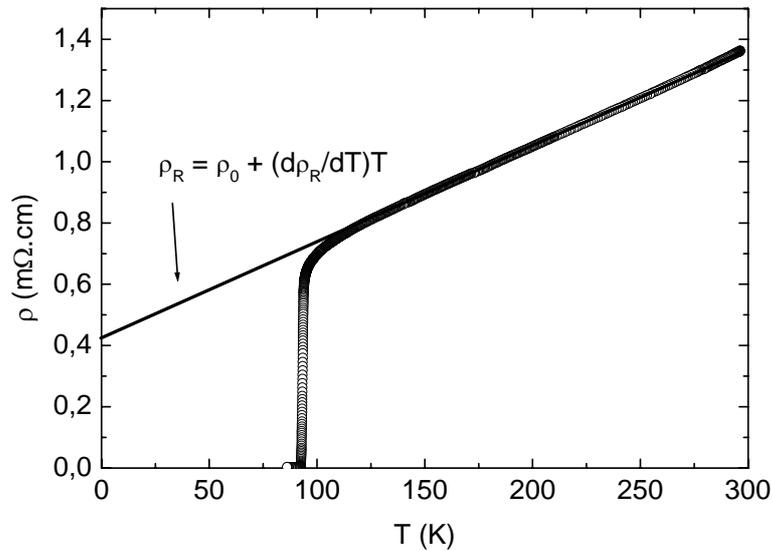


Fig.4.4 – Extrapolação do comportamento linear da resistividade elétrica medida em alta temperatura na amostra $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.

Os resultados experimentais são analisados a partir da suposição de que a contribuição das flutuações à condutividade diverge segundo uma lei de potência da forma:

$$\Delta\sigma = A\varepsilon^{-\lambda} \quad , \quad (4.4)$$

onde A é uma constante, $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ é a temperatura reduzida e λ é o expoente crítico.

Para a análise de fenômenos críticos, em analogia com o método de Kouvel-Fisher⁷³, determina-se a derivada logarítmica do excesso de condutividade em relação à temperatura. Assim, define-se:

$$\chi_\sigma = -\frac{d}{dT} \ln(\Delta\sigma) = -\frac{1}{\Delta\sigma} \frac{d(\Delta\sigma)}{dT} \quad . \quad (4.5)$$

Substituindo a expressão (4.4) na equação (4.5) e calculando a derivada, obtemos:

$$\frac{1}{\chi_\sigma} = \frac{1}{\lambda} (T - T_C) \quad . \quad (4.6)$$

Portanto, a simples identificação de um comportamento linear em um gráfico $1/\chi_\sigma$ versus T (como no exemplo da figura 4.5) permite que sejam identificados simultaneamente a temperatura crítica T_C , e o respectivo expoente crítico λ . A partir da interseção da reta com o eixo da temperatura obtemos T_C , enquanto que a inclinação da reta fornece o inverso do expoente crítico, λ^{-1} .

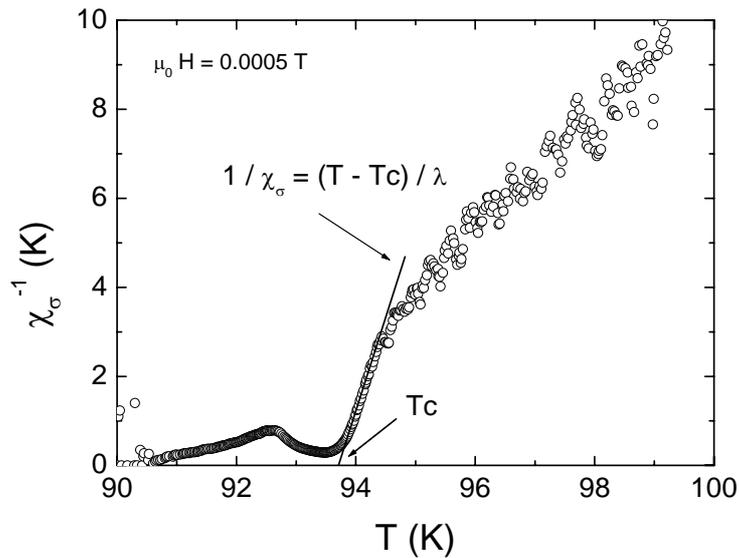


Figura 4.5 – Regime linear na curva do inverso da derivada logarítmica da condutividade (χ_σ^{-1}) em função de T , o qual permite a obtenção da temperatura crítica e do expoente crítico associado a este regime.

Uma vez que a quantidade medida é a resistividade, escreve-se:

$$\frac{d}{dT}(\Delta\sigma) = -\frac{1}{\rho^2} \frac{d\rho}{dT} + \frac{1}{\rho_R^2} \frac{d\rho_R}{dT} \quad (4.7)$$

Assim, a derivada logarítmica χ_σ é determinada numericamente através da expressão:

$$\chi_\sigma = \left(\frac{1}{\rho^2} \frac{d\rho}{dT} - \frac{1}{\rho_R^2} \frac{d\rho_R}{dT} \right) \bigg/ \left(\frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_R} \right) \quad (4.8)$$

As principais fontes de incertezas na análise dos dados com este método originam-se da extrapolação linear para a determinação do termo regular da condutividade, σ_R , e do procedimento numérico para a determinação da derivada $d\rho/dT$. Porém, os erros assim introduzidos são pequenos nas proximidades da transição, pois, neste caso, o termo que envolve ρ_R no numerador da equação (4.8) é pequeno se comparado ao termo que contém a resistividade total ρ . Por outro lado, a determinação numérica de $d\rho/dT$ torna-se mais precisa nas proximidades da temperatura crítica T_C , onde a resistividade varia rapidamente com a temperatura. Aumentando-se a temperatura, a diferença entre ρ e ρ_R diminui e os erros provenientes do procedimento numérico tendem a se tornar maiores.

4.2.2 – Comportamento de χ_σ^{-1} na fase normal

A representação da transição resistiva em termos do inverso da derivada logarítmica torna evidente o caráter de duas etapas desse processo. A figura 4.6 mostra a região correspondente às proximidades da transição para o estado supercondutor em alguns dos campos magnéticos estudados.

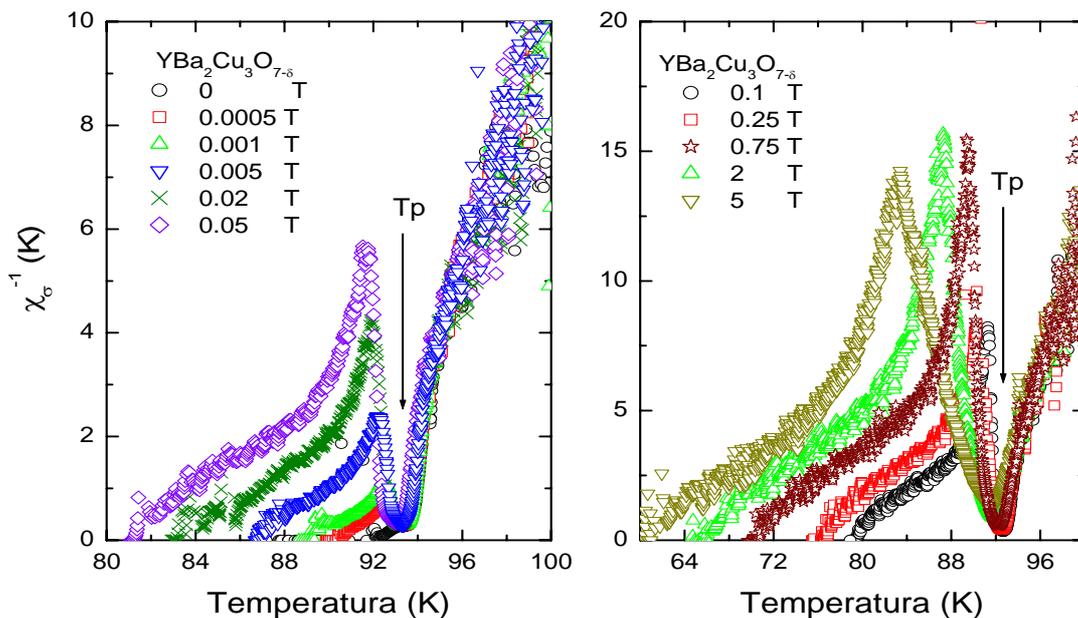


Figura 4.6 – Representação da transição resistiva na forma de χ_σ^{-1} em função da temperatura para alguns dos campos magnéticos aplicados na amostra YBCO. Acima de T_p a resistividade mostra efeitos das flutuações precursoras à transição de pareamento, enquanto que abaixo de T_p os regimes de flutuações correspondem à transição de coerência.

Em temperaturas acima do mínimo pronunciado que ocorre em $T \approx T_p$, o comportamento de χ_σ^{-1} depende fracamente do campo aplicado. Nesta região, os efeitos de flutuações na fase normal são dominantes. Abaixo de T_p , χ_σ^{-1} mostra um comportamento inteiramente distinto e fortemente dependente do campo magnético aplicado. À medida que decrescemos a temperatura a partir de T_p , observamos um máximo que se torna cada vez mais pronunciado quanto maior for a intensidade do campo magnético. Em temperaturas inferiores àquela do máximo, χ_σ^{-1} tende a zero com uma curvatura invertida com relação àquela que é vista em temperaturas acima de T_p . Este fato indica que os processos de flutuações termodinâmicas que dominam a região acima de T_p (transição de pareamento, onde são

relevantes as flutuações na amplitude do parâmetro de ordem do supercondutor) são inteiramente distintos daqueles que descrevem a aproximação ao estado de resistência nula (transição de coerência, caracterizada pelas flutuações na fase do parâmetro de ordem).

Utilizando-se o método descrito na seção anterior, na fase normal (para temperaturas acima de T_P (H)) identificamos sistematicamente regimes dominados por flutuações genuinamente críticas e Gaussianas, reproduzindo observações relatadas em diversos estudos anteriores^{74,75,76,77,78}. Nas proximidades imediatas de T_C , identifica-se um regime assintótico caracterizado pelo expoente λ_P . A figura abaixo é representativa destes resultados. A tabela 4.1 mostra os valores obtidos para λ_P . Nesta tabela, além do expoente crítico λ_P , estão também listados, para todos os campos magnéticos aplicados, a temperatura crítica T_C e o intervalo de temperatura reduzida $\varepsilon = \frac{T - T_C}{T_C}$ em que o regime assintótico é observado.

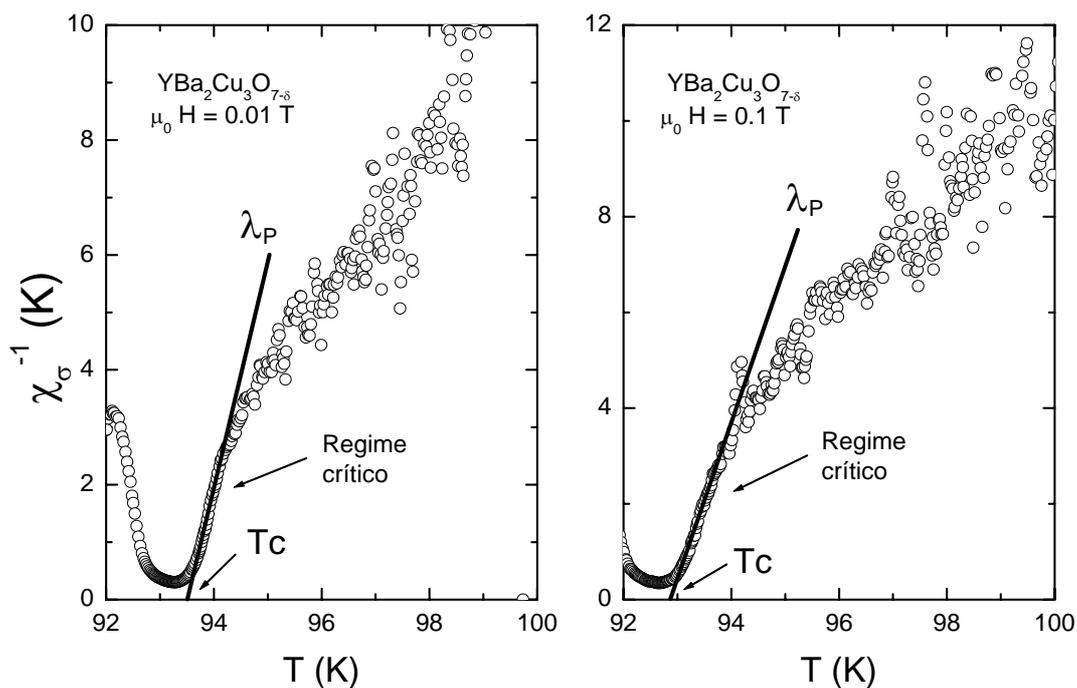


Figura 4.7 – Regime crítico assintótico identificado na fase normal para campos magnéticos aplicados de 0.01 e 0.1 T.

Amostra $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$		Expoente		
$\mu_0 H$ (T)	T_c (K)	λ_p	ε	$\overline{\lambda_p}$
0	93.77	0.22	0.0029 – 0.0048	0.22 ± 0.01
0.0005	93.73	0.23		
0.001	93.71	0.23		
0.002	93.66	0.23		
0.005	93.62	0.21		
0.01	93.55	0.23		
0.02	93.51	0.22		
0.035	93.41	0.25	0.0031 – 0.0061	0.26 ± 0.02
0.05	93.3	0.27		
0.1	92.92	0.28		
0.25	92.89	0.26		
0.5	92.66	0.34	0.0051 – 0.0082	0.35 ± 0.01
0.75	92.61	0.35		
1	92.59	0.35		
2	92.29	0.49	0.0108 – 0.0173	0.52 ± 0.04
3	92.02	0.48		
4	91.63	0.56		
5	91.37	0.55		

Tabela 4.1 – Expoente encontrado no regime assintótico imediatamente acima da temperatura T_p através do ajuste linear da equação 4.6. A temperatura crítica é obtida pela extrapolação do ajuste linear.

Conforme verifica-se na tabela 4.1, o valor do expoente que caracteriza o regime assintótico evolui com o aumento da intensidade do campo magnético. Para valores de campo magnético até 0.02 T, observou-se o expoente $\overline{\lambda_p} = 0.22 (\pm 0.01)$. Entre $\mu_0 H = 0.035$ T e $\mu_0 H = 0.25$ T este expoente evolui para $\overline{\lambda_p} = 0.26 (\pm 0.02)$. Para campos entre $\mu_0 H = 0.5$ T e $\mu_0 H = 1$ T, o expoente é $\overline{\lambda_p} = 0.35 (\pm 0.01)$. Por fim, em altos campos magnéticos, entre $\mu_0 H = 2$ T e $\mu_0 H = 5$ T, observa-se $\overline{\lambda_p} = 0.52 (\pm 0.04)$.

Conforme foi feito anteriormente⁷⁹, a interpretação dos expoentes observados na amostra YBCO é atribuída a regimes críticos ou Gaussianos. No caso de baixos campos, os pequenos valores encontrados para o expoente λ_p sugerem a ocorrência de regimes “super-críticos”^{17,80}. Espera-se que a transição para o estado supercondutor seja dominado por flutuações críticas 3D-XY. Segundo este modelo, $\lambda_p \approx 0.3$, o que é observado somente no

intervalo de campos intermediários. Supõe-se, assim, que o campo magnético tende a desestabilizar os regimes “super-críticos”, bem como o próprio regime 3D-XY. Na região de altos campos, o valor $\lambda_p \approx 0.5$ sugere que apenas restam as flutuações Gaussianas 3D.

Valores de expoentes menores que o expoente crítico $\lambda = 0.32$, previsto pelo modelo 3D-XY, foram observados em muitos sistemas, como por exemplo, no $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ policristalino⁷⁵ ($\lambda = 0.27$), no $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ texturizado⁷⁶ ($\lambda = 0.20$), no $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ policristalino⁷⁷ ($\lambda = 0.17$) e no $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ monocristalino⁷⁸ ($\lambda = 0.17$). A variedade de valores para o expoente crítico identificado no regime assintótico de flutuações não são previstos por nenhuma teoria de transição crítica, dificultando sua interpretação física. Uma das hipóteses propostas é que estes intervalos “super-críticos” na transição supercondutora correspondam a regimes precursores a uma transição fracamente de primeira ordem^{17,81}.

Com o aumento de intensidade do campo magnético, os regimes caracterizados por flutuações “além 3D-XY” são suprimidas, tal como anteriormente observado^{79,80}.

Os resultados para os expoentes críticos da condutividade na fase normal do YBCO são indicativos de que a supercondutividade neste sistema é um fenômeno genuinamente tridimensional. Este fato é importante para a interpretação dos resultados na região abaixo de T_C , que se constitui num dos objetivos principais deste trabalho.

4.3 Flutuações na Fase Supercondutora

Conforme foi apresentado anteriormente (figuras (4.1) e (4.2)), considerou-se na transição entre os estados normal e supercondutor de amostras granulares a existência de duas etapas bem definidas. Nesta seção é feita a análise das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica na região de temperatura definida entre T_P e T_{C0} . Nesta região, a condutividade é dominada por flutuações na fase do parâmetro de ordem supercondutor em diferentes grãos. O estado de resistência nula é alcançado mediante uma transição paracoerente-coerente⁴⁶, que ocorre em T_{C0} e que tem sido interpretada como um genuíno fenômeno termodinâmico de transição de fase. É importante ressaltar que neste regime a amplitude do parâmetro de ordem encontra-se totalmente desenvolvida e as flutuações termodinâmicas manifestam-se essencialmente na fase do parâmetro de ordem que, embora definida em grãos individuais, não guarda coerência entre os vários grãos. Neste sentido, espera-se que a termodinâmica que descreve o sistema seja a do modelo 3D-XY. Os resultados até agora obtidos^{77,79} mostram que a desordem é relevante, uma vez que os expoentes associados à paracondutividade não reproduzem os valores calculados para o caso de sistemas ordenados. Espera-se também que o comprimento de correlação para a transição de coerência seja da ordem do tamanho do grão. Portanto, a transição de coerência é um fenômeno crítico, característico de sistemas supercondutores granulares, que é dominado por flutuações de fase do parâmetro de ordem. As escalas de tamanho relevantes são da ordem de dezenas a centenas de nanômetros, que correspondem ao tamanho efetivo dos grãos supercondutores (região com parâmetro de ordem homogêneo) nos cupratos de alta temperatura crítica. É importante notar que estas dimensões não correspondem necessariamente ao tamanho dos grãos físicos no YBCO policristalino.

4.3.1 – Método de Análise, Flutuações na Condutividade e Transição de Coerência

Os resultados de condutividade elétrica na presença de campo magnético são analisados, na região abaixo da temperatura de pareamento T_P , com o mesmo conceito de derivada logarítmica empregado no estudo dos efeitos de flutuações termodinâmicas no

estado normal (equação 4.5). Neste caso, denotamos o excesso de condutividade através de leis de potência do tipo:

$$\Delta\sigma = B\varepsilon_0^{\lambda_C}, \quad (4.9)$$

onde B é uma amplitude e λ_C é o expoente crítico associado ao regime precursor à transição de coerência. A temperatura reduzida é definida por $\varepsilon_0 = \frac{T - T_{C0}}{T_{C0}}$ e T_{C0} é a temperatura crítica da transição paracoerente-coerente.

Tal como discutido na seção 4.2.1, a determinação de um comportamento linear no gráfico $1/\chi_\sigma$ versus T identifica o regime caracterizado pelo expoente crítico λ_C e a respectiva temperatura crítica T_{C0} . O gráfico da figura 4.8 ilustra a identificação do regime de flutuações precursor à transição de coerência. Observa-se que, contrastando com o comportamento observado na fase normal, χ_σ^{-1} apresenta uma curvatura positiva em função da temperatura na região paracoerente. Este comportamento assemelha-se aquele em geral mostrado pelo inverso da susceptibilidade magnética de um paramagneto nas proximidades da transição a um estado magneticamente ordenado. A analogia entre as transições paracoerente-coerente e paramagneto-ferromagneto foi notada e estudada por Rosenblatt e col⁸².

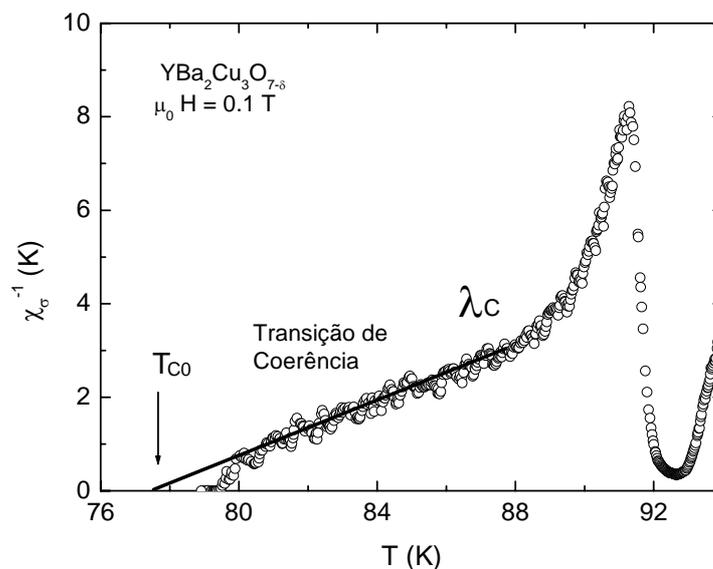


Figura 4.8 – Transição resistiva plotada como χ_σ^{-1} em função da temperatura. O regime precursor à transição de coerência é caracterizado pelo expoente λ_C e pela temperatura crítica T_{C0} .

Na amostra de YBCO estudada, identificamos um regime linear em χ_σ^{-1} na aproximação ao estado de resistência nula, consistente com a equação (4.9). O expoente crítico associado a este regime é λ_C e foi determinado nas medidas realizadas na presença de diversos campos magnéticos aplicados, conforme mostram as figuras 4.9, 4.10 e 4.11. Estes resultados estão listados na tabela 4.2. Em contraste com o comportamento crítico observado acima da transição de pareamento, o regime precursor à transição de coerência estende-se por um intervalo de temperaturas relativamente grande. Chama-se a atenção que o regime linear em χ_σ^{-1} foi observado até campos magnéticos de 3 T.

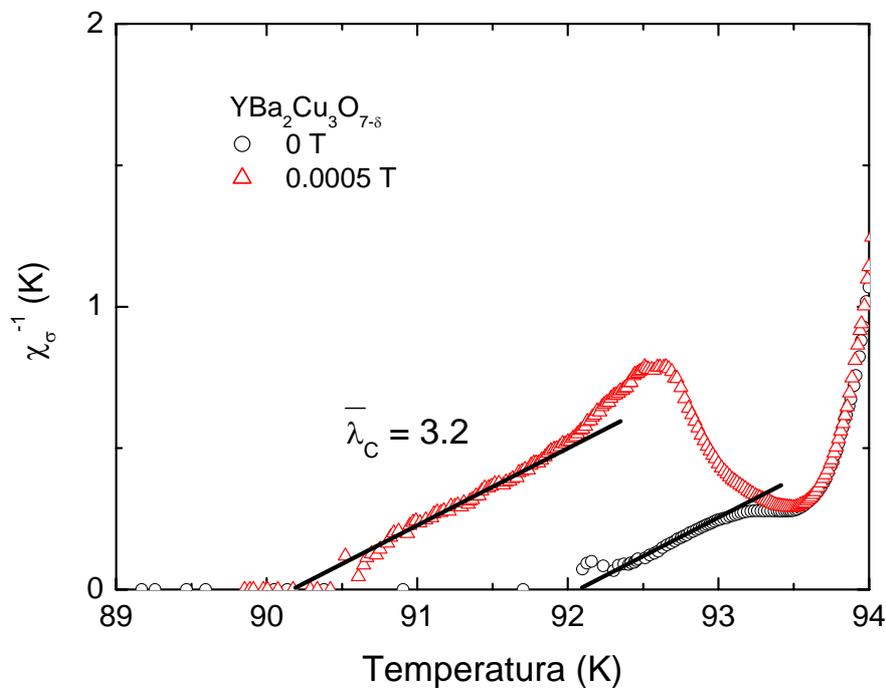


Figura 4.9 – Identificação do regime crítico na aproximação ao estado de resistência nula para campo magnético nulo e $\mu_0 H = 0.0005$ T.

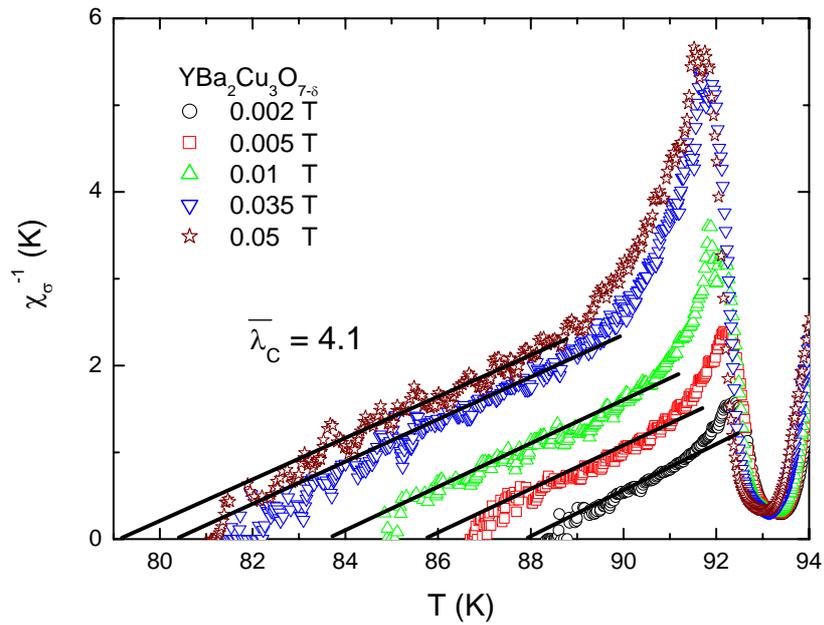


Figura 4.10 – Identificação do expoente λ_C na transição de coerência para $0.002 < \mu_0 H < 0.05$ T. O valor $\bar{\lambda}_C = 4.1 \pm 0.3$ corresponde à média das determinações.

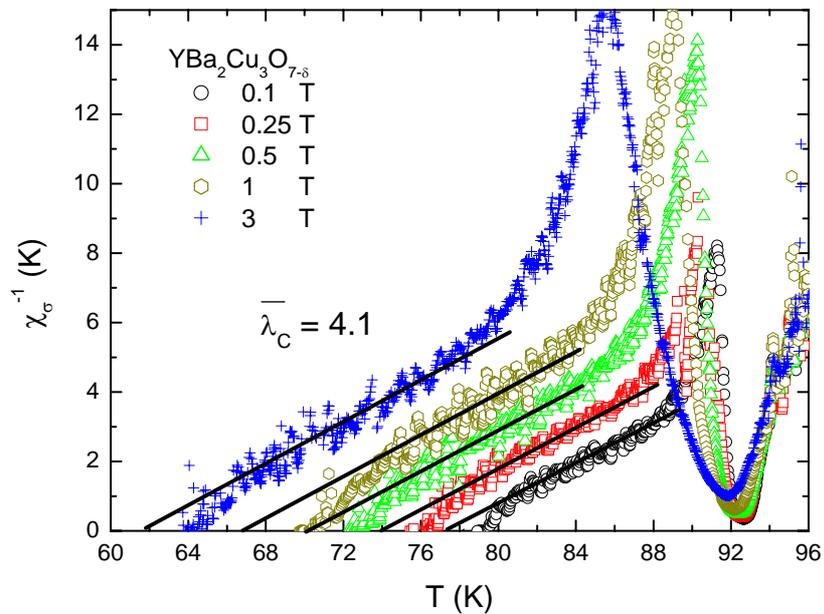


Figura 4.11 – Identificação do expoente correspondente à aproximação ao estado de resistência nula para campos magnéticos elevados.

YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}		Expoente	
μ ₀ H (T)	T _{C0} (K)	λ _c	$\overline{\lambda_c}$
0	92.12	3.1	3.2 ± 0.1
0.0005	90.1	3.2	
0.001	89.04	4.1	
0.002	87.94	3.9	4.1 ± 0.3
0.005	85.86	4.2	
0.01	83.74	4.0	
0.02	82.55	4.0	
0.035	80.27	4.2	
0.05	79.02	4.3	
0.1	77.18	3.9	
0.25	73.34	3.9	
0.5	68.27	4.3	
0.75	67.43	3.9	
1	66.75	4.1	
2	61.97	4.2	
3	60.91	4.0	
4	-	-	
5	-	-	

Tabela 4.2 – Expoentes encontrados no regime de flutuações na fase supercondutora a partir do ajuste linear na curva $1/\chi_\sigma$ em função da temperatura. A temperatura T_{C0} é determinada pela interseção do comportamento linear de χ_σ^{-1} com o eixo da temperatura e denota a transição de coerência. O regime identificado pelo expoente λ_c corresponde à fase paracoerente.

No diagrama H-T da figura 4.12 é mostrada a região onde o comportamento em leis de potências na aproximação ao estado de resistência nula é observado em nossa amostra. Observa-se, abaixo de T_C , que o regime de flutuações na região paracoerente inicialmente alarga-se com o aumento do campo magnético. Porém, em campos superiores a 3 T não é

mais observado o comportamento em lei de potência nas curvas de χ_σ^{-1} em função de T . Provavelmente, nesta região de fortes campos, os efeitos relacionados à transição de coerência são suprimidos ou mascarados pela fenomenologia relacionada à dinâmica de vórtices de Abrikosov.

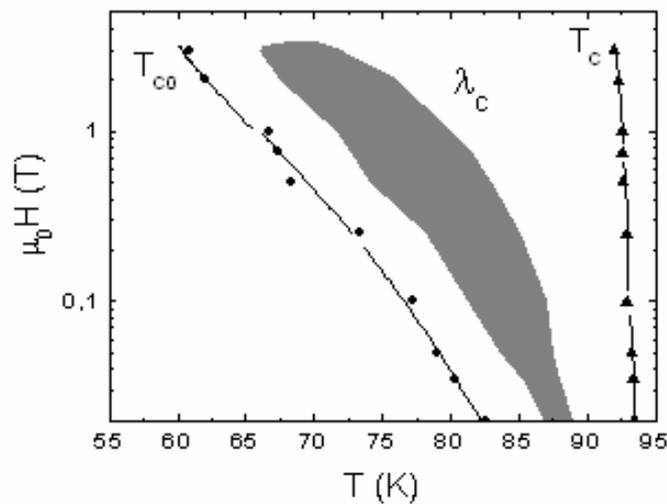


Figura 4.12 – Diagrama H - T para o regime de flutuações precursor ao estado de resistência nula. O regime assintótico com expoente λ_c que define a temperatura crítica T_{c0} não é observado em campos maiores que 3 T.

Nas medidas realizadas em campo nulo e $\mu_0 H = 0.0005$ T, observa-se (ver figura 4.9) um regime linear em χ_σ^{-1} que leva ao expoente $\bar{\lambda}_c = 3.2 \pm 0.1$. Por outro lado, pode-se observar que as medidas com campo magnético entre 0.001 T e 3 T indicam um expoente característico $\bar{\lambda}_c = 4.1 \pm 0.3$. Dessa forma, parece evidente a existência de um crossover no comportamento crítico nas proximidades da transição de coerência causada pela aplicação de campos magnéticos de baixa intensidade. Este comportamento já foi verificado em outros resultados experimentais^{45,79,83}.

4.3.2 – Interpretação dos expoentes associados à transição de coerência

No problema de percolação o comprimento de correlação em qualquer dimensão é dado por $\nu = 4/3$. Por outro lado, Kawamura e seus colaboradores⁴⁸, estudando a versão chiral para o Hamiltoniano de vidro-de-fases, obtiveram que o expoente crítico para o comprimento de coerência é $\nu_{CG} = 1.3$ e o expoente crítico para a função de correlação do parâmetro de ordem é $\eta_{CG} = -0.2$. Para um supercondutor inhomogêneo com uma distribuição aleatória de junções de tipo π , E. Granato⁸⁴ encontra $\nu = 1.2$. No modelo de vidro-de-fases, segundo a versão gauge-glass, o expoente ν também tem um valor próximo a $4/3$. Realizando simulações de Monte-Carlo baseadas no Hamiltoniano de tunelamento de fases, Olson e Young⁸⁵ encontraram $\nu = 1.4 \pm 0.2$. Incluindo a anisotropia no modelo gauge-glass, P. Olson⁸⁶ obtém $\nu = 1.5 \pm 0.3$. Utilizando a representação de vórtices, incluindo defeitos estendidos na rede, simulações realizadas por J. Lidmar⁸⁷ fornece $\nu \approx 1.3$. Assim, parece haver uma boa concordância entre diferentes autores sobre a classe de universalidade estática do modelo vidro-de-vórtices. Em ambas as versões, gauge-glass e chiral glass, o expoente para o comprimento de correlação é dado por $\nu \cong 4/3$.

Entretanto, existe um menor número de resultados calculados para η . As simulações de Olson e Young⁸⁵ para o modelo gauge-glass fornecem $\eta = -0.47 \pm 0.07$, que difere significativamente do valor previsto por Kawamura ($\eta_{CG} = -0.2$). A partir de uma análise baseada em escalonamento de tamanho finito, Lidmar⁸⁷ obtém $\eta = -0.4$.

Uma vez que $\lambda = \nu(2 + z - d - \eta)$, tomando-se $\eta = -0.2$ e substituindo-se o valor para $\bar{\lambda}_c$ encontrado para nossa amostra, determinamos que, no regime de campo nulo e $\mu_0 H = 0.0005$, o expoente crítico dinâmico assume o valor $z \approx 3.1$. Se assumirmos que η tem o valor dado por Olson e Young, obtemos $z \approx 2.8$. Estes valores para z são compatíveis com as previsões feitas por Wengel e Young⁸⁸ a partir de simulações de Monte Carlo baseadas no Hamiltoniano da equação 2.19. Estes autores encontraram que $z \approx 3.1$. Chama-se a atenção que o expoente $\bar{\lambda}_c \approx 3$ foi observado em experiências realizadas em campo magnético nulo por Rosenblatt e colaboradores⁸².

Na presença de campo, o valor do expoente da condutividade aumenta para $\bar{\lambda}_c = 4.1$. Supondo que a classe de universalidade estática da transição não se altera, ou seja, utilizando-se os mesmos valores para ν e η , nossos resultados para campos superiores a $\mu_0 H = 0.001$ T

correspondem a um expoente dinâmico $z \approx 4$. Este valor para z é característico de sistemas cuja dinâmica é do tipo vidro-de-spin⁸⁹. Nota-se também que Olson e Young previram que o expoente dinâmico da transição de gauge-glass corresponde a⁸⁵ $z \approx 4$.

Assim, o comportamento da condutividade elétrica nas proximidades do estado de resistência nula é consistente com a ocorrência de uma transição de fase em T_{C0} , na qual a desordem e a frustração são relevantes. A diferença encontrada entre os valores obtidos para $\bar{\lambda}_c$ no limite em que o campo magnético tende a zero e na presença de campo pode ser atribuída à existência de um crossover na dinâmica crítica da transição de coerência. Uma vez que, em ambos os casos, a transição de coerência é descrita pelo mesmo Hamiltoniano e os expoentes estáticos não se alteram, a classe de universalidade para esta transição é do tipo 3D-XY com desordem relevante.

4.3.3 – Scaling da transição de coerência

O comportamento apresentado por χ_σ^{-1} na região paracoerente sob diferentes campos magnéticos sugere que sua descrição pode ser feita em termos de uma lei de escala de modo que todos os resultados possam ser representados por uma mesma curva. Esta propriedade representa um teste de validação para a criticalidade da transição de coerência. Segundo a proposta de escalonamento para a transição vidro-de-vórtices⁷⁵, o comportamento das flutuações na condutividade nas proximidades da transição de coerência é dado por

$$\Delta\sigma \approx H^{-\frac{1}{2}(2+z-d)} S_{\pm} \left(\frac{\varepsilon_0}{H^{1/2\nu}} \right) \quad , \quad (4.12)$$

onde $\varepsilon_0 = \frac{T - T_{C0}}{T_{C0}}$ e S_{\pm} são as funções de scaling acima e abaixo de T_{C0} .

Segundo Fisher e colaboradores, podemos supor que⁹⁰ $(T_C - T_{C0}(H)) \approx H^{1/2\nu}$. Por outro lado, utilizando-se a variável de scaling $\tau = \frac{T - T_{C0}(H)}{T_C - T_{C0}(H)}$ introduzida por Kötzler⁹¹,

encontra-se que

$$\frac{d}{d\tau} \ln S_+(\tau) = \chi_\sigma [T_C - T_{C0}(H)] \quad (4.13)$$

para o regime de flutuações compreendido no intervalo de temperaturas entre a transição de coerência e a transição de pareamento.

Dessa forma, curvas de $\chi_\sigma [T_C - T_{C0}(H)]$ em função de τ correspondem a uma descrição do comportamento de χ_σ^{-1} na forma de uma lei de escala. Conforme se vê na figura 4.13, as curvas obtidas sob diferentes campos magnéticos aplicados coincidem através do scaling proposto na equação 4.13 no intervalo de temperaturas reduzidas entre $\tau \approx 0.1$ e $\tau \approx 0.75$.

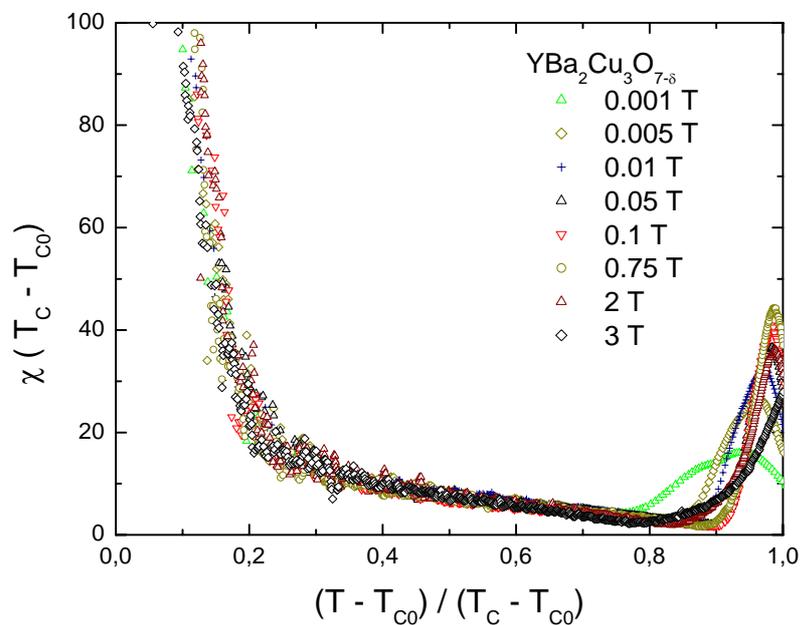


Figura 4.13 – Scaling de χ_σ^{-1} no regime correspondente à região paracoerente.

O escalonamento mostrado na figura 4.13 é bom num grande intervalo de temperaturas reduzidas, o qual supera significativamente o intervalo em que o regime assintótico em lei de potências é observado. Nas vizinhanças de T_C o escalonamento deteriora-se porque esta região é dominada pelo espectro de flutuações intragrãos, que é caracterizado por expoentes ν , η e z cujos valores são muito diferentes daqueles que descrevem o comportamento na região próxima a T_{C0} . A forma de χ_σ^{-1} entre o máximo granular e o mínimo onde está situada T_C sugere que esta temperatura representa o ponto crítico relevante para o excesso de condutividade neste particular intervalo de temperaturas. Este comportamento é característico dos sistemas granulares, nos quais o pequeno tamanho

das regiões supercondutoras permite a observação de efeitos de flutuações da condutividade em temperaturas inferiores à T_C .

Quando a temperatura se aproxima de T_{C0} , observa-se um desvio sistemático nas curvas de χ_σ^{-1} versus T nas proximidades imediatas de T_{C0} , tal como pode visto nas figuras 4.10 e 4.11. Trata-se de uma região estreita de temperaturas, na qual os pontos experimentais estão sujeitos a grandes erros devido à proximidade do estado de resistência nula. Ainda assim, numa análise qualitativa, supondo que χ_σ^{-1} se comporta linearmente nesta região, identificamos o expoente $\bar{\lambda}_{ass}^c = 1.9 \pm 0.4$, conforme ilustra a figura 4.14.

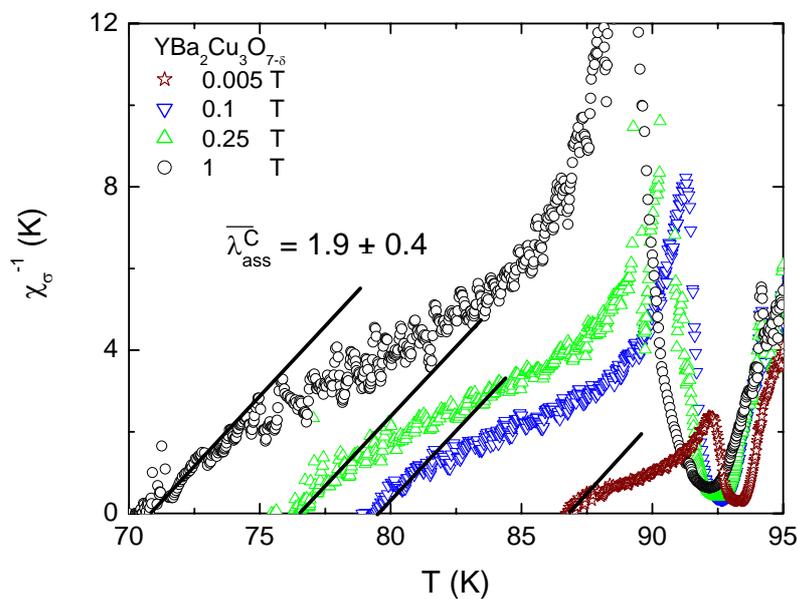


Figura 4.14 – Regime observado nas proximidades imediatas de T_{C0} , cujo expoente é $\bar{\lambda}_{ass}^c = 1.9 \pm 0.4$.

Este valor é significativamente menor que $\bar{\lambda}_C = 4.1$ e sugere a ocorrência de um crossover na fenomenologia crítica nas proximidades imediatas da transição de coerência. Notamos que a diminuição no expoente efetivo da condutividade tende a reforçar a hipótese de existência da transição de coerência, pois tal comportamento é incompatível com a aproximação exponencial à resistência nula, típica dos processos clássicos de deriva de fluxo ativados termicamente. A origem deste crossover pode estar relacionada a uma mudança na classe de universalidade da transição. Nas proximidades imediatas de T_C , o comprimento de coerência diverge e, eventualmente, torna-se maior que o comprimento de correlação da estrutura de desordem. Neste caso, a granularidade deixa de ser relevante e o sistema passa a ter comportamento homogêneo. Espera-se, então, que a criticalidade passe a ser descrita pelo modelo 3D-XY do caso ordenado, na qual os expoentes críticos estáticos e dinâmicos são significativamente menores, como visto nas seções 2.1.1 e 4.2.

4.4 – Linha de Irreversibilidades Magnéticas

A linha de irreversibilidades magnéticas é amplamente estudada pelos pesquisadores desta área que buscam o entendimento quanto às propriedades do sistema de vórtices dos cupratos supercondutores. Em um diagrama de fases do tipo $H - T$ (campo magnético em função da temperatura), a linha de irreversibilidades denota a separação entre uma fase magneticamente reversível, que ocorre em altas temperaturas, de uma região de baixas temperaturas cujo comportamento magnético é irreversível.

Nesta seção, é feita uma descrição do comportamento magnético do supercondutor granular YBCO. Apresenta-se um estudo da linha de irreversibilidades magnéticas determinada a partir de medidas de magnetização DC e magnetoresistência.

4.4.1 – Comportamento magnético do supercondutor granular YBCO

Através das medidas de magnetização DC na amostra YBCO, que estão ilustradas na figura 4.15 para alguns dos campos magnéticos utilizados, é possível realizar um estudo qualitativo da evolução magnética deste sistema em função da temperatura. Inicialmente, observamos que na região de altas temperaturas (correspondente ao estado normal) a amostra tem uma resposta paramagnética frente à aplicação de campos magnéticos. A amostra apresenta uma transição para um comportamento diamagnético na temperatura T_C . Isto ocorre devido à blindagem magnética no caso das medidas feitas segundo o procedimento ZFC e ao efeito Meissner no caso do procedimento FC. Na fase supercondutora, é clara a presença de fortes efeitos de aprisionamento de vórtices, o que pode ser constatado a partir da grande diferença existente entre as curvas ZFC e FC. Nota-se, porém, que a separação entre essas curvas ocorre em temperaturas nitidamente inferiores à temperatura de transição. Isto revela a existência de um regime reversível abaixo de T_C . A temperatura na qual ocorre a separação entre as curvas ZFC e FC é deslocada para temperaturas mais baixas com o aumento do campo magnético.

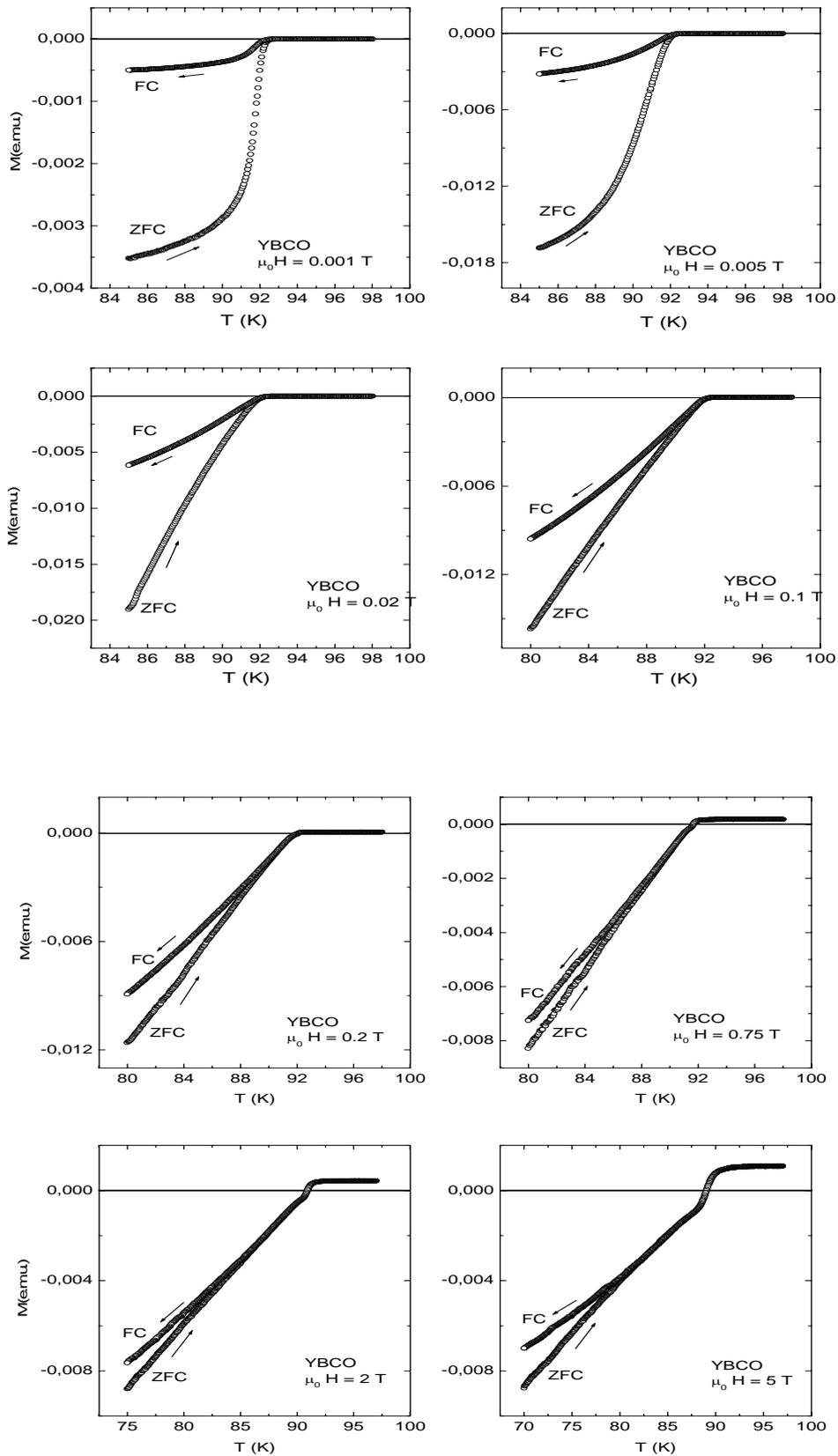


Figura 4.15 – Medidas de magnetização DC em função da temperatura nos procedimentos ZFC e FC para a amostra YBCO em alguns dos campos magnéticos estudados.

4.4.2 – Determinação da linha de irreversibilidades

4.4.2.1 - Medidas de magnetização

As medidas de magnetização apresentadas na seção anterior mostram claramente o fenômeno da irreversibilidade magnética. Conforme já discutido no capítulo 1, a separação entre as curvas ZFC e FC denota a temperatura de irreversibilidade, $T_{\text{irr}}(H)$.

Extrair a temperatura de irreversibilidade diretamente da superposição entre as curvas ZFC e FC introduz muitas incertezas. Como a aproximação entre ambas é feita tangencialmente e, com a presença inevitável de gradiente de temperatura, há dificuldade em se identificar o ponto exato onde as duas curvas se encontram. Para determinar com maior precisão a temperatura de irreversibilidade a partir destas medidas, os resultados foram processados numericamente com o objetivo de igualar as temperaturas entre as curvas ZFC e FC para cada campo magnético específico. Isto permite a operação matemática de subtração dos arquivos de dados correspondentes. A temperatura de irreversibilidade é identificada a partir do ponto em que a diferença $M_{\text{FC}} - M_{\text{ZFC}}$ torna-se nula. Com o intuito de reduzir ainda mais as incertezas, foram realizadas ao menos duas sequências de medidas ZFC e FC para cada valor de campo magnético estudado e a temperatura de irreversibilidade considerada foi obtida a partir de um processo de média. A figura 4.16 ilustra o procedimento para a determinação de $T_{\text{irr}}(H)$ para algumas das medidas realizadas.

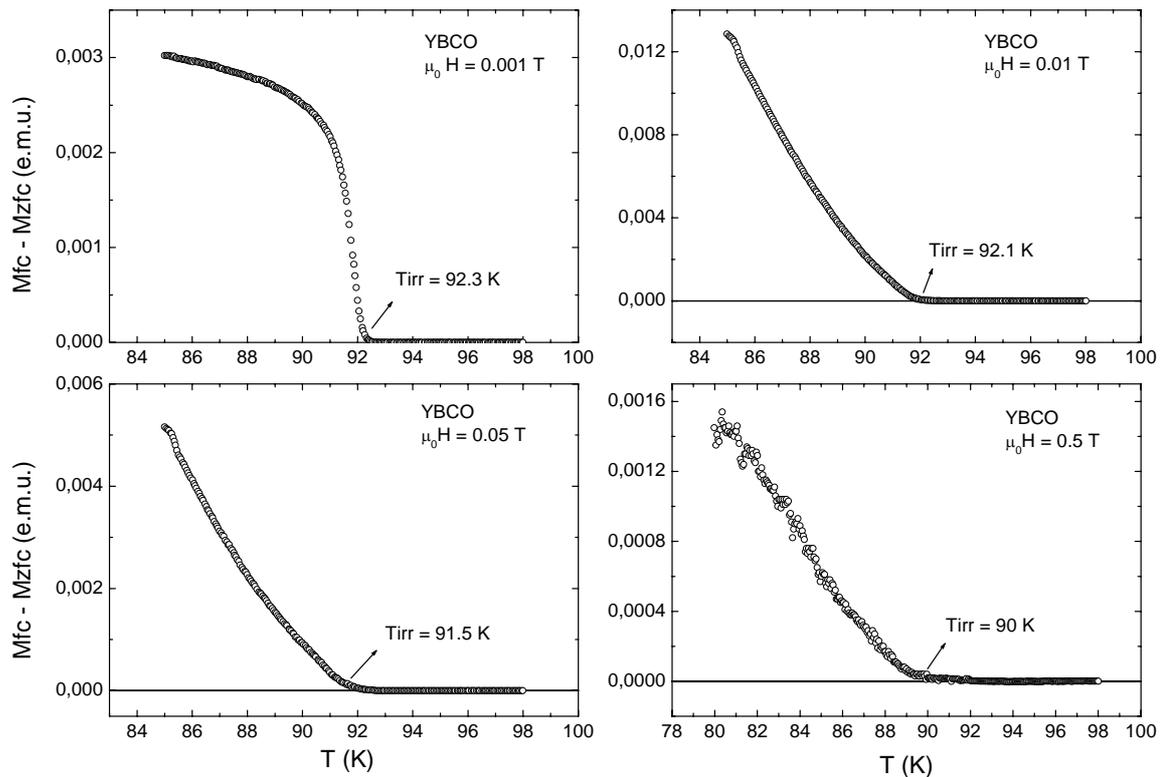


Figura 4.16 – As temperaturas de irreversibilidades são determinadas no ponto onde a diferença entre as magnetizações ZFC e FC se anula.

4.4.2.2 – Medidas de magnetoresistência

Outra técnica^{92,93} que torna possível a obtenção da linha de irreversibilidades é a utilização dos procedimentos ZFC e FC em curvas de magnetoresistência. Neste caso, a temperatura de irreversibilidade é determinada pelo ponto de divergência entre as curvas ρ_{ZFC} e ρ_{FC} , onde ρ representa a resistividade. O comportamento reversível é identificado sempre que $\rho_{FC} - \rho_{ZFC} = 0$.

Dessa forma, foram também efetuadas medidas de magnetoresistência na amostra YBCO segundo os procedimentos ZFC e FC com as mesmas intensidades de campo magnético utilizadas nas medidas de magnetização. Alguns exemplos desta medidas estão ilustrados na figura 4.17.

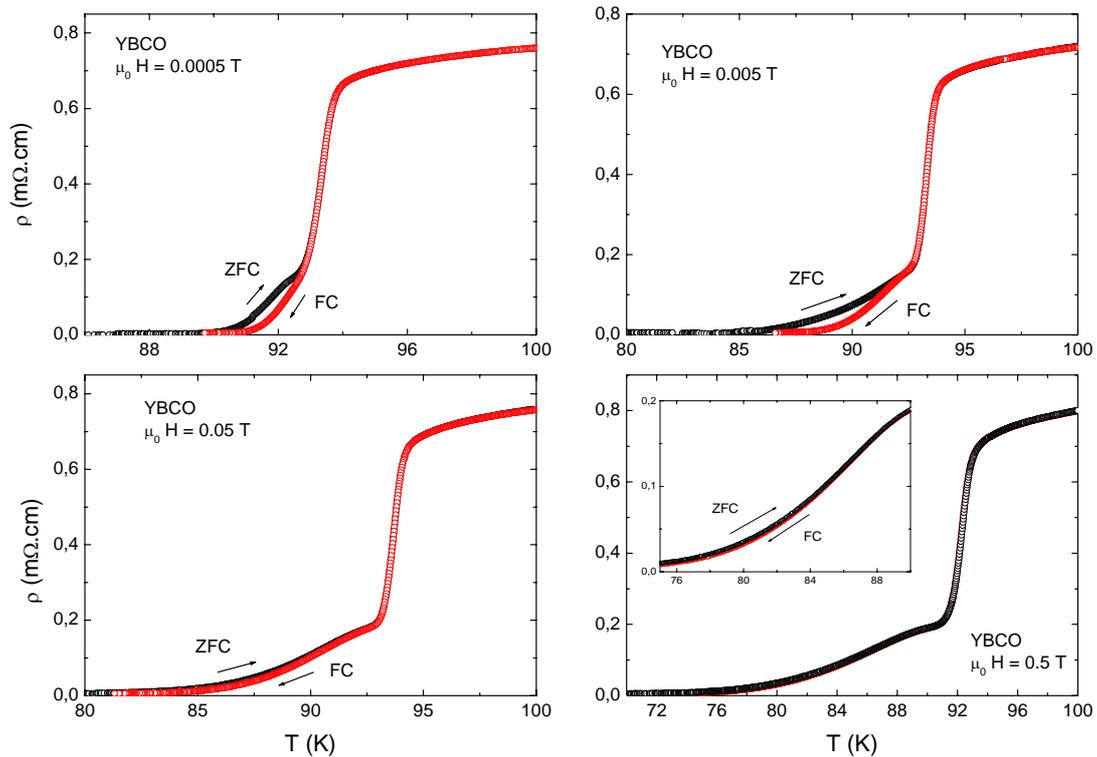


Figura 4.17 – Medidas de resistividade elétrica em função da temperatura realizadas segundo os procedimentos ZFC e FC para alguns dos campos estudados. Para altos valores de campo não se observam os efeitos de irreversibilidade.

Verifica-se que a uma dada temperatura, que é coincidente (dentro da imprecisão experimental) com a temperatura na qual são observados os efeitos de irreversibilidades na magnetização, ocorre a separação entre as curvas ρ_{ZFC} e ρ_{FC} , permitindo a determinação da temperatura de irreversibilidade. Para uma identificação mais precisa, realizamos a subtração entre os arquivos de dados e, no ponto em que $\rho_{FC} - \rho_{ZFC}$ torna-se diferente de zero, determina-se a temperatura de irreversibilidade magnética. A figura 4.18 mostra curvas $\rho_{FC} - \rho_{ZFC}$ para algumas das medidas de magnetoresistência realizadas. As temperaturas de irreversibilidade são determinadas quando $\rho_{FC} - \rho_{ZFC} = 0$. Com este método, a incerteza na determinação da temperatura de irreversibilidade é da ordem de 0.7 K.

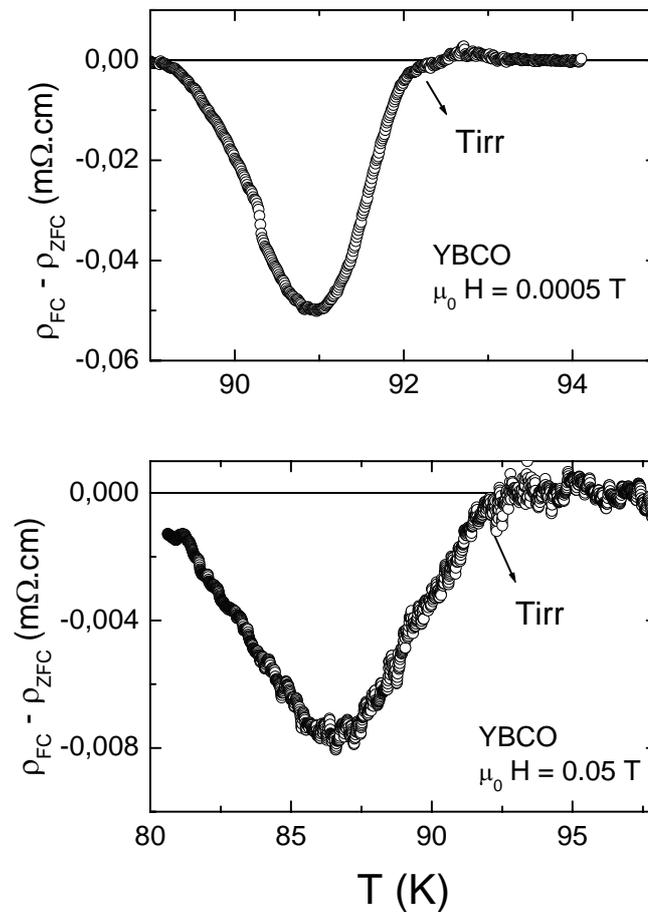


Figura 4.18 – A diferença entre as curvas de magnetoresistência medida segundo os procedimentos ZFC e FC permite a obtenção da temperatura de irreversibilidade na região de baixos campos aplicados.

A tabela 4.3 mostra as temperaturas de irreversibilidades magnética em função do campo magnético, determinadas a partir dos métodos apresentados anteriormente. A ocorrência do fenômeno de irreversibilidade foi observado nas medidas de magnetoresistência até campos aplicados de 0.75 T. Convém ressaltar que as temperaturas de irreversibilidades determinadas com as duas técnicas são coincidentes dentro da imprecisão experimental.

YBa ₂ Cu ₃ O _{7-δ}	<i>Magnetização</i>	<i>Magneto-resistência</i>
$\mu_0 H$ (T)	T_{irr} (K)	T_{irr} (K)
0.0005		92.3 ± 0.25
0.001	92.25 ± 0.1	92.2 ± 0.25
0.002	92.2 ± 0.1	92.15 ± 0.3
0.005	92.1 ± 0.15	92 ± 0.5
0.01	91.95 ± 0.1	91.9 ± 0.3
0.02	91.75 ± 0.2	91.8 ± 0.4
0.035	91.55 ± 0.2	91.5 ± 0.5
0.05	91.3 ± 0.2	91.4 ± 0.5
0.075	91 ± 0.2	
0.0875	90.9 ± 0.3	
0.1	90.85 ± 0.25	90.7 ± 0.6
0.175	90.75 ± 0.3	
0.25	90.65 ± 0.25	90.4 ± 0.5
0.375	90.4 ± 0.3	
0.5	90 ± 0.4	89.8 ± 0.6
0.625	89.5 ± 0.4	
0.75	89.1 ± 0.5	88.9 ± 0.7
0.875	88.4 ± 0.5	
1	87.9 ± 0.7	
1.5	87.1 ± 0.8	
2	86 ± 0.8	
3	84.5 ± 1.0	
4	82.6 ± 1.0	
5	81.5 ± 1.0	

Tabela 4.3 – Temperaturas de irreversibilidade magnética determinadas a partir das medidas de magnetização DC e magneto-resistência.

4.4.3 – Análise da linha de irreversibilidades

A partir dos resultados experimentais listados na seção anterior, traçamos para as temperaturas de irreversibilidade o diagrama H-T mostrado na figura 4.19. Observamos que o comportamento da linha de irreversibilidades sofre uma mudança de curvatura em campos magnéticos próximos a 0.1 T, retornando para sua curvatura inicial em campos em torno de 1 T. Este fenômeno é frequentemente observado em amostras granulares dos supercondutores de alta temperatura crítica^{78,79}.

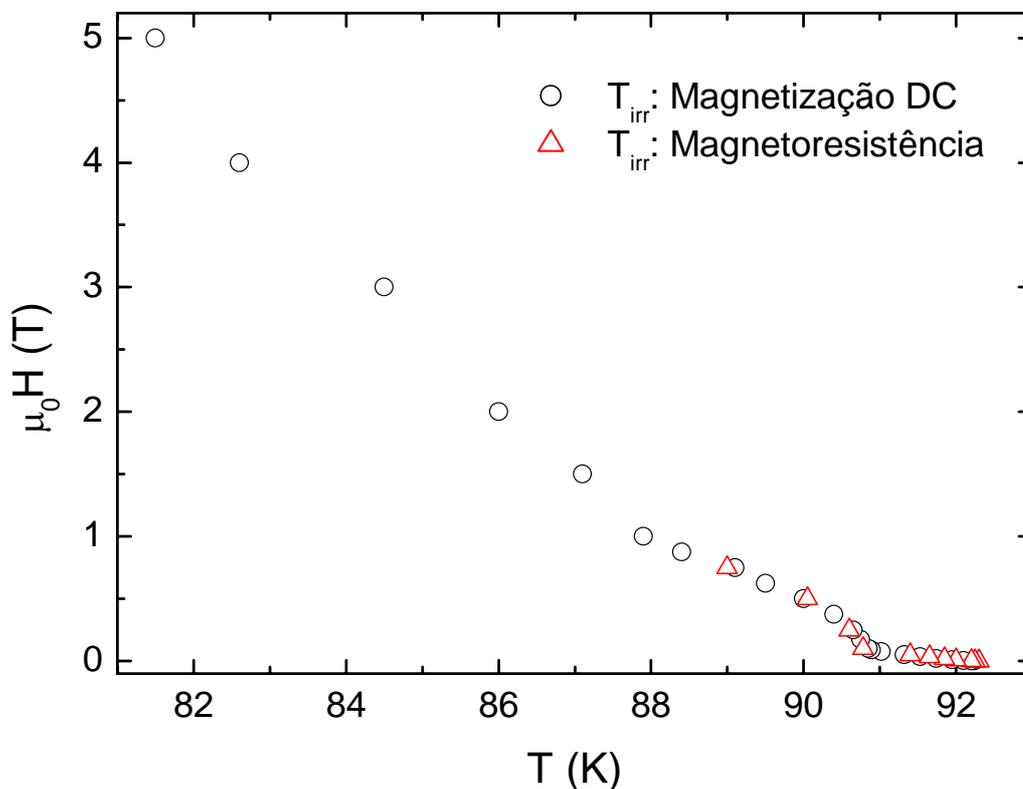


Figura 4.19 – Resultados experimentais para a linha de irreversibilidades magnéticas, representados num diagrama H-T. Pontos em círculos representam temperaturas de irreversibilidades obtidas através da magnetização, ao passo que pontos em triângulos representam temperaturas obtidas através da magnetoresistência. Uma mudança de curvatura é observada em campos magnéticos próximos a 0.1 T.

Observando-se com mais detalhe a região correspondente a baixos campos magnéticos aplicados (ver figura 4.20), nossos resultados indicam que o comportamento da linha de irreversibilidades pode ser descrita em termos de um crossover entre linhas do tipo Almeida-Touless⁹⁴ e Gabay-Toulouse⁹⁵.

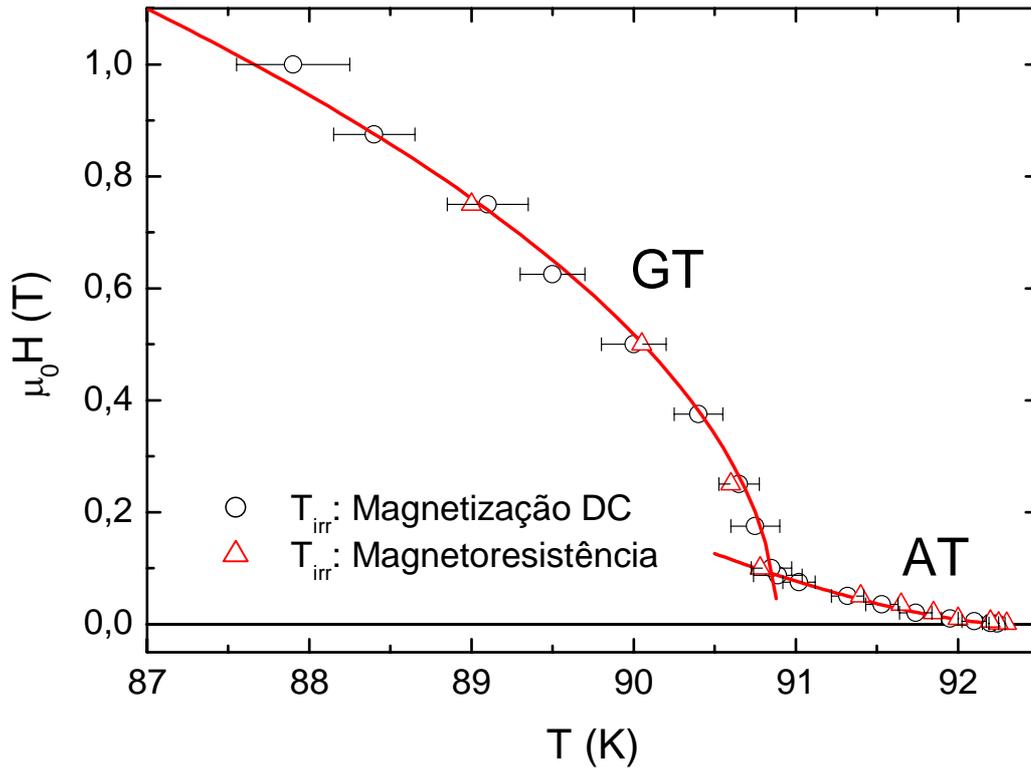


Figura 4.20 – Diagrama de fases H-T para a linha de irreversibilidades observado na região de baixos campos magnéticos aplicados. Para $H < 0.1$ T, a linha de irreversibilidades é bem descrita por um comportamento do tipo Almeida-Touless (curva AT), enquanto que na região de $0.1 < H < 1$ T, identifica-se um comportamento do tipo Gabay-Toulouse (curva GT).

No limite de baixos campos magnéticos (até 0.1 T), é possível descrever a linha de irreversibilidades com um comportamento do tipo Almeida-Touless (AT)⁹⁴, segundo o qual:

$$|T_{irr}(H) - T_{irr}^{AT}(0)| \approx H^{\frac{2}{3}}, \quad (4.14)$$

onde $T_{irr}(H)$ é a temperatura de irreversibilidade na presença do campo magnético e $T_{irr}^{AT}(0)$ é a temperatura de irreversibilidade extrapolada para campo magnético nulo.

Experimentalmente, $T_{irr}^{AT}(0)$ é praticamente coincidente com a temperatura de pareamento T_C .

Quando os valores de campo magnético atingem 0.1 T, ocorre um crossover para um comportamento do tipo Gabay-Toulouse (GT), segundo o qual a linha de irreversibilidades é descrita pela equação⁹⁵

$$|T_{irr}(H) - T_{irr}^{GT}(0)| \approx H^2 \quad . \quad (4.15)$$

O ajuste fenomenológico para a linha de irreversibilidades é feito genericamente através da expressão

$$H = H_0 \left(1 - \frac{T_{irr}(H)}{T_{irr}(0)} \right)^\gamma \quad . \quad (4.16)$$

Assim, na região $H < 0.1$ T (que é representada pela curva “AT”) determinamos que os coeficientes para o ajuste são $H_0 = 48.49$ T, $T_{irr}^{AT}(0) = 92.3$ K e o expoente assume o valor $\gamma = 1.51 \pm 0.04$.

O ajuste para $0.1 < H < 1$ T (região representada pela curva rotulada de “GT”) fornece os parâmetros $H_0 = 5.48$ T, $T_{irr}^{GT}(0) = 90.9$ K e o expoente é $\gamma = 0.51 \pm 0.02$.

Para campos superiores a 1 T, nota-se que a linha de irreversibilidades novamente inverte sua curvatura, desviando do comportamento GT e sugerindo a ocorrência de um novo crossover para um comportamento descrito por outro tipo de fenomenologia. Tomando-se o ajuste pela equação (4.16), verifica-se que a linha de irreversibilidades para altos campos também obedece à lei de potências dada pela equação (4.16) (ver figura 4.21), onde os coeficientes são $H_0 = 124.75$ T, $T_{irr}^{FC}(0) = 91.33$ K e o expoente tem valor $\gamma = 1.45 \pm 0.03$. Supomos que nesta região, a linha de irreversibilidades represente uma linha de depinning, tal como previsto pela teoria de flux-creep gigante⁹⁶. Acima de T_{irr} , vórtices de Abrikosov se movimentam livremente enquanto que, em temperaturas abaixo do limite irreversível, ocorre o aprisionamento destes vórtices. Este processo é governado por ativação térmica. Chamamos a atenção que o ajuste de altos campos não descreve a linha de irreversibilidades na sua totalidade.

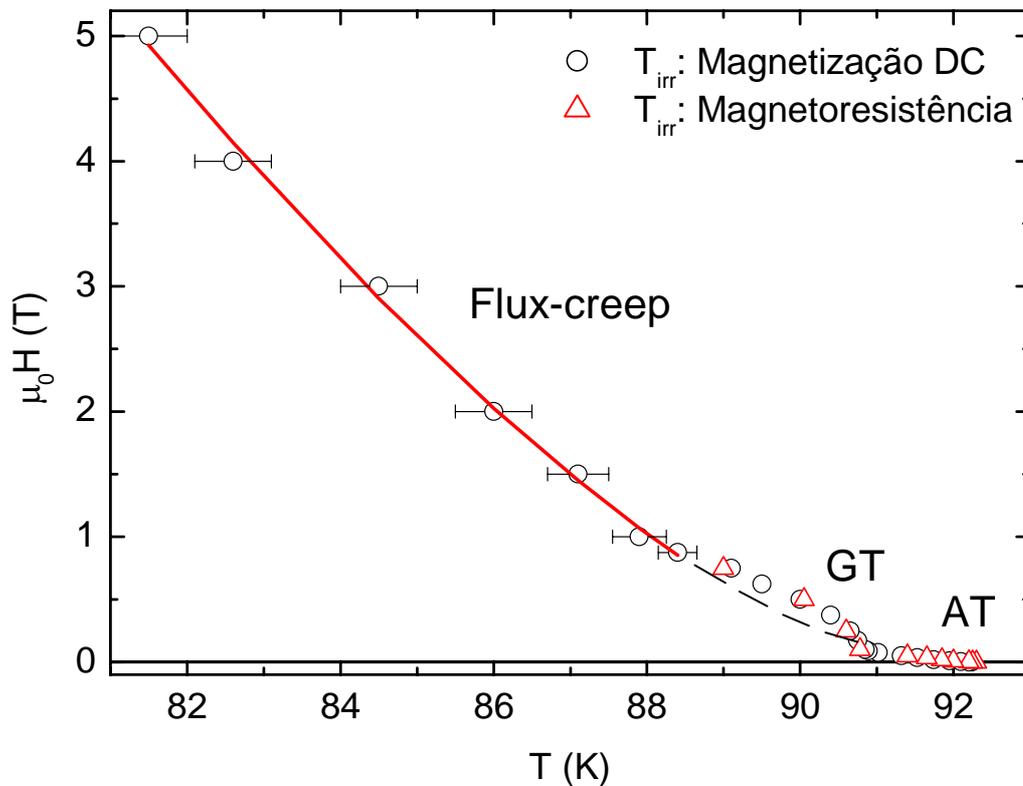


Figura 4.21 – Um comportamento previsto pela teoria de flux-creep gigante é identificado numa região de altos campos aplicados da linha de irreversibilidades magnéticas. Contudo, a teoria não prevê o crossover para o comportamento GT.

Vários são os modelos propostos para explicar o comportamento da linha de irreversibilidade nos supercondutores granulares de alta temperatura crítica.

O modelo de movimento dos vórtices por ativação térmica propõe que a linha do tipo Almeida-Thouless seja o resultado de um efeito de flux-creep gigante⁹⁶, o qual torna-se possível devido às fracas forças de pinning características dos cupratos supercondutores. Porém, este modelo não prevê a mudança para o comportamento do tipo Gabay-Toulouse, como pode ser observado em nossos resultados.

Uma outra descrição é dada em termos da fusão da rede de vórtices, produzidas por flutuações térmicas e quânticas⁹⁷. Usando o critério de Lindemann num meio anisotrópico, Houghton e colaboradores⁹⁸ determinaram que a linha de fusão em baixos campos deveria ser expressa por um comportamento do tipo $H^{1/2}$. Porém, nossos resultados mostram uma

dependência do tipo $H^{2/3}$. A mudança para o comportamento GT também não é descrita por este modelo. O modelo de fusão da rede de vórtices é relevante nas amostras monocristalinas bem ordenadas, especialmente em altos campos magnéticos aplicados. Contudo, dificilmente se aplica ao comportamento da linha de irreversibilidade nas amostras granulares na região de baixos campos aplicados.

4.4.3.1 – Discussão qualitativa sobre a origem da linha de irreversibilidades magnéticas

O comportamento da linha de irreversibilidades observado em nossa amostra no limite de altas temperaturas e baixos campos magnéticos (ver figura 4.20), ou seja, a passagem de um regime AT descrito pela equação (4.14) para um regime GT expresso pela equação (4.15) é característico de sistemas magnéticos do tipo vidro-de-spin⁹⁹. Neste caso, a interpretação para este fenômeno foi originalmente dada em termos da teoria de campo médio. Neste modelo, é prevista a ocorrência do crossover GT - AT quando a energia de anisotropia torna-se comparável à energia associada ao campo magnético aplicado¹⁰⁰. Dessa forma, o vidro-de-spin comporta-se como um sistema de Heisenberg (spin com três componentes espaciais) em alto campo, e a temperatura crítica de congelamento $T_g(H)$ segue o comportamento de tipo GT. À medida que a intensidade do campo magnético é diminuída, a energia de anisotropia torna-se relevante frente à energia devida ao campo e a variação de $T_g(H)$ em função da temperatura passa a ser do tipo Almeida-Thouless, como nos sistemas com spins de Ising. Segundo a teoria de campo médio, a linha GT expressa o congelamento dos graus de liberdade do spin perpendiculares (transversais) ao sentido do campo magnético, enquanto que na linha AT é congelado o grau de liberdade paralelo (longitudinal) à direção de H.

A analogia com o comportamento do tipo vidro-de-spin sugere que a linha de irreversibilidades nos supercondutores granulares pode ser interpretada com base no modelo de vidro supercondutor. O modelo parte do princípio da existência de um arranjo desordenado de grãos supercondutores que estão fracamente acoplados via efeitos de proximidade ou por tunelamento Josephson sem efeitos de blindagem Meissner. Segundo este modelo, cuja expressão mais simples é o Hamiltoniano da equação (2.19), a presença de desordem e

frustração faz com que o espaço de fases do sistema adquira uma configuração complexa, com muitos mínimos locais separados por barreiras de alturas variadas. Então, ao evoluir por este espaço, o sistema percorre uma sucessão de estados metaestáveis dando origem aos efeitos irreversíveis. Basicamente, a desordem e a frustração impedem que as energias de acoplamento entre pares de grãos vizinhos sejam minimizadas simultaneamente. Logo, o estado fundamental torna-se degenerado e formado por muitas configurações não equivalentes. Na região de temperaturas próximas à linha de irreversibilidade, o supercondutor granular consiste de uma distribuição aleatória, mas interagente, das fases do parâmetro de ordem de cada grão individual. Acima de T_{irr} , a energia térmica é suficientemente elevada e permite que as fases do parâmetro de ordem evoluam dinamicamente de forma incoerente. Abaixo de T_{irr} , o acoplamento entre os grãos torna-se relevante e causa correlações entre as fases do parâmetro de ordem do sistema de grãos.

Entretanto, a descrição do comportamento da linha de irreversibilidades nos vidros-de-spin através da teoria de campo médio do tipo Sherrington-Kirkpatrick apresenta sérias limitações. Primeiramente, a teoria admite implicitamente que as interações entre os spins têm alcance infinito. Isto não se justifica para os sistemas formados por spins diluídos, e é ainda menos aceitável no caso dos supercondutores granulares. Neste materiais, o mecanismo responsável pelo acoplamento é a energia de Josephson intergrão que leva os pseudo-spins a interagirem somente com os seus vizinhos mais próximos. Além disso, sofisticadas simulações numéricas com base no Hamiltoniano de Heisenberg, admitindo interação de curto alcance, levam a resultados contraditórios com aqueles previstos pela teoria de campo médio. Em geral, as simulações são incompatíveis com a existência de uma genuína transição de fase em temperatura não-nula. Mesmo na situação de spins do tipo Ising, os resultados contrastam com a teoria de campo médio (e com experimentos). Neste caso, embora as simulações prevejam a ocorrência de transição de fase em temperaturas finitas, a presença de campo magnético leva à supressão desta transição.

Dadas estas limitações, Kawamura⁶⁰ introduziu o mecanismo de ordenamento do tipo vidro-chiral. Como vimos, neste cenário a transição de vidro-chiral aciona a transição vidro-de-spin em razão do acoplamento produzido pela energia de anisotropia aleatória do tipo Dzyaloshinskii-Moriya, que está sempre presente em sistemas reais, conforme discutido no capítulo 2. Um resultado importante obtido a partir deste modelo proposto é que a transição de vidro-chiral é robusta frente à presença de campo magnético. Num regime de campos fracos, a linha que define a transição de fases é definida por⁶³

$$T_{cg}(0) - T_{cg}(H) = aH^2 + bH^4 + \dots, \quad (4.17)$$

onde $T_{cg}(0)$ é a temperatura de transição na ausência de campo magnético, $T_{cg}(H)$ é a temperatura de transição na presença de campo e a e b são constantes. Assim, a linha esperada para a transição de vidro-chiral é similar à linha do tipo GT da teoria de campo médio (equação 4.15). Portanto, a observação do comportamento GT para a linha de irreversibilidades é um indicativo em favor do cenário chiral para a transição de vidro-de-spin.

Para os supercondutores granulares, Kawamura e Li⁴⁸ propuseram que um mecanismo análogo, envolvendo a chiralidade local, pode produzir uma nova fase de equilíbrio termodinâmico em temperaturas inferiores àquela que corresponde à transição de pareamento. Tal como no caso dos vidros-de-spin, a linha de irreversibilidades é a manifestação experimental da transição para o estado de vidro chiral. O modelo proposto é baseado no Hamiltoniano de tunelamento de fases (equação 2.9) acrescido de um termo de blindagem (ver equação 2.14) que depende da auto-indutância das plaquetas elementares que representam os anéis formados por grãos supercondutores interagentes. A teoria supõe que a distribuição aleatória das energias de acoplamento de Josephson J_{ij} introduz a frustração ao sistema. Como foi dito, isto implica a existência de energias de Josephson negativas, as quais poderiam ser produzidas através de junções do tipo π ou por impurezas magnéticas na região isolante de separação entre os grãos¹⁰¹.

Embora os pseudo-spins dos grãos supercondutores sejam bi-dimensionais (tratando-se de um problema de spins XY e não de Heisenberg 3D), pode-se admitir que o modelo de vidro chiral aplicado ao arranjo granular supercondutor seja compatível com uma linha de transição que tenha uma curvatura do tipo GT, exatamente como foi observado experimentalmente (ver na figura 4.20).

Portanto, a linha de irreversibilidades magnéticas para o YBCO granular determinada a partir de nossos resultados experimentais é qualitativamente compatível com as previsões do modelo chiral. No regime de campos até 1 T (ver figura 4.20), a temperatura de irreversibilidade indica a estabilização de um estado ordenado de vidro chiral formado pelas estruturas frustradas localmente, que são representadas por correntes orbitais através dos anéis fechados de grãos supercondutores. O sentido destas correntes define a chiralidade local, que pode ser +1 ou -1. Em campos superiores a 1 T, a linha de irreversibilidades recupera a curvatura positiva no diagrama H-T (figuras 4.19 e 4.21). Nesta situação, a dinâmica de

vórtices de Abrikosov intergrãos passa a ser relevante no comportamento magnético do sistema. De fato, a maioria dos modelos de flux-creep prevê que os efeitos irreversíveis, que são termicamente ativados, definem uma linha no diagrama H-T cuja funcionalidade é semelhante à linha AT. Em geral, os resultados experimentais em monocristais são compatíveis com as previsões do modelo de flux-creep.

A interpretação proposta para a linha GT da figura 4.20 baseada no modelo de vidro chiral deve ser avaliada com cuidado, uma vez que diversas condições devem ser satisfeitas para validar este cenário. Dentre estas, está a existência das junções π no arranjo granular do YBCO. Existem evidências experimentais acerca de sua presença¹⁰², porém não se têm provas de que o número destas junções seja comparável com o número de junções normais.

Outro ponto importante é que as intensidades das energias de acoplamento não devem ser distribuídas de tal maneira que favoreçam a formação de clusters finitos de grãos acoplados. O modelo de vidro chiral se aplica, naturalmente, no limite termodinâmico. Não se pode excluir que a sub-divisão do sistema em agregados finitos de grãos acoplados originem o crossover para o comportamento AT observado em altas temperaturas e baixos campos magnéticos. Nota-se, no entanto, que a existência do crossover GT-AT não é incompatível com o cenário chiral desde que haja anisotropia, segundo Kawamura e Imagawa⁶³.

Outro aspecto criticável da interpretação chiral para a linha de irreversibilidades do tipo GT diz respeito ao fato de que o modelo de vidro chiral para o supercondutor granular foi proposto, rigorosamente, no limite em que¹⁰³ $\mu_0 H = 0$. A aplicação de campo externo contribui para aumentar a desordem via os fatores A_{ij} no Hamiltoniano da equação (2.9). Contudo, nos vidros-de-spin, foi amplamente demonstrado que a transição para o estado de vidro chiral é estável frente à aplicação de campos magnéticos elevados. Assim parece razoável supor que, também no caso dos supercondutores granulares, esta transição seja preservada na presença de campos.

Uma proposta alternativa para a interpretação da linha de irreversibilidades em supercondutores cerâmicos foi elaborada por Rodrigues Jr. e colaboradores¹⁰⁴. Segundo estes autores, o comportamento representado pela figura 4.20 é explicável pela teoria de campo médio para os vidros-de-spin. O crossover de um comportamento do tipo Heisenberg em altos campos para um comportamento do tipo Ising no limite de altas temperaturas e baixos campos estaria relacionado à anisotropia que é introduzida pela energia de carga, tal como discutido¹⁰⁵. Na situação em que a energia associada ao campo magnético é comparável à

energia de anisotropia, ocorre um crossover para um comportamento do tipo AT. Evidentemente, este cenário supõe que os grãos supercondutores sejam muito menores que os grãos físicos, de modo que a energia de carga dos grãos seja fisicamente relevante.

4.4.4 – Linha de Irreversibilidade e Transição de Coerência

A figura 4.22 mostra as posições das temperaturas de irreversibilidade com relação ao comportamento de χ_{σ}^{-1} para alguns dos campos magnéticos estudados.

Observa-se claramente que a temperatura de irreversibilidade é localizada entre a temperatura que corresponde à transição de pareamento e aquela que corresponde à transição de coerência, estando posicionada nas proximidades do pico agudo da fase paracoerente. Nota-se que, mesmo com o aumento de intensidade do campo magnético, a posição da temperatura de irreversibilidade permanece nas vizinhanças do máximo observado nas curvas de χ_{σ}^{-1} versus T. Estes resultados sugerem que a linha de irreversibilidades está relacionada com o limite superior da região paracoerente da fase supercondutora.

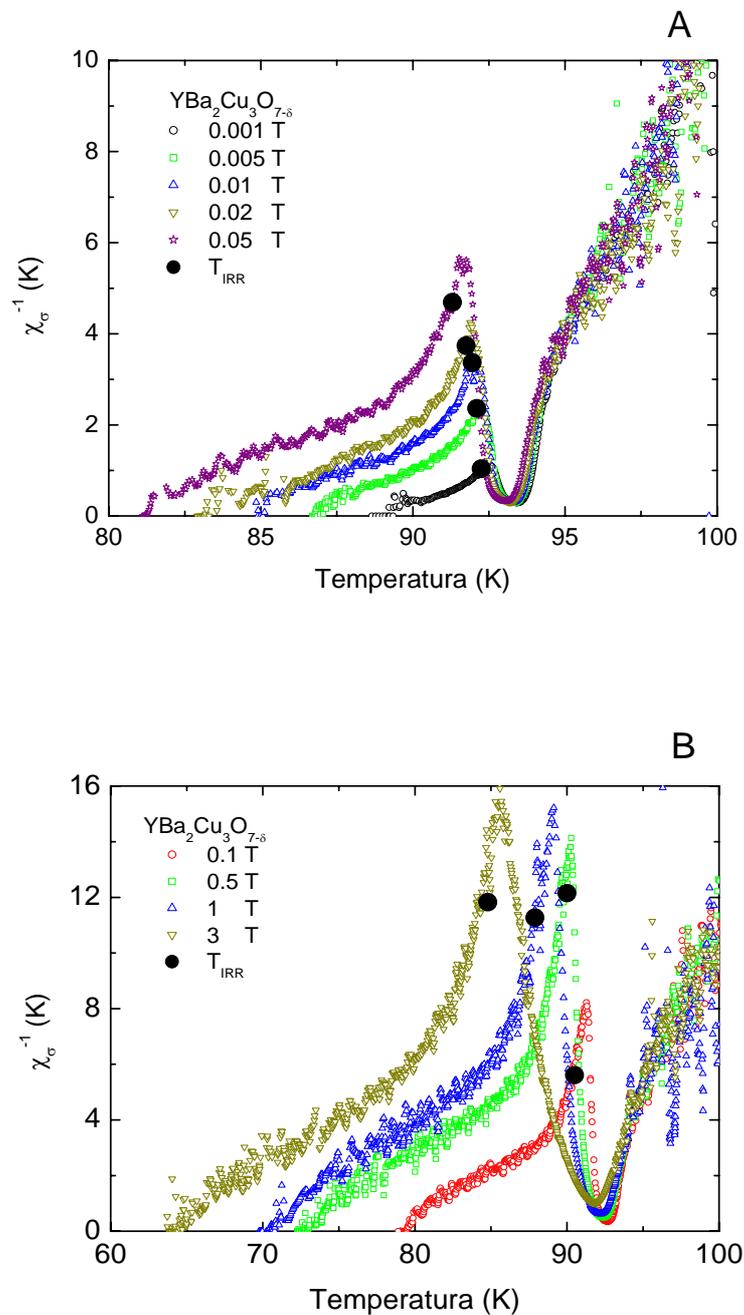


Figura 4.22 – Posição da temperatura de irreversibilidade em relação à χ_{σ}^{-1} para a amostra YBCO em campos magnéticos de até 0.05 T (painel A) e campos magnéticos elevados (painel B).

O fenômeno da irreversibilidade magnética deve-se ao surgimento de estruturas frustradas. O modelo chiral prevê que é possível a formação destas estruturas em uma temperatura crítica de transição para um estado de vidro chiral. Dessa forma, o regime paracoerente que é identificado no comportamento de χ_{σ}^{-1} em função da temperatura na região

de aproximação ao estado de resistência nula pode ser descrito em termos do estado de vidro chiral. Assim, os supercondutores granulares representam uma situação especial em que a transição de vidro chiral aparece separada da transição de bloqueio dos spins (temperatura de coerência). Relembramos que esta situação nunca é realizada no caso dos sistemas magnéticos, nos quais ambas as transições são acopladas pela anisotropia aleatória de Dzyaloshinskii-Moriya.

A figura 4.23 ilustra o diagrama de fases da amostra granular de YBCO no limite de altas temperaturas e baixos campos magnéticos segundo a proposta de interpretação discutida ao longo da seção anterior.

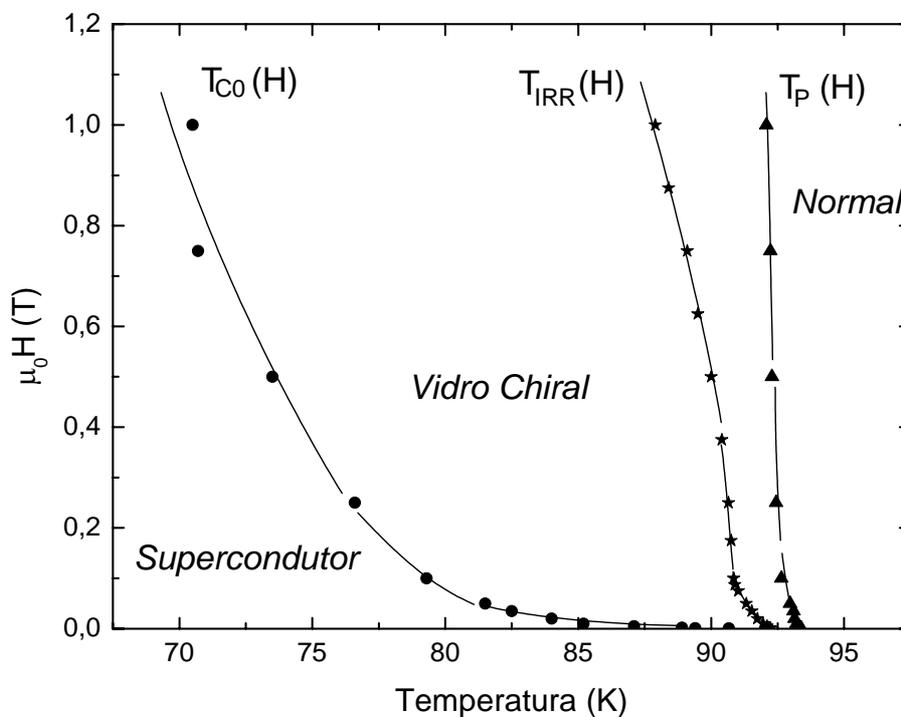


Figura 4.23 – Diagrama H-T da amostra granular de YBCO. A amostra encontra-se no estado normal em temperaturas acima de $T_P(H)$. A linha de irreversibilidades, definida por $T_{IRR}(H)$, representa a transição para o estado de vidro chiral, enquanto que $T_{C0}(H)$ é uma temperatura que define o bloqueio das fases, análoga à T_g do sistema vidro-de-spin. Entre $T_{IRR}(H)$ e $T_{C0}(H)$ ocorre uma fase puramente chiral. Em temperaturas inferiores à $T_{C0}(H)$, o material está na fase supercondutora, com resistência nula.

É possível que os expoentes críticos relevantes à transição de vidro chiral ainda se apliquem à transição de coerência. Dada a atual incerteza nos valores teoricamente propostos para os cenários de vidro chiral e vidro de calibre, ainda não é possível definir que mecanismo

microscópico seja responsável pela transição de coerência, a qual é análoga à transição de vidro-de-spin, pois nela ocorre o congelamento das fases dos parâmetros de ordem dos grãos individuais.

Uma visão alternativa⁸² à interpretação chiral para a linha de irreversibilidades propõe uma situação em que os grãos supercondutores deixam a se comportar isoladamente e passam a interagir coletivamente até que uma correlação de longo alcance é atingida em T_{C0} , levando o sistema ao estado de resistência nula.

Em resumo, a transição para o estado supercondutor na amostra policristalina de YBCO é dominada pelos efeitos de granularidade intrínsecos a estes sistemas, onde a desordem e a frustração são relevantes.

5. Efeito Hall Anômalo em Vidros-de-Spin e Sistemas Reentrantes

Neste capítulo serão apresentados e discutidos os resultados experimentais obtidos no estudo da magnetização DC e do efeito Hall anômalo nas ligas magnéticas do tipo $\text{AuMn } 8\text{at\%}$ e $\text{AuFe } x \text{ at\%}$ ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21). O objetivo principal desta parte do trabalho é a identificação do ordenamento chiral em sistemas magnéticos desordenados e frustrados através de uma técnica experimental que revela efeitos especificamente relacionados à esta propriedade.

5.1 – Coeficiente Hall total nos sistemas estudados

Nesta seção é feita uma breve discussão do coeficiente Hall total das ligas magnéticas estudadas neste trabalho. Tratamos, de modo mais específico, da contribuição ao efeito Hall devida à magnetização. Com vistas à posterior análise desta contribuição anômala, as intensidades de campo magnético aplicados nas medidas de magnetização DC foram as mesmas que as utilizadas nas medidas de efeito Hall.

Como os sistemas estudados neste trabalho têm susceptibilidade magnética suficientemente grande em baixas temperaturas, é necessário que se leve em consideração os efeitos do campo demagnetizante. Devido à configuração geométrica das amostras e do campo magnético nas medidas de efeito Hall, o fator demagnetizante, neste caso, é aproximadamente igual a 1. Por outro lado, as amostras utilizadas no estudo da magnetização têm fator demagnetizante nulo. Assim, o campo magnético real sentido pela amostra nas medidas de efeito Hall é reduzido, em relação ao campo magnético aplicado, para³³

$$H_R = H_{apl} - \eta_h M \quad , \quad (5.1)$$

onde H_R é o campo real sentido pela amostra, H_{apl} é o campo magnético aplicado externamente, $\eta_h \approx 1$ é o fator demagnetizante da amostra e M é a sua magnetização.

Relembrando que a resistividade Hall total é definida como $\rho_h = R_0 B + R_S \mu_0 M$ e a indução magnética é dada por $B = \mu_0 H + \mu_0 M$, podemos escrever:

$$\rho_h = R_0 \mu_0 (H_{apl} - \eta_h M + M) + R_S \mu_0 M \quad . \quad (5.2)$$

O coeficiente Hall total, R_h , é definido como

$$R_h = \frac{\rho_h}{\mu_0 H_{apl}} \quad . \quad (5.3)$$

Dessa forma, substituindo-se (5.2) em (5.3) e utilizando (5.1),

$$R_h = R_0 \left(1 + \frac{M(1 - \eta_h)}{H_R + \eta_h M} \right) + R_S \frac{M}{H_R + \eta_h M} \quad . \quad (5.4)$$

Uma vez que $\eta_h \approx 1$, e definindo-se a susceptibilidade verdadeira $\chi_R = \frac{M}{H_R}$, o coeficiente Hall total pode ser expresso como $R_h = R_0 + R_S \frac{\chi_R}{1 + \chi_R}$.

A susceptibilidade magnética medida através das experiências de magnetização, $\chi_M = \frac{M_{squid}}{H_{apl}}$, (M_{squid} é a magnetização obtida experimentalmente com o magnetômetro de

Squid) é relacionada com a susceptibilidade verdadeira através da relação $\chi_M = \frac{\chi_R}{1 + \eta_m \chi_R}$,

onde η_m é o fator demagnetizante da amostra nas medidas de magnetização, que é assumido como sendo 0. Dessa forma, o coeficiente Hall total é escrito como:

$$R_h = R_0 + R_S \frac{M_{squid}}{H_{apl} + M_{squid}} = R_0 + R_S M_h \quad . \quad (5.5)$$

Assim, a determinação do coeficiente Hall anômalo R_S a partir da medida de R_h requer que os resultados de magnetização sejam expressos em termos da quantidade M_h , que leva em consideração os efeitos de campo demagnetizante, e que é expressa como

$$M_h = \frac{M_{squid}}{H_{apl} + M_{squid}} \quad . \quad (5.6)$$

5.2 – Resultados de magnetização DC

Esta seção é dedicada à caracterização das amostras através do estudo da magnetização DC em função da temperatura e do campo magnético aplicado, conforme a descrição apresentada no capítulo 3.

5.2.1 – Amostras do tipo vidro-de-spin

A figura 5.1 compara o comportamento de $\mu_0 M_{\text{Squid}}$ e M_h como função da temperatura para a amostra AuMn 8at% em alguns dos campos magnéticos estudados.

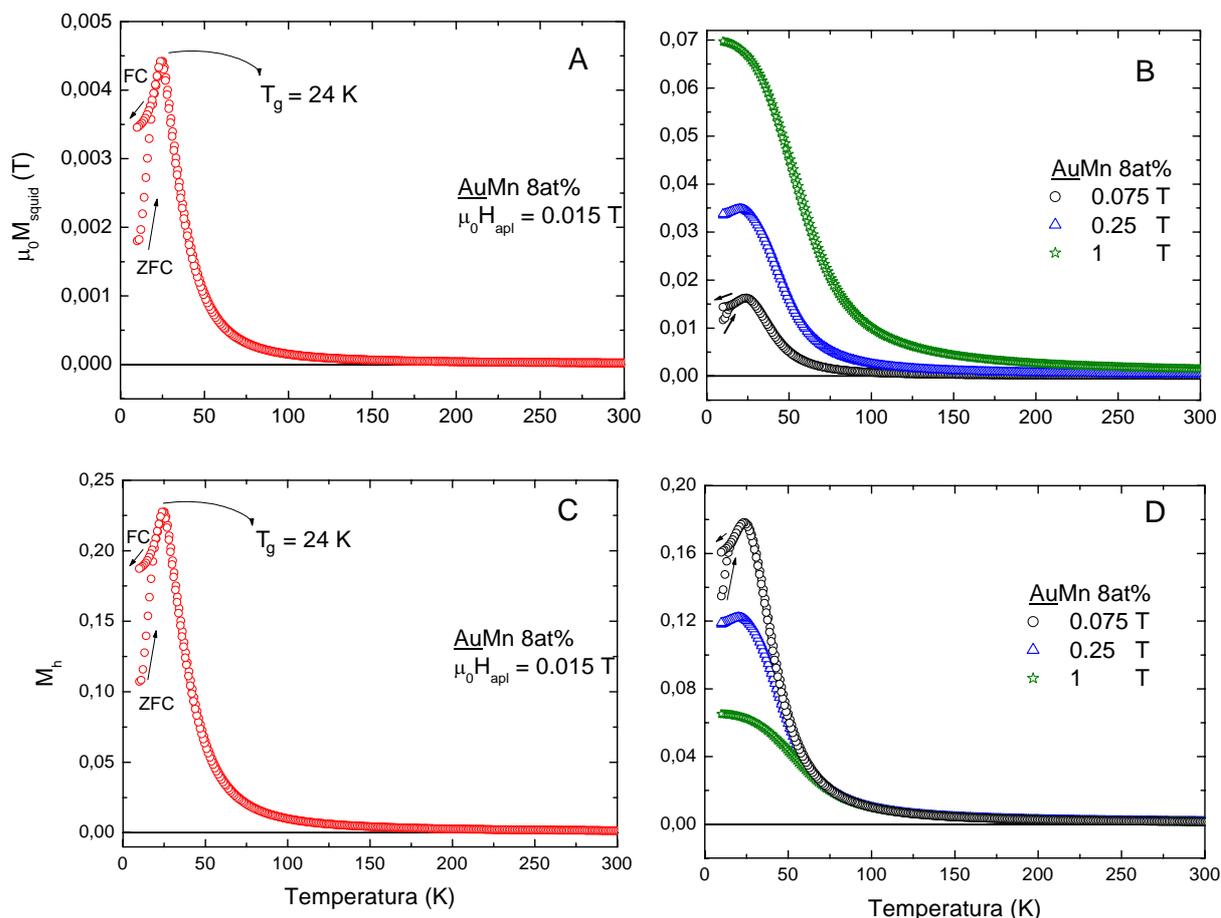


Figura 5.1 – Comportamento magnético da amostra AuMn 8at% representado na forma de $\mu_0 M_{\text{Squid}}$ versus T (gráficos A e B) e M_h versus T (gráficos C e D) para alguns dos campos magnéticos estudados. Efeitos de irreversibilidades magnética são observados em temperaturas inferiores a T_g para campos inferiores a 0.25 T.

Esta liga apresenta um comportamento típico de sistemas vidros-de-spin. As partes *A* e *C* da figura 5.1 correspondem ao menor campo magnético utilizado nas experiências ($\mu_0 H_{apl} = 0.015$ T) e ilustram a variação de $\mu_0 M_{squid}$ e M_h em função da temperatura. A posição do máximo pronunciado observado em baixa temperatura permite a determinação da temperatura de congelamento que, nesta amostra, é $T_g \approx 24$ K. Além disso, está clara a existência de efeitos de irreversibilidade magnética caracterizados pela separação entre as curvas ZFC e FC no intervalo de temperaturas $T < T_g$. À medida que o campo magnético é aumentado (partes *B* e *D*), os efeitos de irreversibilidade magnética diminuem progressivamente e o máximo pronunciado torna-se mais arredondado. Quando a amostra é submetida a um campo de aproximadamente 0.25 T, não são mais observadas as irreversibilidades magnéticas. Nota-se também que, diferentemente das curvas de $\mu_0 M_{squid}$, nas curvas de M_h a intensidade do pico em $T = T_g$ diminui com o aumento do campo, uma vez que o crescimento de $\mu_0 M_{squid}$ se dá numa proporção menor que o do termo $\mu_0 H_{apl} + \mu_0 M_{squid}$ (ver equação 5.6).

As figuras 5.2 e 5.3 ilustram o comportamento magnético das amostras de AuFe *x* at% (*x* = 8 e 12). Como estamos mais interessados nos resultados referentes à M_h , apenas na figura 5.2 são exemplificadas curvas de $\mu_0 M_{squid}$ em função da temperatura. Novamente percebe-se que o comportamento destas amostras é do tipo vidro-de-spin e é muito similar ao observado na amostra de AuMn 8at%. Os efeitos de irreversibilidade magnética estão presentes em temperaturas inferiores à T_g . A temperatura de congelamento determinada a partir da medida realizada no menor campo aplicado é $T_g \approx 28$ K para a amostra de AuFe 8at% e $T_g \approx 37$ K no caso da amostra de AuFe 12at%. Uma comparação da intensidade da magnetização M_h entre estas duas amostras, como pode ser visto nas figuras 5.2D e 5.3B para o caso em que $\mu_0 H_{apl} = 0.5$ T (e em baixas temperaturas), mostra que, como esperado, a intensidade de M_h é maior na amostra que apresenta maior concentração de impurezas magnéticas.

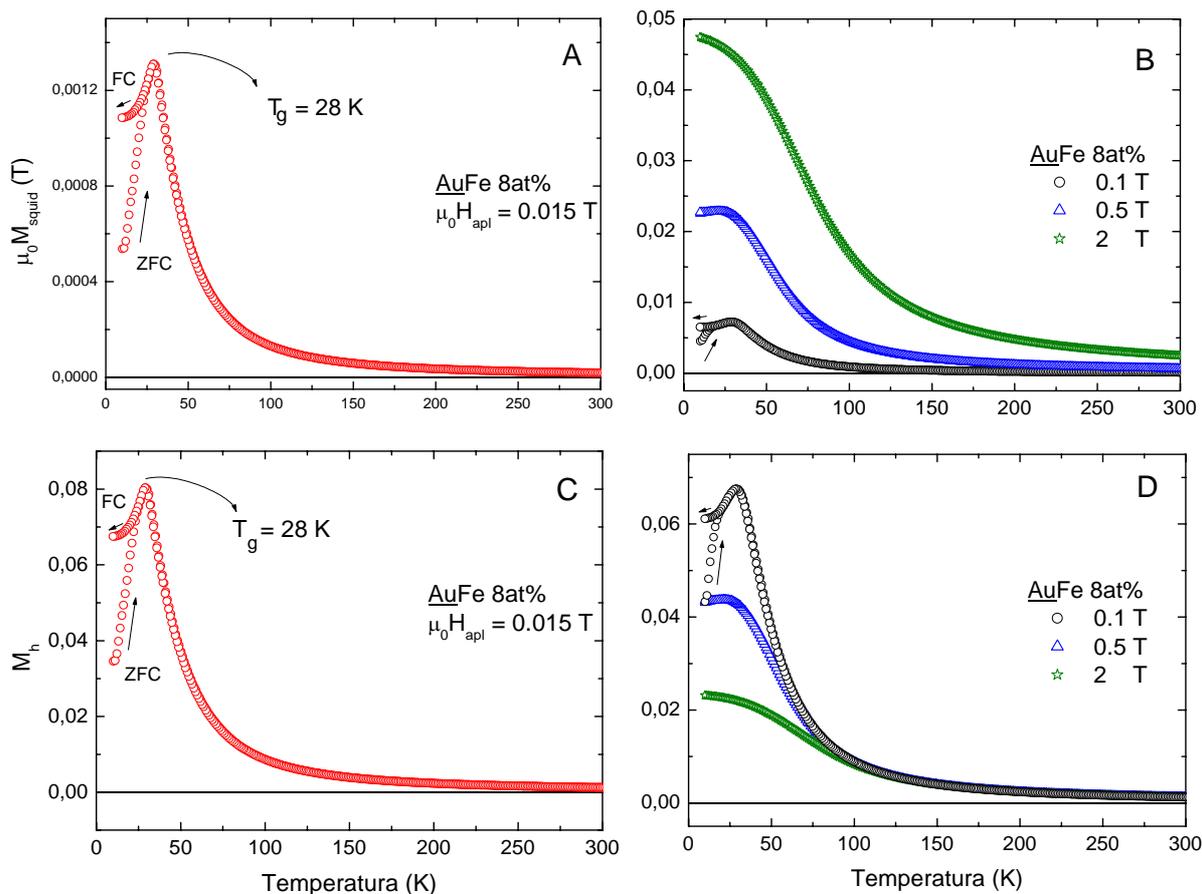


Figura 5.2 – Magnetização DC em função da temperatura para a amostra AuFe 8at\% em alguns dos campos magnéticos aplicados. O gráficos A e B ilustram $\mu_0 M_{\text{squid}}$, enquanto que M_h é exemplificado em C e D.

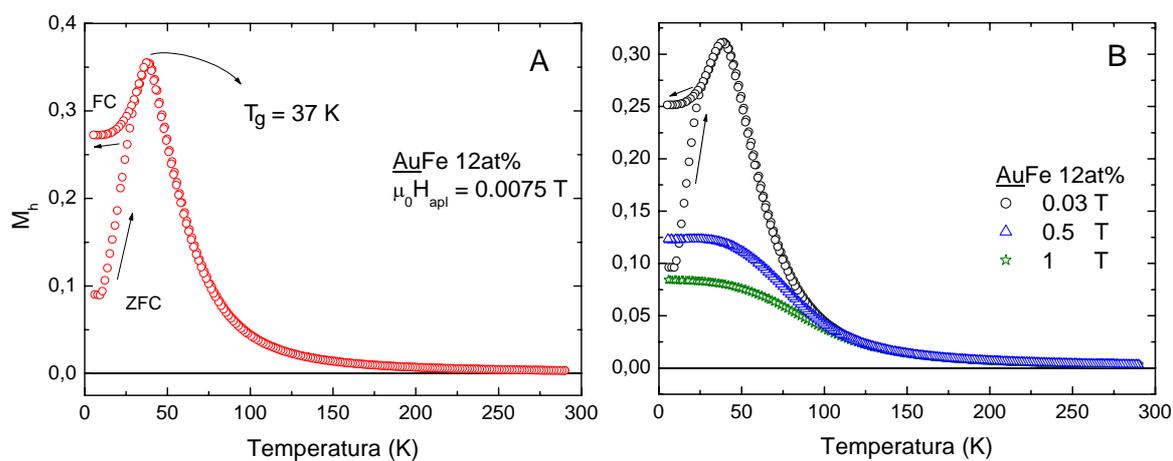


Figura 5.3 – M_h em função de T para a amostra AuFe 12at\% em campos magnéticos de 0.0075 T (parte A) e 0.03 , 0.5 e 1 T (parte B).

5.2.2 – Sistemas reentrantes

As figuras 5.4, 5.5 e 5.6 mostram os resultados obtidos para M_h a partir das medidas realizadas nas amostras de AuFe 15at%, AuFe 18at% e AuFe 21at%, respectivamente.

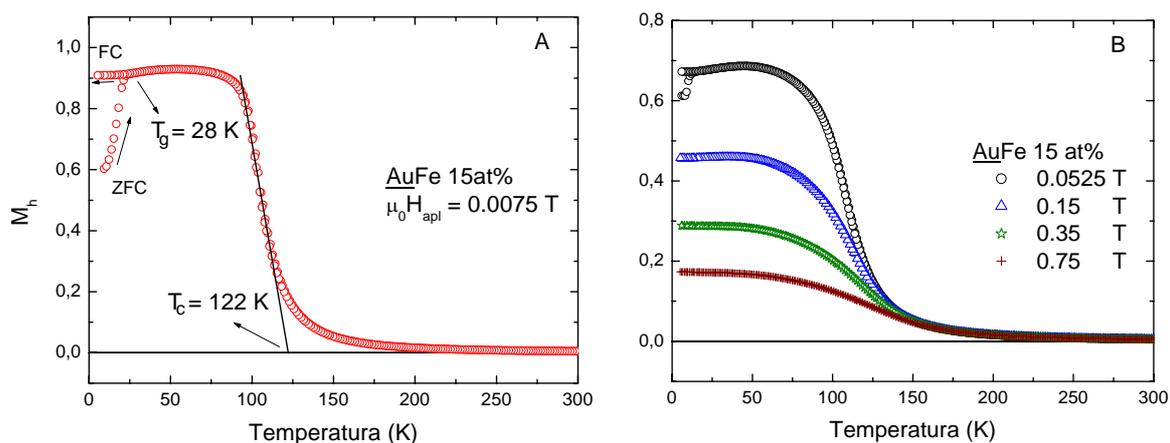


Figura 5.4 – Magnetização DC para a amostra AuFe 15at% representada como M_h em função da temperatura. A temperatura de Curie é determinada pela extrapolação linear mostrada no painel A. A temperatura de congelamento T_g é determinada a partir do ponto em que as curvas ZFC e FC bifurcam.

Os resultados para a amostra AuFe 15at% mostram que seu caráter magnético é o de um sistema do tipo reentrante. Quando a temperatura é decrescida, no procedimento FC, a amostra apresenta uma transição para um estado ferromagnético, com ordenamento de longo alcance, em aproximadamente 122 K. Em mais baixas temperaturas (em torno de 28 K, conforme a figura 5.4A) ocorre uma transição do tipo vidro-de-spin, com irreversibilidades magnéticas observadas nas curvas ZFC e FC. Estas irreversibilidades se manifestam somente em campos magnéticos fracos (ver figura 5.4B).

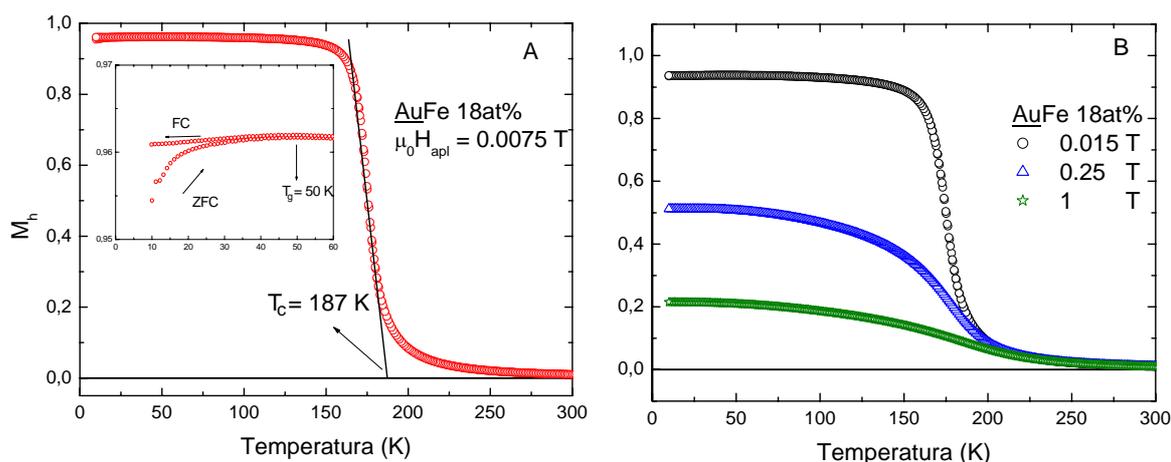


Figura 5.5 – Comportamento magnético representado na forma de M_h versus T para o sistema reentrante AuFe 18at\% em alguns dos campos magnéticos estudados. O inset na figura A corresponde à região de baixas temperaturas, mostrando efeitos de irreversibilidade ZFC-FC.

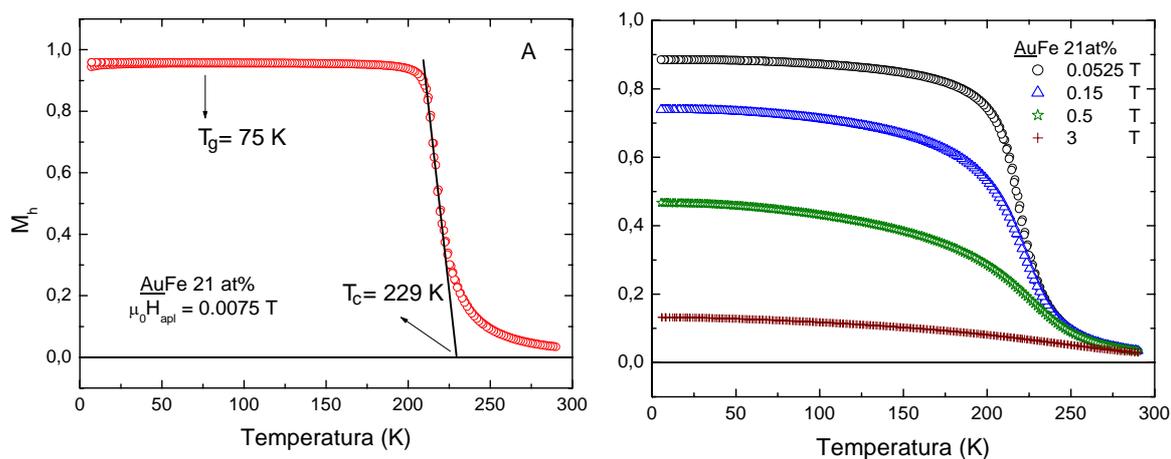


Figura 5.6 – M_h em função da temperatura para a amostra AuFe 21at\% em alguns dos campos magnéticos aplicados.

As figuras 5.5 e 5.6 ilustram M_h em função de T para as amostras de AuFe 18at\% e AuFe 21at\% . Claramente, verifica-se um comportamento característico de sistemas ferromagnéticos. Porém, em baixos campos aplicados e baixas temperaturas (ver figuras 5.5A e 5.6A) irreversibilidades ZFC-FC são observadas. A transição para o estado ferromagnético desloca-se para mais altas temperaturas com o aumento da concentração de impurezas magnéticas.

A tabela 5.1 lista os valores de T_g e T_C determinados a partir das medidas de magnetização DC em função da temperatura para o menor campo magnético aplicado nas amostras vidros-de-spin e reentrantes estudadas neste trabalho.

Amostra	T_g (K)	T_C (K)
<u>AuMn</u> 8at%	24	-
<u>AuFe</u> 8at%	28	-
<u>AuFe</u> 12at%	37	-
<u>AuFe</u> 15at%	28	122
<u>AuFe</u> 18at%	50	187
<u>AuFe</u> 21at%	75	229

Tabela 5.1 – Temperatura de congelamento T_g e temperatura de transição para o estado ferromagnético T_C determinadas a partir de medidas de magnetização DC realizadas para as amostras estudadas neste trabalho.

Observa-se, pelos resultados apresentados nesta seção, que a temperatura de congelamento no sistema AuFe é fortemente dependente da quantidade de impurezas magnéticas diluídas. Além disso, os efeitos de irreversibilidades magnéticas são suprimidos para valores de campos cada vez menores à medida que a concentração de Fe aumenta. Nas amostras reentrantes, a temperatura em que ocorre a transição ferromagnética também aumenta com a concentração de íons magnéticos.

5.3 – Resultados de resistividade Hall: análise qualitativa

Esta seção é dedicada à apresentação dos resultados experimentais de resistividade Hall nas ligas magnéticas do tipo vidro-de-spin e reentrantes. Nas páginas seguintes estão apresentadas figuras representativas dos resultados obtidos para alguns dos campos magnéticos estudados.

Os resultados correspondem ao comportamento do coeficiente Hall total R_h , definido pela equação (5.3), em função da temperatura. Medidas de efeito Hall segundo os procedimentos ZFC e FC foram realizadas em alguns casos e estão indicadas nas figuras.

Convém ressaltar que os resultados obtidos para o coeficiente Hall total, tal como apresentados, correspondem ao efeito combinado da contribuição de Lorentz (efeito Hall normal) e da contribuição anômala, conforme a equação 2.19. Posteriormente, serão identificadas ambas as contribuições e a origem física do efeito Hall anômalo será discutida.

5.3.1 – Vidros-de-spin

As figuras 5.7, 5.8 e 5.9 mostram o comportamento do coeficiente Hall total, R_h , em função da temperatura, obtido conforme a descrição dada na seção 3.2.3.2, para as amostras do tipo vidro-de-spin AuMn 8at%, AuFe 8at% e AuFe 12at% em alguns dos campos magnéticos estudados.

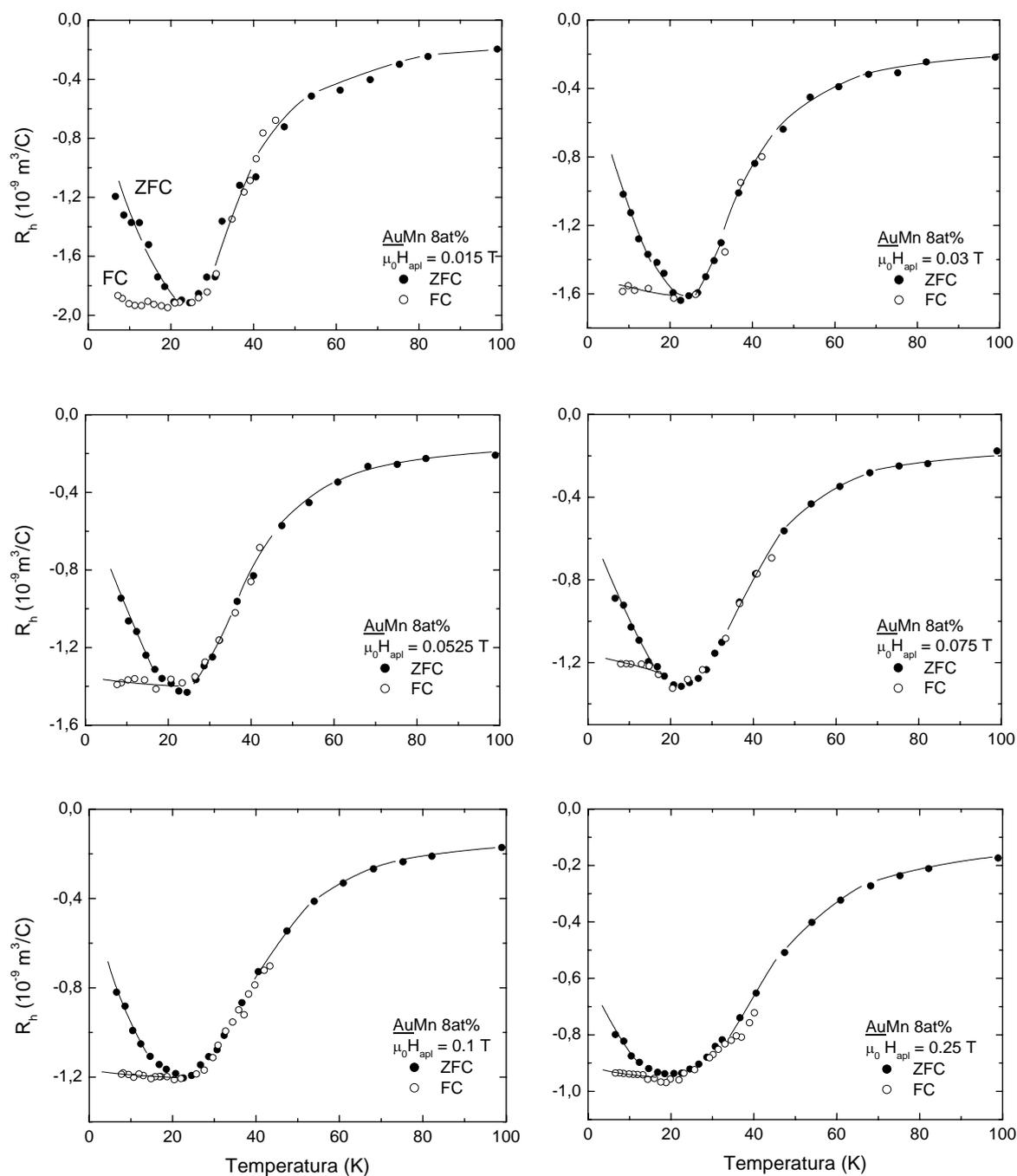


Figura 5.7 – Coeficiente Hall total R_h em função da temperatura para a amostra AuMn 8at% em alguns dos campos magnéticos estudados. Em campos magnéticos superiores a 0.25 T não são observadas as separações ZFC e FC. As linhas são guias visuais..

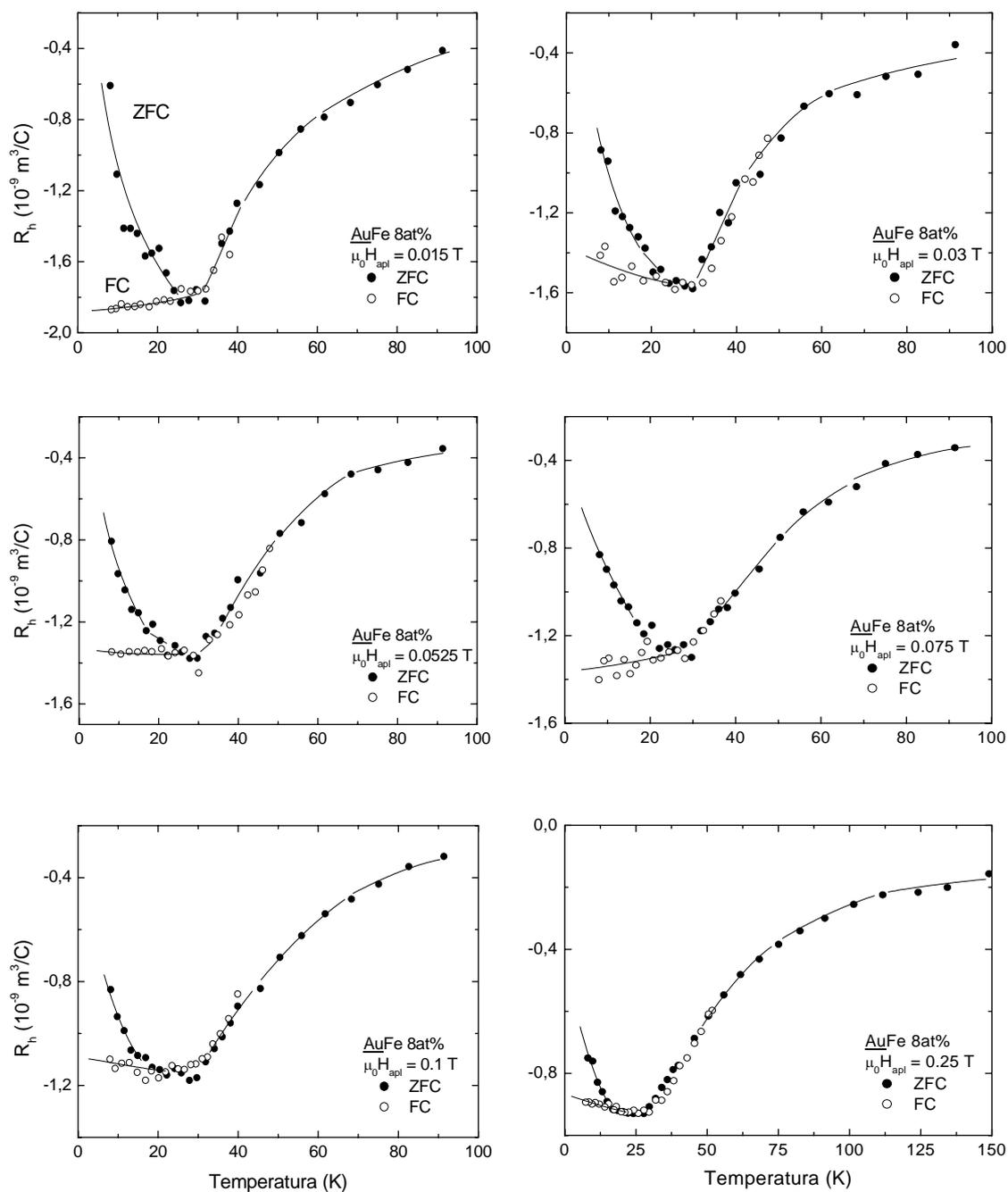


Figura 5.8 – Resultados obtidos na amostra AuFe 8at% para o coeficiente Hall total R_h em baixos campos magnéticos aplicados. Observa-se a separação entre as curvas ZFC e FC em campos inferiores a 0.25 T. A linhas são guias visuais.

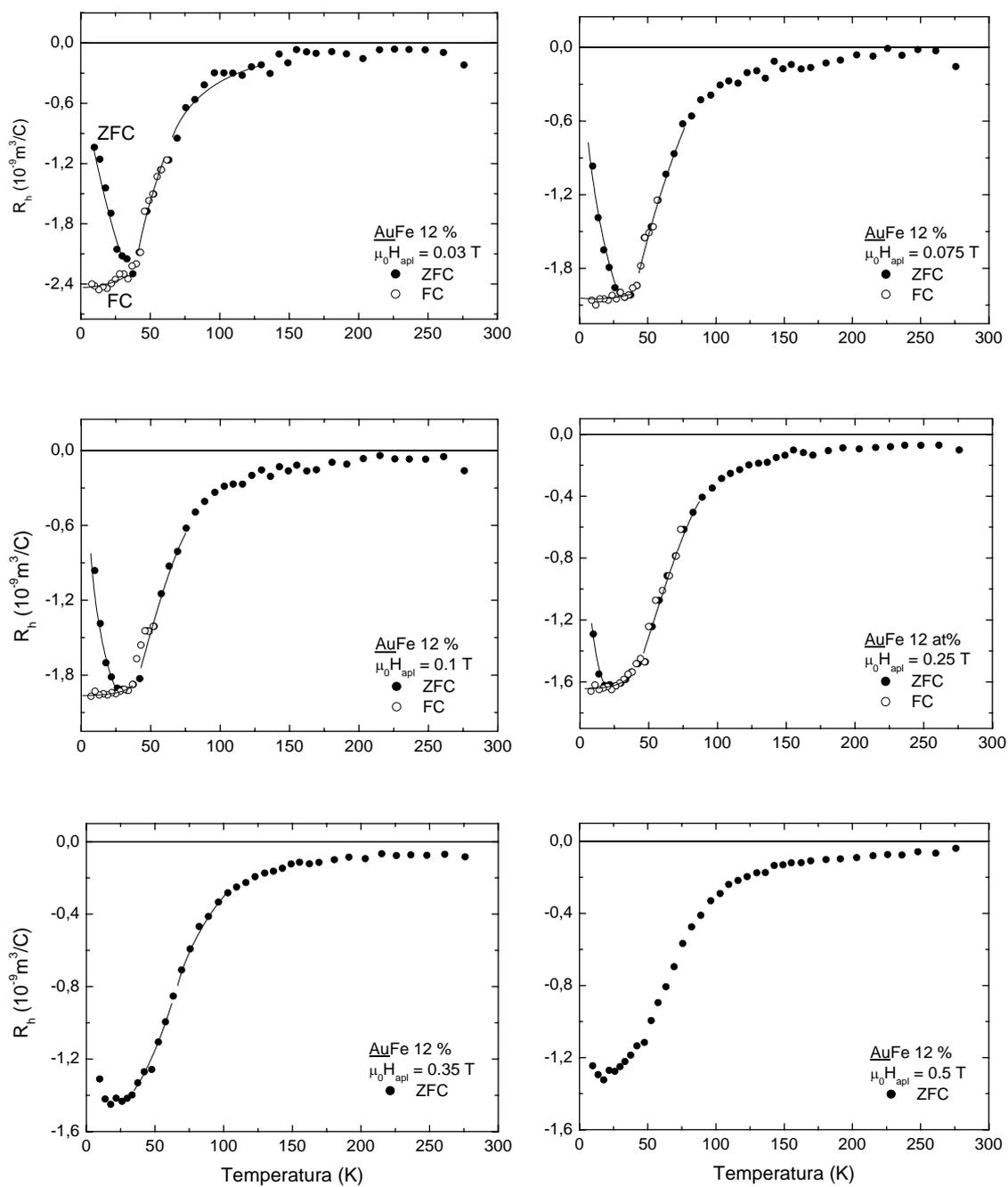


Figura 5.9 – Comportamento do coeficiente Hall total, R_h , em função da temperatura para a amostra AuFe 12at\% em diferentes campos magnéticos. Campos magnéticos intensos suprimem a separação entre as curvas ZFC e FC. As linhas são guias visuais.

As curvas mostradas nas figuras anteriores são semelhantes aos resultados de susceptibilidade em função da temperatura, mostrados na seção 5.2, porém com sinal invertido. O mínimo observado nas curvas corresponde à transição para o estado vidro-de-spin. Além disso, observamos a separação entre as curvas ZFC e FC quando medidas em campos magnéticos fracos. Os resultados das figuras 5.7, 5.8 e 5.9 mostram que é possível a identificação da temperatura de congelamento de vidros-de-spin a partir de experimentos de efeito Hall. No caso de campos magnéticos suficientemente baixos, a transição para o estado de ordenamento vidro-de-spin é caracterizada por uma anomalia do tipo cúspide no comportamento de R_h em função da temperatura quando a medida é feita segundo o procedimento ZFC. Este comportamento é semelhante ao observado nas medidas de magnetização. Pode-se notar também que, abaixo da temperatura do cúspide, ocorrem os efeitos de irreversibilidade magnética denotados pela separação entre as curvas ZFC e FC. À medida que o campo magnético é aumentado, ocorre um arredondamento progressivo do pico correspondente à transição vidro-de-spin na curva ZFC. Em campos suficientemente fortes, a curva medida no procedimento ZFC confunde-se com a curva FC. O comportamento obtido para estas amostras são compatíveis com resultados reportados na literatura^{32,33,70}.

5.3.2 – *Sistemas reentrantes*

5.3.2.1 – *Resultados para a liga AuFe 15at%*

São apresentados na figura 5.10 os resultados obtidos para o coeficiente Hall total, R_h , em função da temperatura no caso particular da amostra AuFe 15at%. Convém lembrar que as medidas de susceptibilidade demonstraram um comportamento reentrante para esta liga.

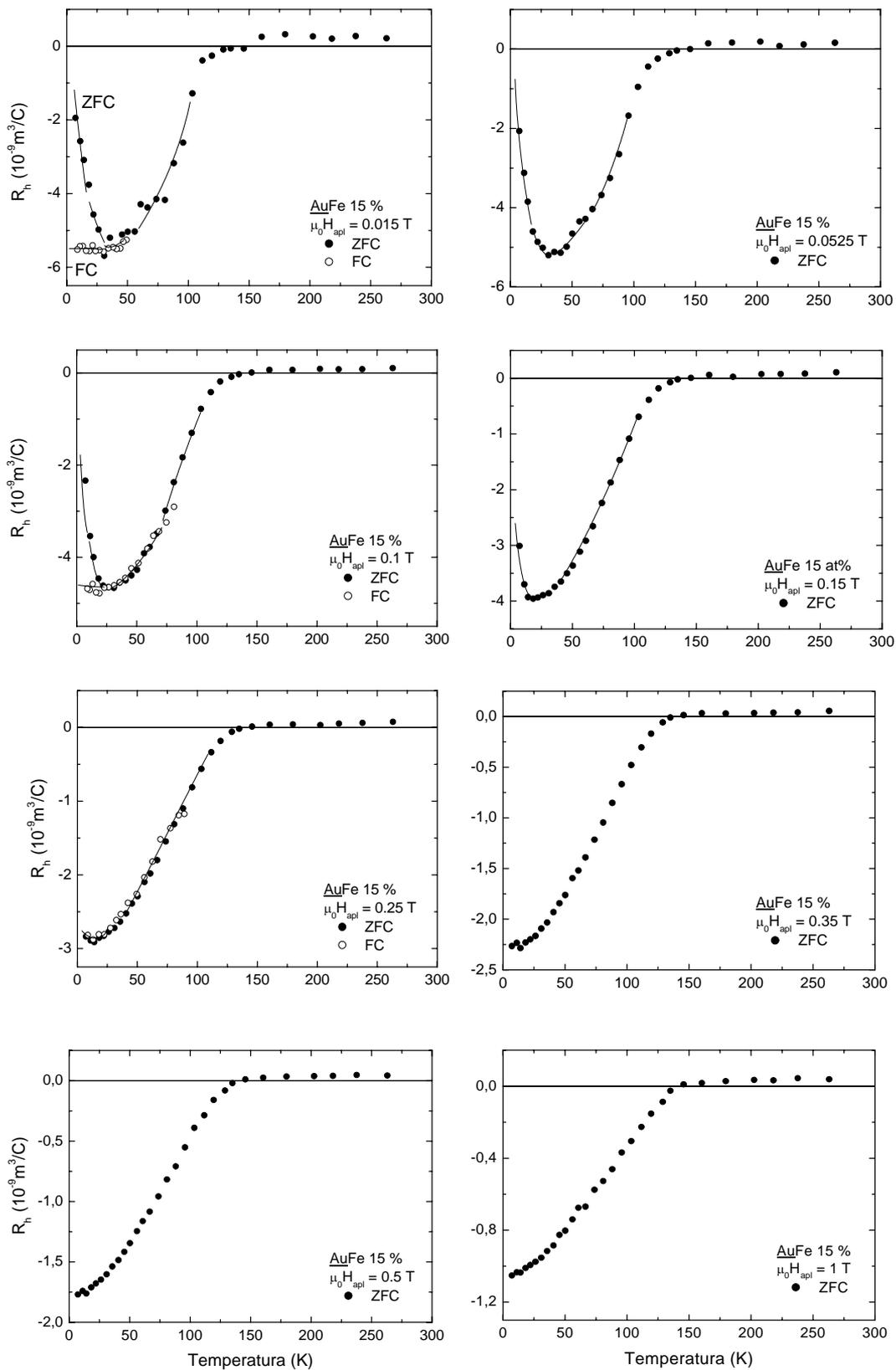


Figura 5.10 – Amostra AuFe 15at%: dependência do coeficiente Hall em função da temperatura para diversos campos aplicados. A separação entre as curvas ZFC e FC é observada em campos até 0.15 T. As linhas são guias visuais.

Chama-se a atenção para o comportamento de R_h na região de altas temperaturas na amostra AuFe 15at%, o qual difere significativamente do apresentado pelas ligas do tipo vidro-de-spin. O sinal Hall é positivo na região correspondente ao estado magneticamente desordenado. Na região de baixas temperaturas, o coeficiente Hall total medido tem o comportamento semelhante ao obtido nas amostras do tipo vidro-de-spin. O coeficiente de Hall total, R_h , para esta liga, mostra a ocorrência de uma mudança marcante e abrupta entre o comportamento típico das amostras do tipo vidro-de-spin para o comportamento reentrante na região de altas temperaturas.

Esta mudança de um sinal negativo em altas temperaturas para as amostras do tipo vidro-de-spin para um sinal positivo na amostra reentrante é originada por uma mudança nos portadores de condução eletrônica (elétrons para lacunas, respectivamente), levando a uma alteração na estrutura de bandas destes sistemas.

5.3.2.2 – *Demais sistemas reentrantes*

O coeficiente Hall total R_h para as amostras dos sistemas reentrantes (figuras 5.10, 5.11 e 5.12) é qualitativamente distinto daquele observado nas amostras do tipo vidro-de-spin, acompanhando a evolução verificada na amostra AuFe 15at%.

O comportamento do coeficiente Hall total em função da temperatura para as amostras reentrantes AuFe 18at% e AuFe 21at% está apresentado nas figuras 5.11 e 5.12. O sinal Hall para a amostra AuFe 18at% é positivo no regime paramagnético e numa região ferromagnética de alta temperatura, antes de mostrar uma inversão de sinal em $T \sim 110$ K. O máximo positivo, que é observado em aproximadamente 165 K, está associado à temperatura de Curie e sua intensidade não se altera com o aumento da intensidade do campo magnético. O mínimo negativo em baixas temperaturas corresponde à temperatura de “canting”, análoga à transição observada nos vidros-de-spin, a qual é reduzida com o incremento do campo aplicado. Os efeitos de irreversibilidades magnéticas são observados apenas em campos magnéticos suficientemente baixos e em temperaturas inferiores à temperatura de “canting”. A amostra com mais alta concentração de impurezas magnéticas estudada neste trabalho (AuFe 21 at%) exibe um comportamento análogo ao da amostra AuFe 18at%. Porém, os efeitos de irreversibilidade são muito menos perceptíveis e o comportamento magnético desta amostra se aproxima mais daquele esperado para um ferromagneto. Neste caso, a observação

de sinal Hall negativo em baixas temperaturas ocorre apenas na presença de campos magnéticos intensos.

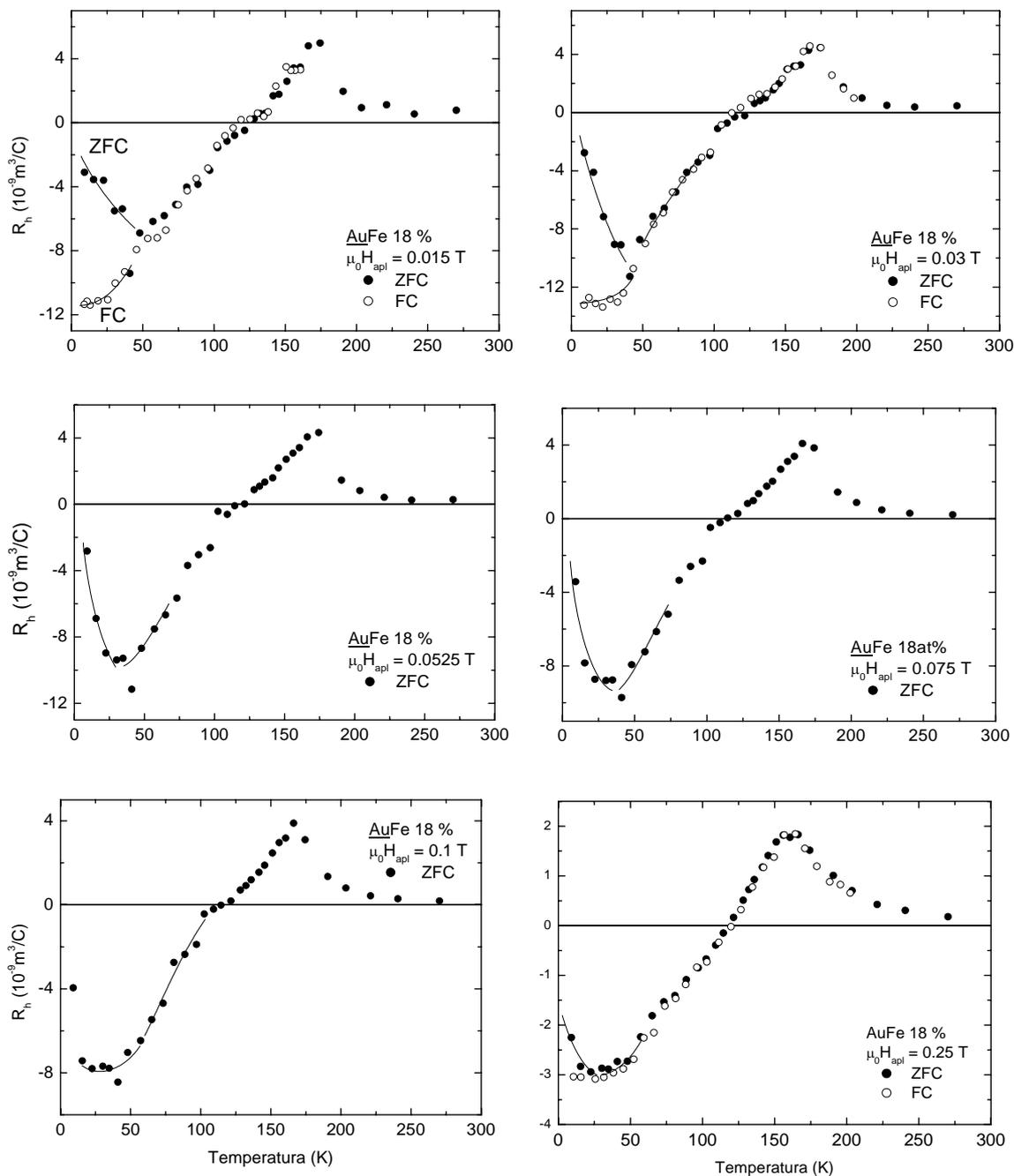


Figura 5.11 – Coeficiente Hall total R_h para a amostra reentrante AuFe 18at%. O máximo de mais alta temperatura corresponde à posição da transição ferromagnética observada nas medidas de magnetização. A separação entre as curvas ZFC e FC é observada para campos até 0.25 T.

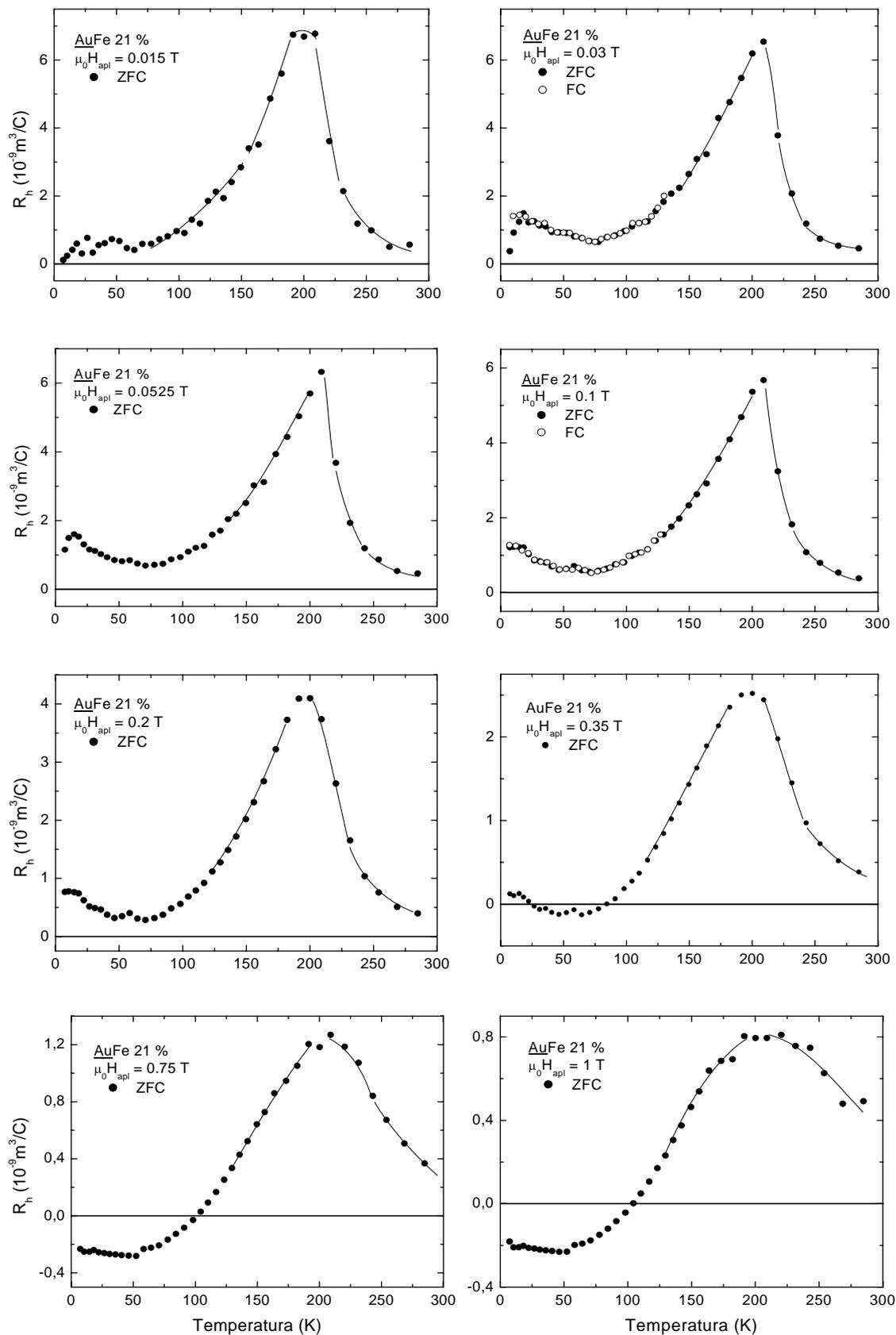


Figura 5.12 – Coeficiente Hall total R_h para a amostra AuFe 21at\% . Fracos efeitos de irreversibilidade foram observados apenas em muito baixas temperaturas quando $\mu_0 H_{\text{apl}} = 0.03 \text{ T}$.

5.4 – Determinação da contribuição de Lorentz

Como mencionado anteriormente, o efeito Hall em sistemas magnéticos é composto de uma contribuição ordinária, devida à força de Lorentz, e de uma contribuição anômala que se deve à magnetização. Uma vez que nosso intuito neste trabalho é o estudo da parte anômala, devemos separar, a partir dos resultados apresentados anteriormente, a componente normal do efeito Hall.

Os resultados apresentados na seção 5.2 mostram que a magnetização da amostra é pequena na região de altas temperaturas. Como vimos anteriormente, a contribuição anômala ao efeito Hall é proporcional à magnetização (equação 2.19). Assim, na região de altas temperaturas e em altos campos magnéticos aplicados, a contribuição de Lorentz deve dominar o comportamento da resistividade Hall, pois o termo ordinário é proporcional ao campo aplicado enquanto que a magnetização tende a zero. Nos materiais metálicos, o coeficiente Hall ordinário, R_0 , é independente da intensidade de B e varia muito lentamente com a temperatura. Supomos que R_0 é independente de T em todo o intervalo de temperaturas estudado neste trabalho. Segundo a equação 5.5, as curvas do coeficiente Hall total R_h medido em função da magnetização M_h em altas temperaturas e em intensidades suficientes de campo magnético aplicado permitem a determinação do coeficiente Hall de Lorentz, R_0 . Tomado-se um ajuste linear para os pontos de altas temperaturas, R_0 será então obtido pela extrapolação deste ajuste ao ponto $M_h = 0$. A figura 5.13 ilustra um exemplo da determinação de R_0 para o caso da amostra AuFe 18at%.

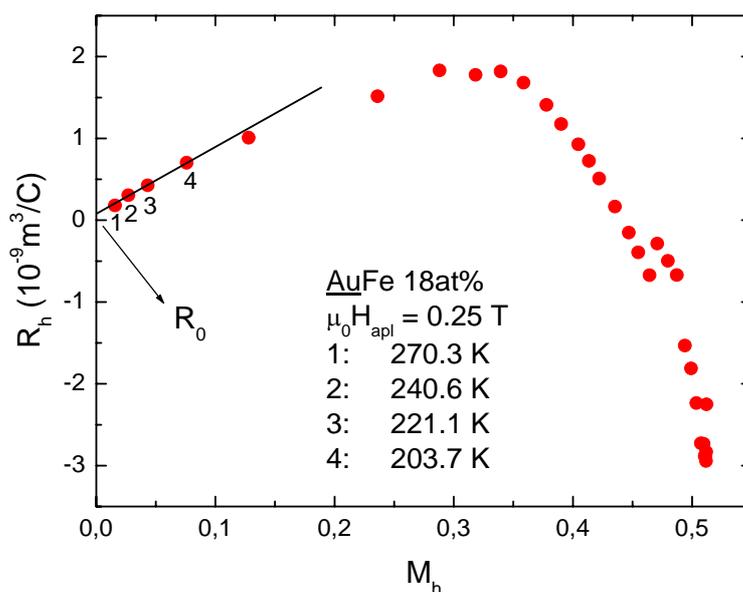


Figura 5.13 – Ajuste linear nas curvas de R_h em função de M_h no caso da amostra AuFe 18at% em altas temperaturas e $\mu_0 H_{\text{apl}} = 0.25 \text{ T}$. Este procedimento permite a identificação do coeficiente Hall de Lorentz, R_0 , obtido da extrapolação do comportamento linear ao ponto onde $M_h = 0$.

Com o método ilustrado pela figura 5.13, foi determinado o valor para o coeficiente Hall de Lorentz, R_0 , em todas as amostras estudadas neste trabalho. Faz-se uma média sobre todas as medidas em campos magnéticos superiores a 0.1 T, garantindo assim uma determinação mais precisa da contribuição de Lorentz. Exemplos dessa determinação estão ilustrados nas figuras 5.14 a 5.17.

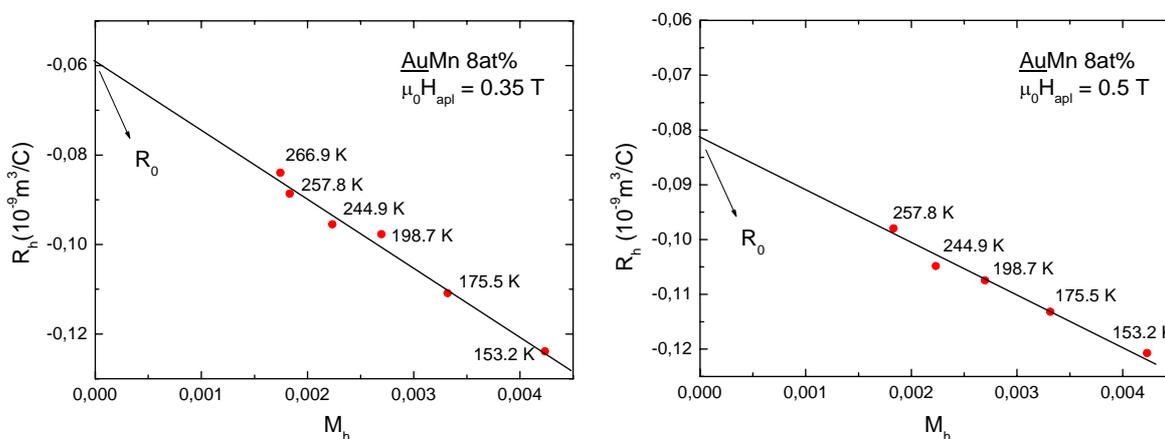


Figura 5.14 – Exemplos da determinação do coeficiente Hall de Lorentz para a amostra de tipo vidro-de-spin AuMn 8at%.

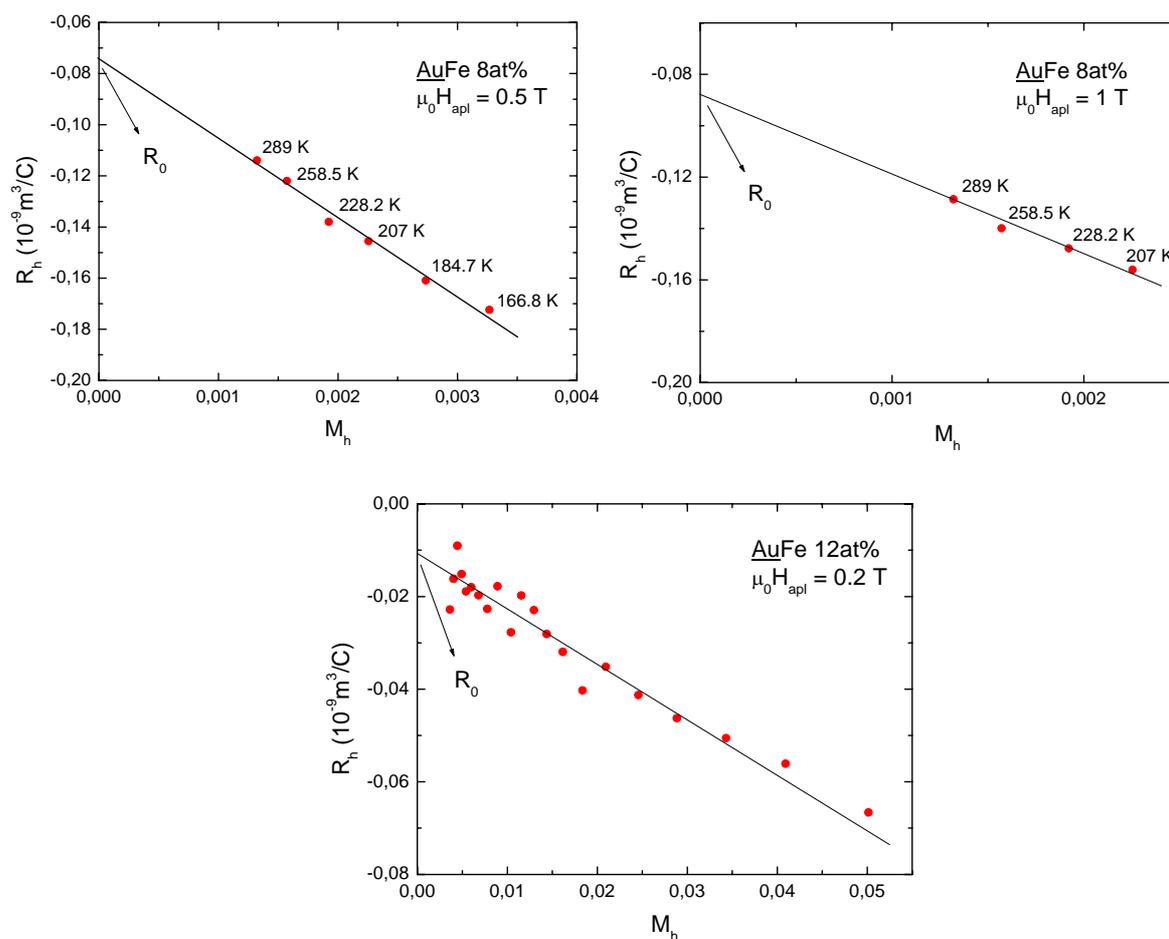


Figura 5.15 – Exemplos da determinação do coeficiente Hall de Lorentz, R_0 , para as amostras AuFe 8at% e AuFe 12at%.

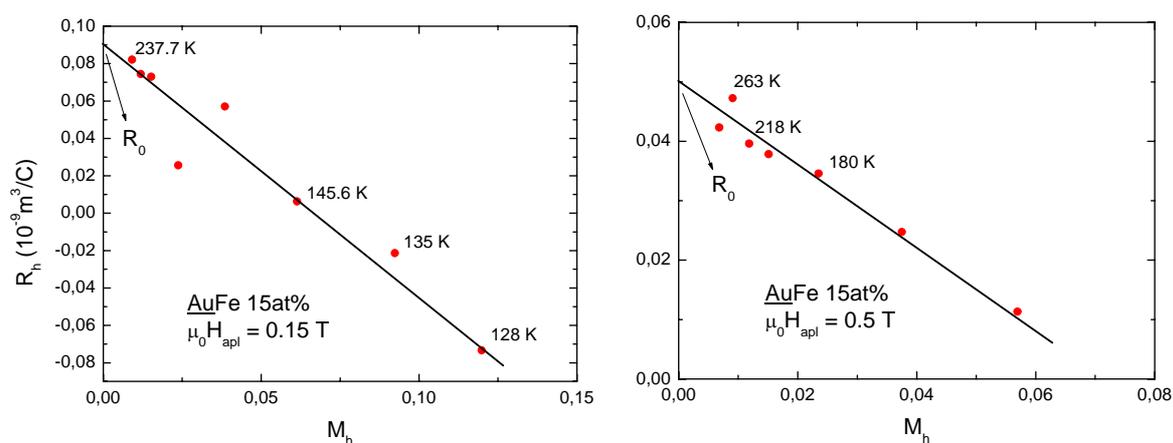


Figura 5.16 - Exemplos da determinação do coeficiente Hall de Lorentz para a amostra reentrante AuFe 15at%.

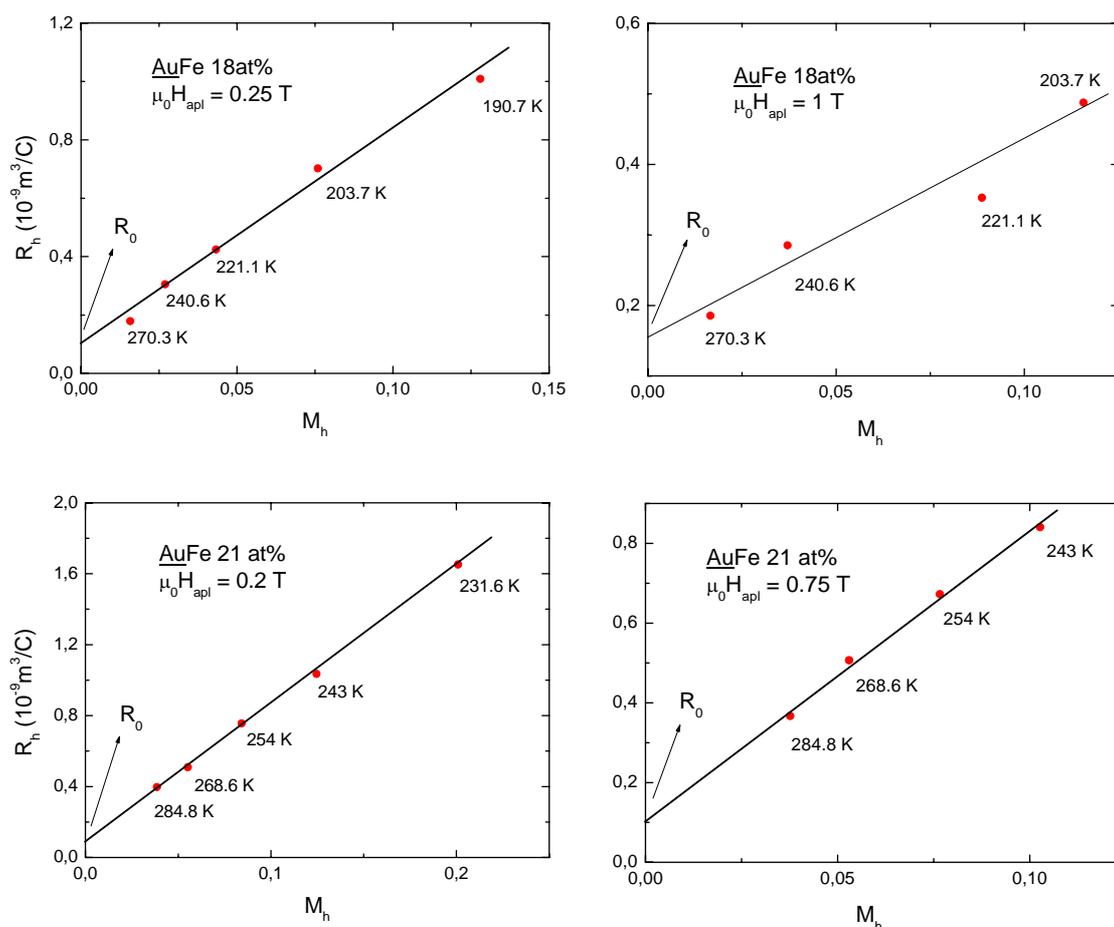


Figura 5.17 – Exemplos da determinação do coeficiente Hall de Lorentz R_0 para as amostras AuFe 18at% e AuFe 21at%.

Chamamos a atenção para o comportamento diferenciado das amostras reentrantes AuFe 18at% e AuFe 21at%, que são mostrados na figura 5.17. Contrastando com as outras ligas estudadas, nestas amostras a inclinação para o ajuste linear nas curvas de R_h versus M_h é negativa. Isto se deve, como vimos na seção 5.3, à mudança do comportamento de R_h . Contudo, a intensidade do valor obtido para R_0 é consistente com aqueles determinados para as demais ligas estudadas, lembrando-se apenas que nos sistemas reentrantes o valor obtido é positivo.

Os valores médios para R_0 obtidos com a análise exemplificada nas figuras 5.14, 5.15, 5.16 e 5.17 estão relacionadas na tabela 5.2.

<i>Amostra</i>	<u>AuMn</u> 8at%	<u>AuFe</u> 8at%	<u>AuFe</u> 12at%	<u>AuFe</u> 15at%	<u>AuFe</u> 18at%	<u>AuFe</u> 21at%
$\bar{R}_0 (10^{-11} \text{ m}^3 / \text{C})$	-6 ± 3	-7 ± 3	-7 ± 3	9 ± 4	11 ± 4	11 ± 2

Tabela 5.1 – Valores médios determinados para o coeficiente Hall de Lorentz R_0 a partir da extrapolação do ajuste linear nas curvas de R_h em função de M_h .

As estimativas para R_0 para as amostras diluídas estão em concordância com os valores reportados na literatura³³. Observamos também que nesta série de ligas, a intensidade dos valores obtidos para R_0 não difere significativamente do valor conhecido para o metal puro⁶⁹, que é $R_0(\text{Au}) = -7 \cdot 10^{-11} \text{ m}^3/\text{C}$. Contudo, ocorre uma mudança de sinal nas amostras reentrantes. Isto sugere a ocorrência de uma alteração significativa na estrutura de bandas eletrônicas das ligas reentrantes em relação ao metal puro no intervalo de concentração de Fe estudado. Os dados experimentais indicam que a densidade eletrônica, dada por $n = \frac{1}{R_0 e}$, no sistema AuFe x at% varia entre $8.93 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$ e $-5.68 \cdot 10^{28} \text{ m}^{-3}$ quando a concentração de Fe aumenta de 0 a 21 at%.

Para os compostos estudados neste trabalho, a contribuição de Lorentz para o coeficiente Hall total R_h torna-se pequena se comparada à contribuição anômala em temperaturas próximas a T_g .

5.5 – O coeficiente Hall anômalo

Conforme discutido no capítulo 2, o efeito Hall anômalo deve-se ao espalhamento eletrônico assimétrico causado por átomos magnéticos. Para determinar a contribuição anômala ao efeito Hall, R_S (ver segundo termo do lado direito da equação 2.19), reescrevemos a equação 5.5 na seguinte forma:

$$R_S = \frac{R_h - R_0}{M_h} \quad , \quad (5.6)$$

a qual é utilizada para determinar o coeficiente Hall anômalo, R_S , em função da temperatura para valores de campo magnético fixos.

5.5.1 – Vidros-de-spin

Nas próximas figuras estão ilustrados os comportamentos de R_S (T), obtidos com auxílio da equação 5.6, para alguns dos campos magnéticos aplicados às amostras do tipo vidro-de-spin.

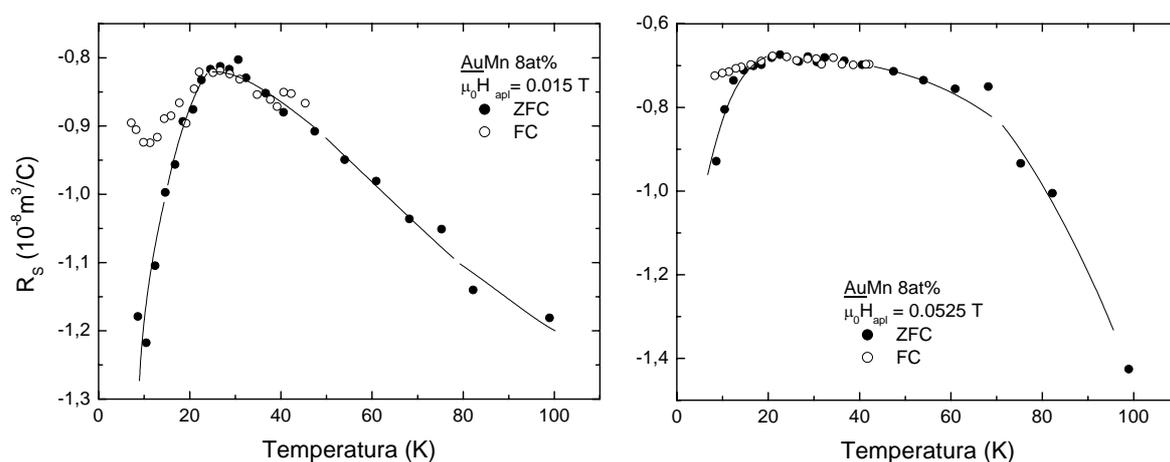


Figura 5.18 – Comportamento de R_S versus T para a amostra AuMn 8at\% em campos magnéticos de 0.015 e 0.0525 T. Efeitos de irreversibilidades magnéticas são observados abaixo de T_g . As linhas são guias visuais.

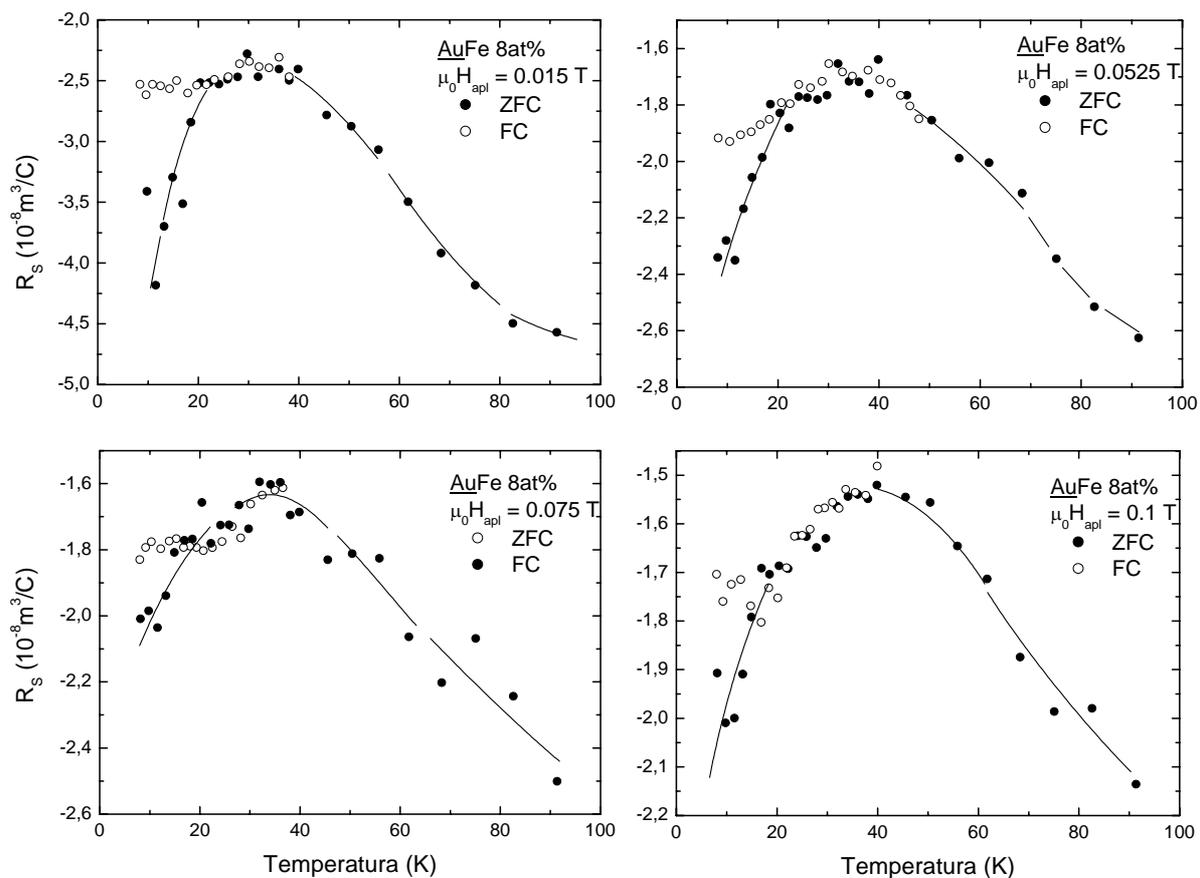


Figura 5.19 – Variação do coeficiente Hall anômalo em função da temperatura para a amostra AuFe 8at%. Os efeitos de irreversibilidade são observado abaixo de T_g . As linhas são guias visuais.

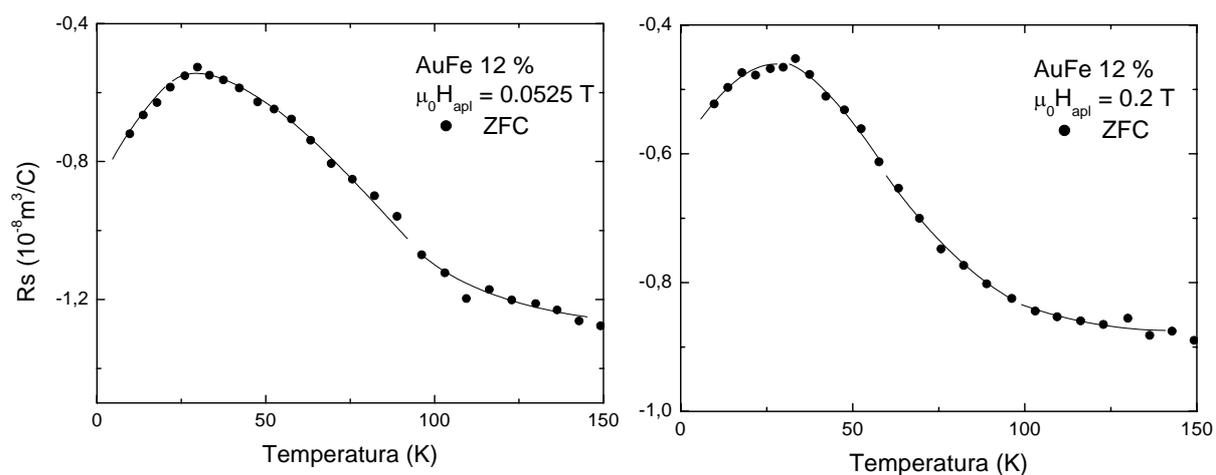


Figura 5.20 – Amostra AuFe 12at%: exemplos representativos do comportamento do coeficiente Hall anômalo R_s em função de T . As linhas são guias visuais.

Como podemos observar nas figuras 5.18, 5.19 e 5.20, o coeficiente Hall anômalo, R_S , é negativo em todos os vidros-de-spin. Contudo, diferentemente do coeficiente Hall total R_h , o comportamento de R_S apresenta um máximo pronunciado nas proximidades da temperatura de congelamento para as curvas medidas segundo o procedimento ZFC. Isto sugere a presença de duas contribuições para R_S : um background negativo somado com uma contribuição positiva. Além disso, os efeitos de irreversibilidade estão presentes em temperaturas inferiores à T_g nas medidas com baixo campo magnético aplicado. Uma discussão mais ampla e detalhada do comportamento do coeficiente Hall anômalo será feita posteriormente.

5.5.2 – Sistemas reentrantes

O comportamento do coeficiente Hall anômalo, determinado pela equação 5.6, para as amostras reentrantes é apresentado nas figuras 5.21, 5.22 e 5.23.

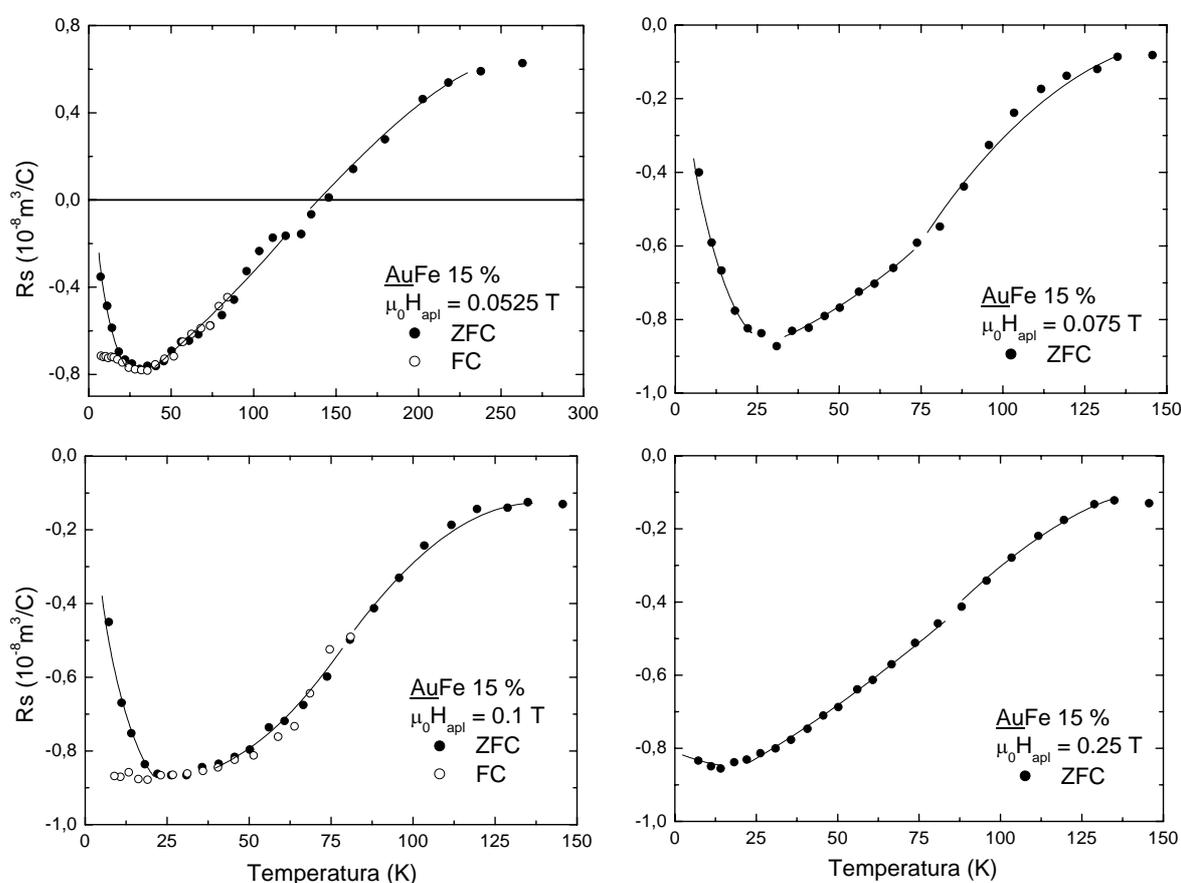


Figura 5.21 - Coeficiente Hall anômalo para a amostra AuFe 15at\% . Note que o sinal de R_S nas proximidades de T_g é negativo. As linhas são guias visuais.

Os resultados para o coeficiente Hall anômalo na amostra AuFe 15at% são diferentes aos observados nas amostras vidros-de-spin. Neste caso, R_S é negativo somente em baixas temperaturas. Ocorre uma mudança de sinal em aproximadamente 140 K. Nas proximidades de T_g , R_S é positivo (ver o caso no qual o campo aplicado é $\mu_0 H_{apl} = 0.0525 T$ na figura 5.21). Além disso, na região de temperaturas que corresponde ao congelamento de spins, observamos a ocorrência de um mínimo negativo. Este comportamento também sugere que o coeficiente Hall anômalo pode ser interpretado como uma soma entre um background e uma contribuição de sinal oposto. A separação entre as curvas ZFC e FC é observada em temperaturas inferiores a T_g em baixos campos aplicados. É interessante ressaltar que, embora o comportamento aparente anômalo de R_h nesta amostra, os resultados para R_S são consistentes com as observações para as demais ligas, uma vez que o valor absoluto de R_S atinge um máximo nas proximidades de T_g .

O comportamento do coeficiente Hall anômalo na amostra reentrante AuFe 18at% (figura 5.22) é semelhante ao observado na amostra AuFe 15at%. R_S é negativo nas proximidades de T_g e inverte o sinal em temperaturas acima de aproximadamente 110 K.

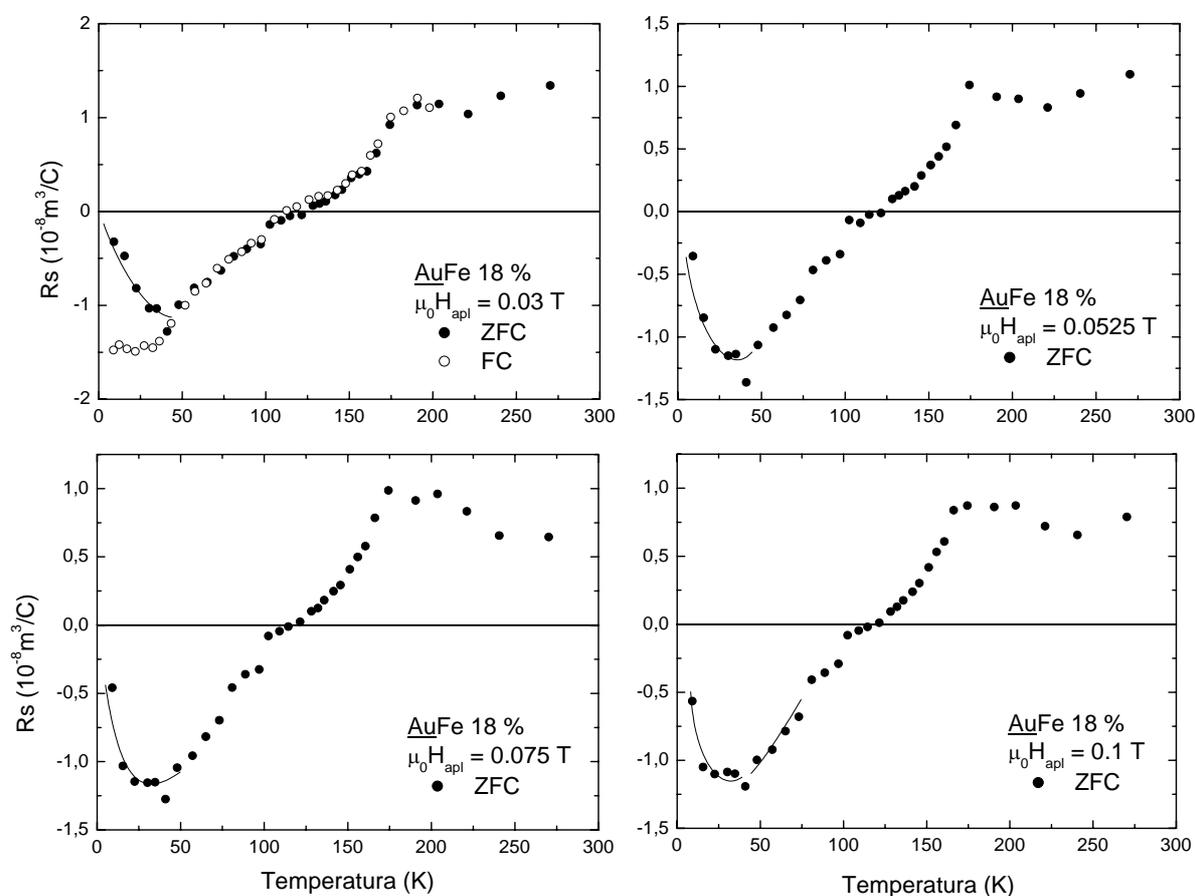


Figura 5.22 – R_S em função da temperatura para a amostra AuFe 18at%. As linhas são guias visuais.

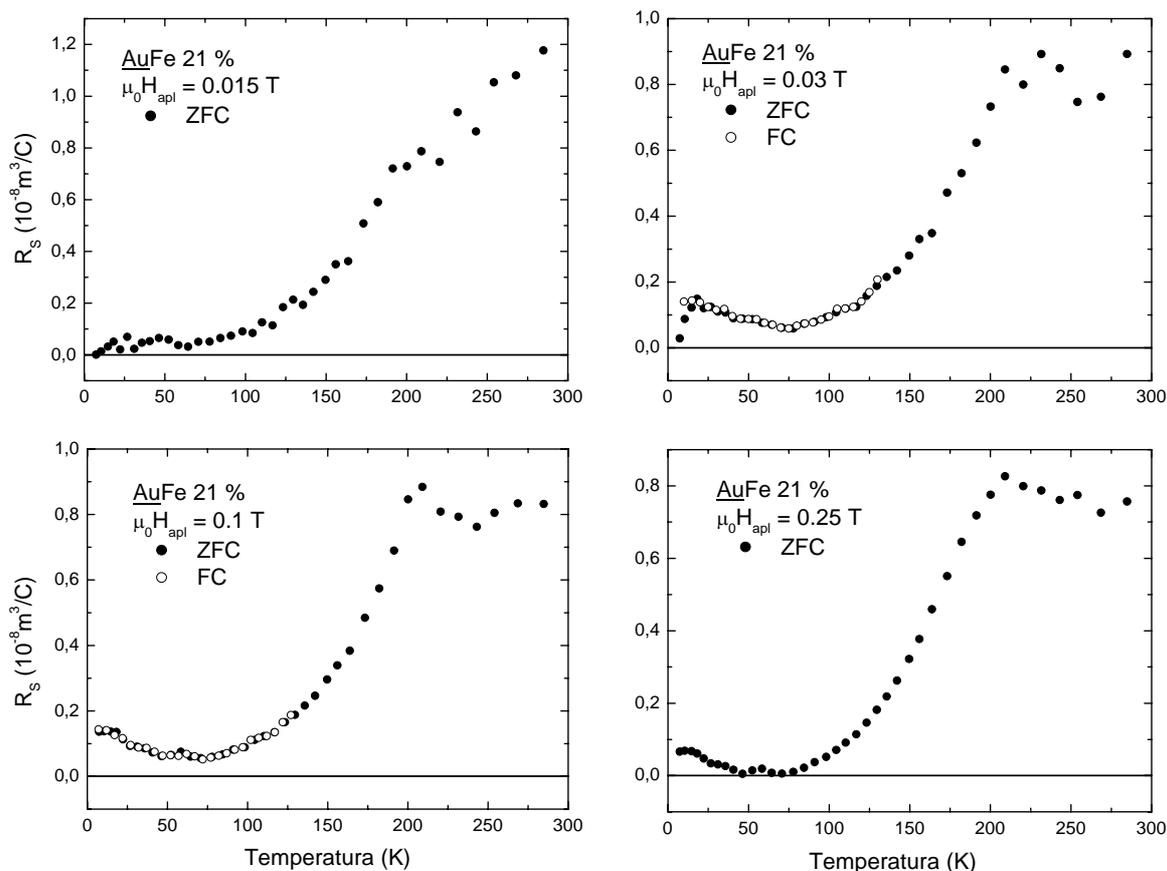


Figura 5.23 – Comportamento do coeficiente Hall anômalo em função da temperatura para alguns dos campos magnéticos aplicados na amostra AuFe 21at%.

O comportamento do coeficiente Hall anômalo na amostra reentrante AuFe 21at% mostra que R_S é positivo em todo o intervalo de temperatura medido. Os efeitos de irreversibilidade são observados apenas em campos magnéticos extremamente baixos. Mais uma vez é reforçada a idéia de que a soma de duas contribuições de sinais opostos descreve o comportamento de R_S .

As seções seguintes são dedicadas às discussões e análises mais detalhadas dos resultados apresentados nesta seção.

5.5.3 – *Discussão dos resultados*

Uma rápida observação do comportamento do coeficiente Hall anômalo a partir dos resultados apresentados na seção anterior nos mostra a presença dos efeitos de irreversibilidade magnética no comportamento de R_S em função da temperatura quando realizamos as medidas segundo os procedimentos ZFC e FC. A separação entre as curvas ocorrem em temperaturas inferiores à T_g e somente quando são aplicados baixos campos magnéticos. A presença de irreversibilidade ZFC-FC em R_S consiste em uma das previsões da interpretação chiral para o comportamento do efeito Hall anômalo proposta por Kawamura e colaboradores⁶⁶.

Nota-se também a presença de um máximo no comportamento de R_S nas proximidades da temperatura de congelamento T_g das amostras do tipo vidro-de-spin e de um mínimo em R_S na temperatura de “canting” das amostras reentrantes. O valor de R_S é sempre negativo nas amostras AuMn 8at%, AuFe 8at% e AuFe12at%. Nos sistemas reentrantes, a situação é mais complexa. Nos sistemas AuFe 15at% e AuFe 18at%, R_S (T) é negativo em baixas temperaturas e torna-se positivo em temperaturas superiores a 140 e 130 K, respectivamente. No sistema AuFe 21at%, R_S (T) é predominantemente positivo.

A variação qualitativa de R_S em função da temperatura é similar em todos os sistemas estudados. Este comportamento e as mudanças de sinal nos sistemas reentrantes, sugerem fortemente que existem duas contribuições de sinais opostos para o coeficiente Hall anômalo na série estudada. Nos vidros-de-spin, os resultados observados sugerem um background negativo adicionado a uma contribuição positiva. Nos sistemas reentrantes, o background é positivo e uma contribuição negativa domina o comportamento em baixas temperaturas.

Nas amostras do tipo vidro-de-spin, a existência de um pico em R_S (T) na temperatura em $T = T_g$, no limite de baixos campos magnéticos aplicados, é também uma previsão do modelo de vidro chiral⁶⁶.

5.5.3.1 – Obtenção da contribuição de side-jump ao efeito Hall anômalo

Como vimos anteriormente, os resultados experimentais obtidos para o coeficiente Hall anômalo, ilustrados nas figuras 5.18 a 5.23 da seção anterior, sugerem que há duas contribuições principais para $R_S(T)$. Supomos que uma delas seja a contribuição de side-jump, que é conhecida para os sistemas magnéticos e deve ser mais importante nas ligas concentradas, como as estudadas neste trabalho, do que a contribuição de skew-scattering. A contribuição de side-jump deve ter o mesmo sinal do efeito Hall ordinário. Tal como discutido no capítulo 2, esta contribuição é dominante em altas temperaturas e é dada por $R_S^{(SJ)} = A\rho^2$ (onde A é uma constante e ρ é a resistividade elétrica longitudinal).

Assim, conhecendo-se a resistividade elétrica longitudinal da amostra e assumindo-se que $R_S = R_S^{(SJ)}$ em altas temperaturas, podemos determinar a constante A a partir das medidas do coeficiente Hall anômalo em temperaturas muito superiores à T_g . Com isso, a partir das curvas experimentais de resistividade longitudinal, mostradas na figura 5.24, faz-se uma estimativa da contribuição do termo de side-jump à R_S em todo o intervalo de temperatura medido.

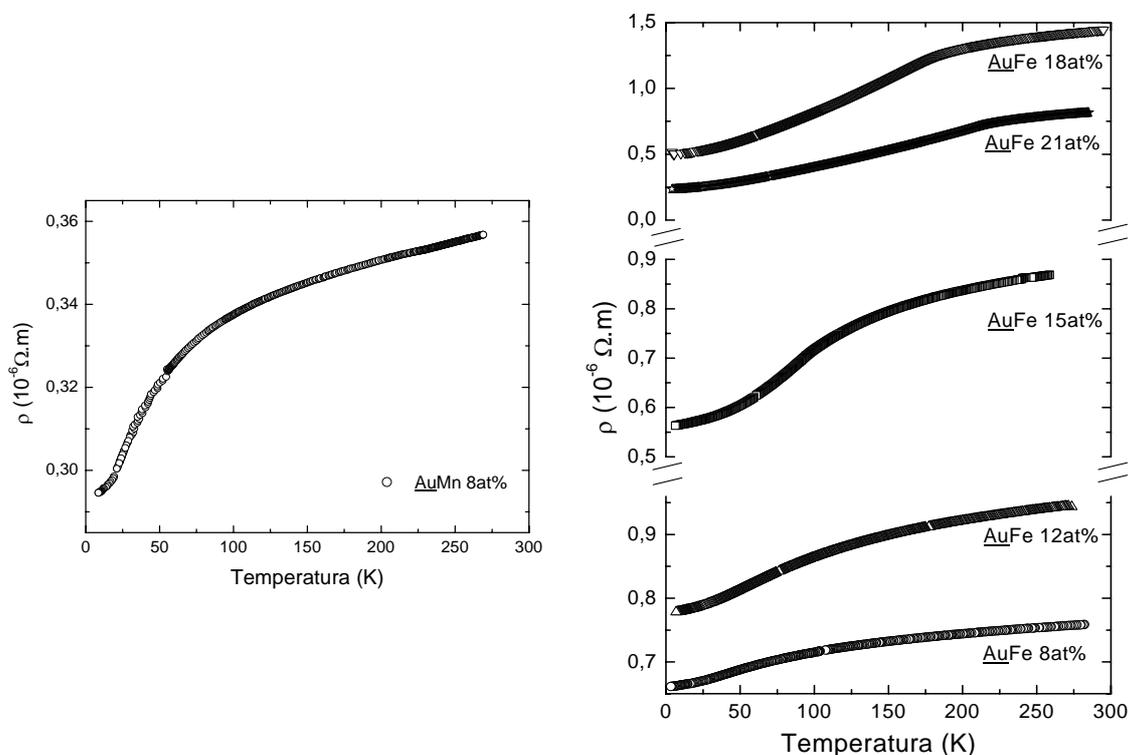
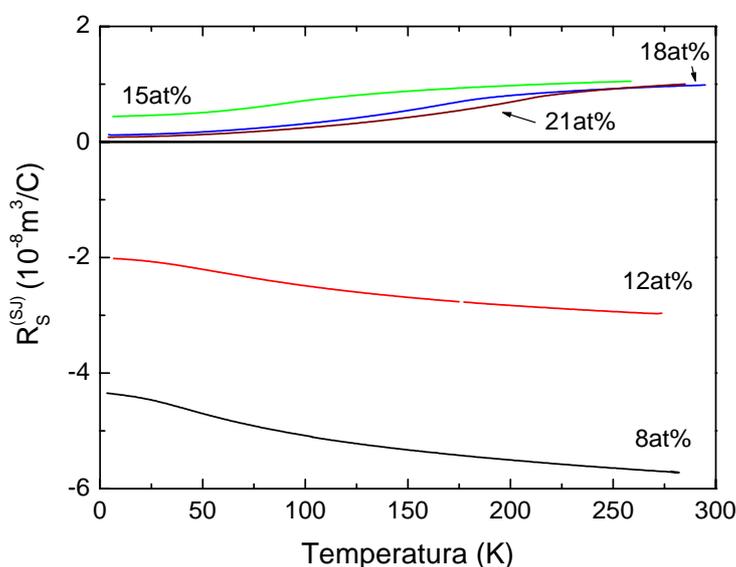


Figura 5.24 – Variação da resistividade longitudinal em função da temperatura para a série de ligas magnéticas estudadas neste trabalho.

A tabela 5.3 lista os valores do coeficiente Hall anômalo em temperatura ambiente, da resistividade longitudinal em temperatura ambiente, da constante A e de $R_S^{(SJ)}$ em algumas temperaturas. A figura 5.25 mostra o comportamento calculado de $R_S^{(SJ)}$ em função da temperatura para as diferentes amostras.

Amostra	R_S (290 K) ($10^{-8} \text{ m}^3/\text{C}$)	ρ_{amb} ($10^{-6} \Omega \cdot \text{m}$)	A ($10^3 \Omega^2 \text{m}/\text{C}$)	$R_S^{(SJ)}$ ($10^{-8} \text{ m}^3/\text{C}$)		
				200 K	120 K	40 K
<u>Au</u> Mn 8at%	-2.4	0.36	-185.1	-2.31	-2.18	-1.89
<u>Au</u> Fe 8at%	-5.7	0.757	-99.5	-5.50	-5.19	-4.60
<u>Au</u> Fe 12at%	-2.95	0.94	-33.3	-2.83	-2.58	-2.14
<u>Au</u> Fe 15at%	1.05	0.868	13.9	0.97	0.79	0.48
<u>Au</u> Fe 18at%	0.98	1.44	4.7	0.80	0.39	0.15
<u>Au</u> Fe 21at%	1.0	0.817	14.98	0.69	0.30	0.11

Tabela 5.3 – Coeficiente Hall anômalo e resistividade longitudinal em temperatura ambiente, constante A e contribuição de side-jump ao efeito Hall anômalo em 200, 120 e 40 K. O valor da constante A é positivo nos reentrantes uma vez que R_S é positivo em altas temperaturas nestes sistemas.



5.25 – Contribuição de side-jump ao coeficiente de efeito Hall anômalo para as amostras de AuFe x at% calculada a partir da resistividade longitudinal.

Nota-se que não ocorrem mudanças abruptas no comportamento de $R_S^{(SJ)}$, pois a resistividade longitudinal nestes materiais apresenta uma variação suave com relação à

temperatura. Conseqüentemente, a contribuição de side-jump não prevê a ocorrência de nenhum tipo de anomalia em R_S , como podemos observar na figura 5.25. As figuras 5.26, 5.27, 5.28, 5.29, 5.30 e 5.31 mostram exemplos para o comportamento do coeficiente Hall anômalo total e das estimativas da contribuição de side-jump para as amostras estudadas.

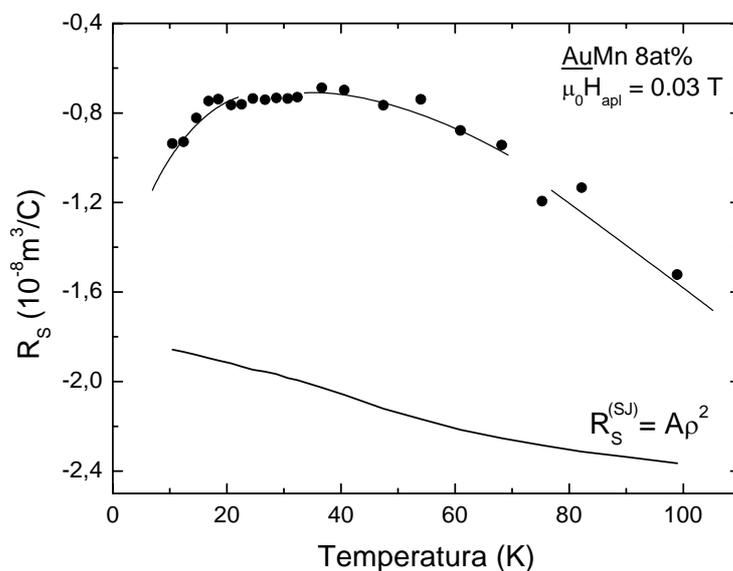


Figura 5.26 – Constante Hall anômala R_S e estimativa da contribuição devida ao termo de side-jump para a amostra AuMn 8at\% . O termo de side-jump não descreve o máximo verificado em R_S quando $T \approx T_g$.

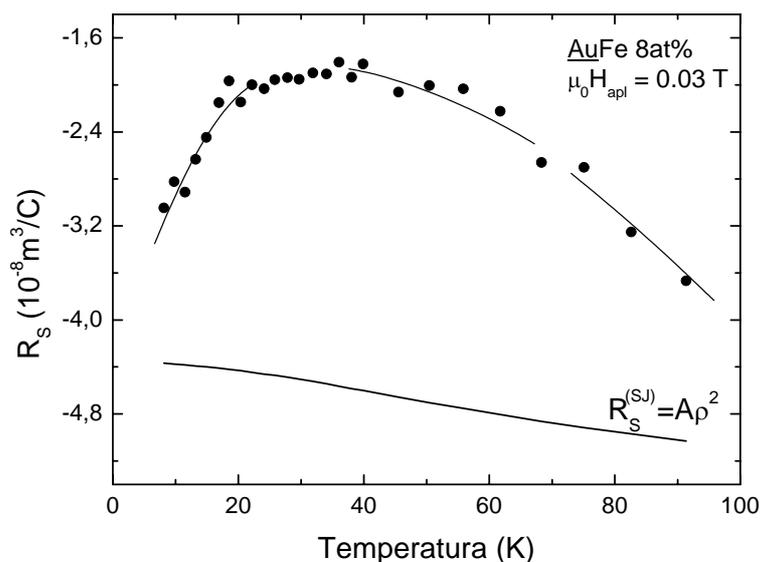


Figura 5.27 – Amostra AuFe 8at\% : as curvas ilustram R_S versus T e a estimativa para a contribuição de side-jump. Uma contribuição positiva deve ser adicionada à $R_S^{(SJ)}$ para reproduzir os resultados obtidos.

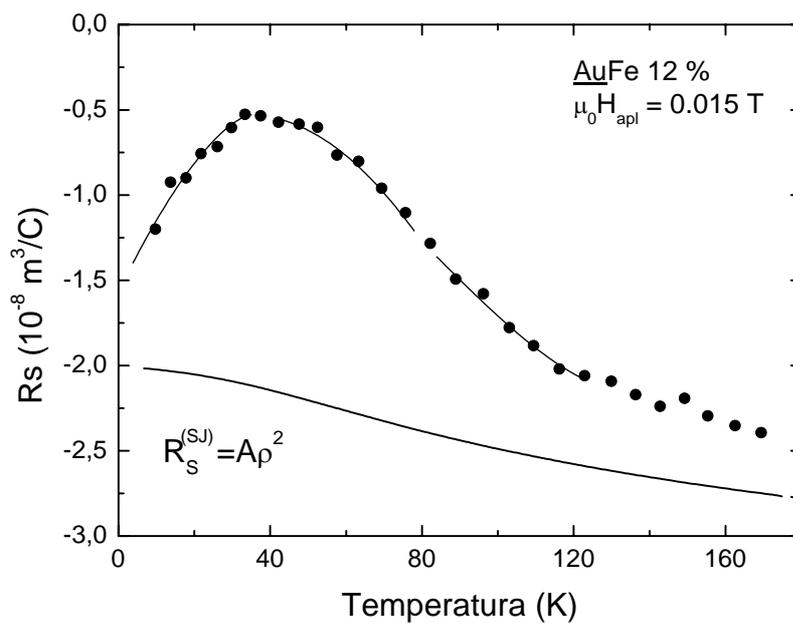


Figura 5.28 – Coeficiente Hall anômalo e contribuição de side-jump para a amostra de AuFe 12 at%.

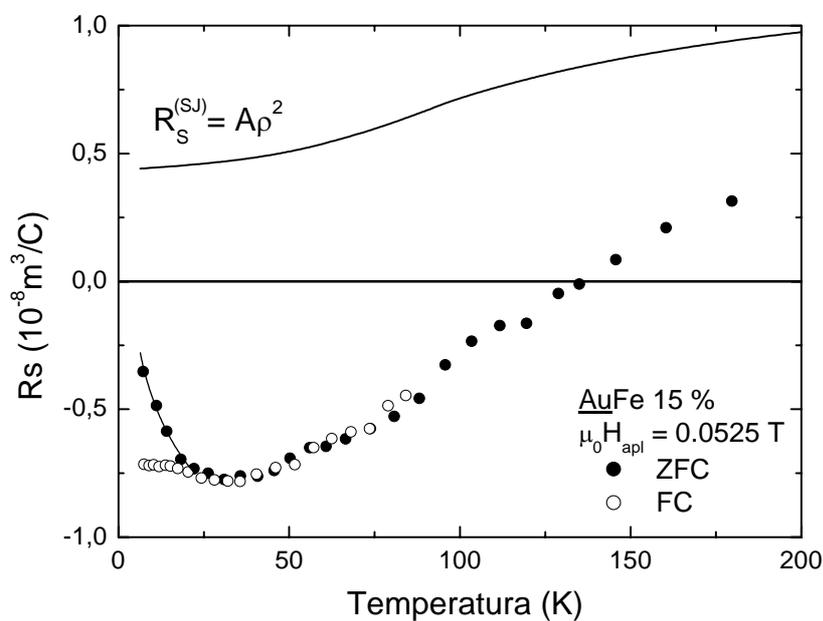


Figura 5.29 – Ilustração da contribuição devido ao termo de side-jump e do coeficiente Hall anômalo em função da temperatura para a amostra de AuFe 15at%.

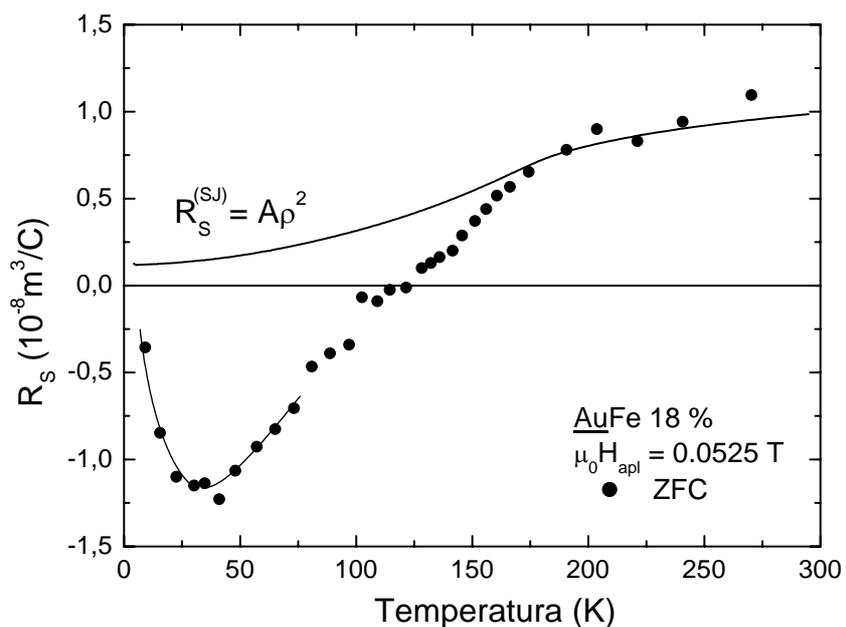


Figura 5.30 – Coeficiente Hall anômalo total e a estimativa da contribuição de side-jump à R_S para a amostra reentrante AuFe 18 at%.

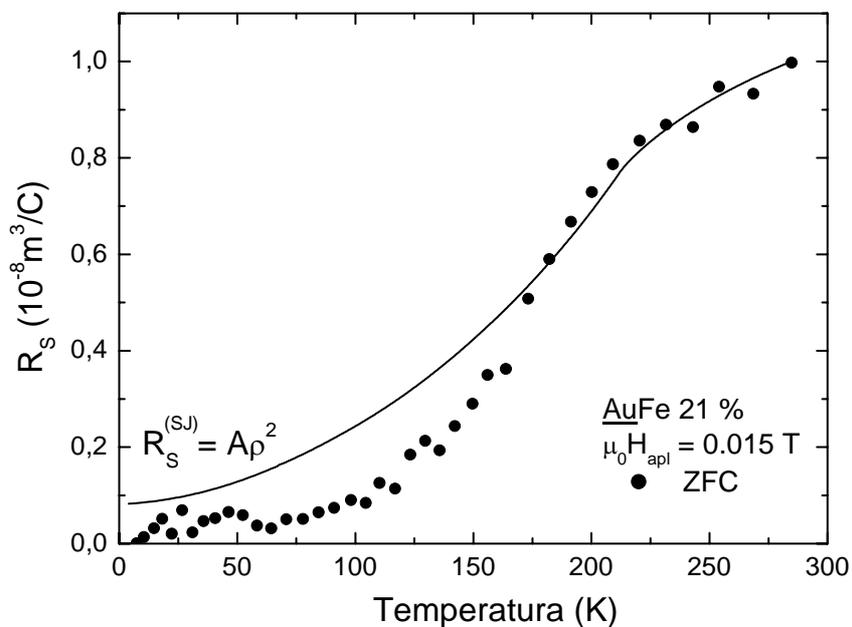


Figura 5.31 – Coeficiente Hall anômalo e contribuição de side-jump para o sistema AuFe 21at%. A contribuição positiva adicionada ao termo de side-jump torna-se menor à medida em que mais impurezas magnéticas são adicionadas.

Observando-se os resultados apresentados, fica evidente que uma contribuição adicional deve ser considerada ao termo devido ao side-jump para descrevermos o comportamento do coeficiente Hall anômalo nestes sistemas. Qual seria, então, a origem física do termo suplementar necessário para descrever os resultados de R_S na série estudada? Supomos que o desvio de R_S em relação à previsão do termo de side-jump observado em nossas amostras em baixas temperaturas deve-se a uma contribuição de origem chiral⁷².

5.5.3.2 - Obtenção da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo dos sistemas AuFe x at% e AuMn 8at%

A partir de resultados como os apresentados nas figuras 5.26 a 5.31, subtraímos o termo de side-jump do coeficiente Hall anômalo medido e encontramos como diferença uma contribuição que torna-se importante em baixas temperaturas. Como dito anteriormente, em altas temperaturas, supomos que o valor da constante Hall anômala é unicamente devido à $R_S^{(SJ)}$. Porém, quando a temperatura é decrescida, esta contribuição aumenta até alcançar um máximo em temperaturas próximas de Tg. Abaixo desta temperatura, a contribuição tende a ter o seu valor reduzido em medidas feitas segundo os procedimentos ZFC. Este termo adicional é interpretado como a contribuição chiral proposta por Kawamura⁷². Nenhum outro modelo para o efeito Hall prevê uma contribuição que apresente uma anomalia no comportamento de R_S nas proximidades de Tg. Contudo, o modelo de Kawamura prevê a ocorrência de uma cúspide. Nos nossos resultados, provavelmente em razão das intensidades de campo magnético empregadas, que ainda são elevadas, observamos um máximo arredondado. É importante também mencionar a ocorrência das irreversibilidades ZFC-FC. Estas devem-se unicamente à contribuição chiral, uma vez que este fenômeno não é esperado em $R_S^{(SJ)}$.

VIDROS-DE-SPIN

Tomando-se a equação 2.27, determinamos o comportamento com relação à temperatura para a contribuição de origem chiral, $R_S^{(ch)}$. Alguns exemplos para as amostras do tipo vidro-de-spin estão mostrados nas figuras seguintes.

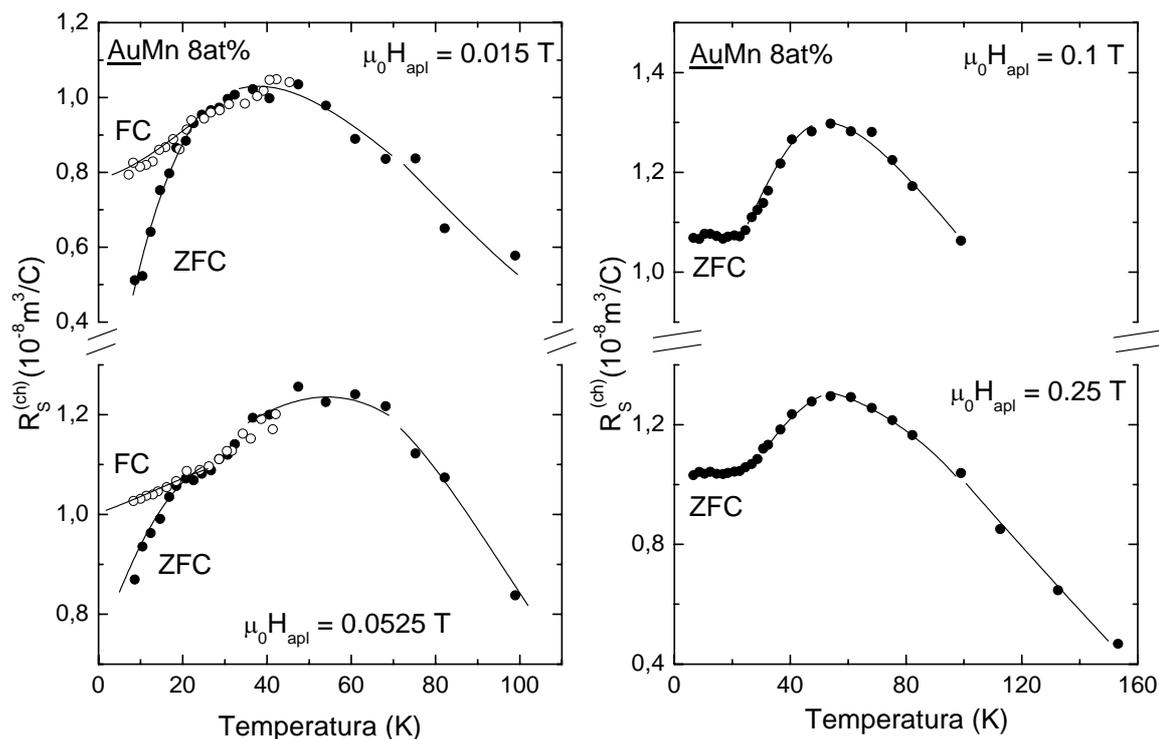


Figura 5.32 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra de AuMn 8at% nos campos aplicados de 0.03, 0.1 e 0.25 T. As linhas são guias visuais.

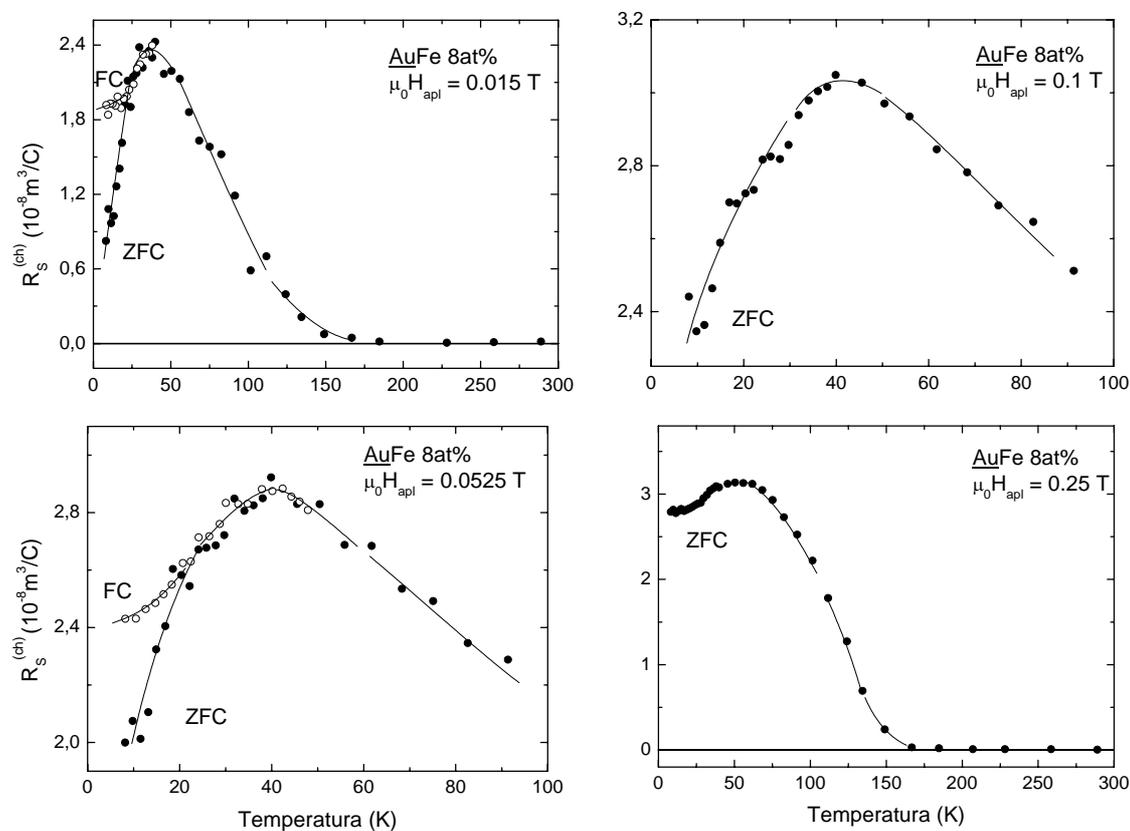


Figura 5.33 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra de AuFe 8at%. As linhas são guias visuais.

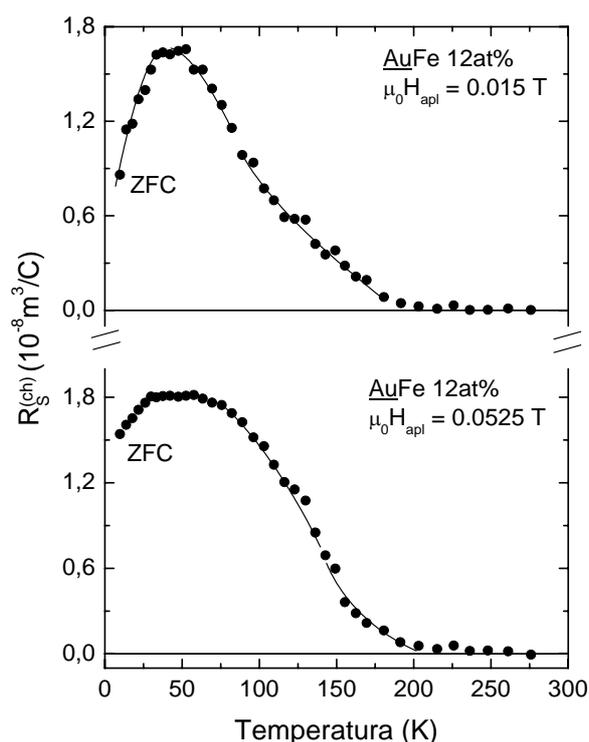


Figura 5.34 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra AuFe 12at%. As linhas são guias visuais.

A observação das figuras 5.32, 5.33 e 5.34 nos permite uma descrição qualitativa da contribuição chiral, $R_S^{(ch)}$, ao efeito Hall anômalo nos vidros-de-spin. Inicialmente, observamos que a contribuição de origem chiral mantém as irreversibilidades ZFC-FC em baixos campos magnéticos aplicados. O comportamento de $R_S^{(ch)}$ em função da temperatura nos mostra que sua contribuição é nula em altas temperaturas (assumimos que nesta região apenas a contribuição de side-jump é relevante ao efeito Hall anômalo). Quando a temperatura é decrescida, a contribuição positiva aumenta, atingindo um máximo nas proximidades da temperatura de congelamento T_g . À medida que o campo magnético é aumentado, o máximo se desloca para mais altas temperaturas e torna-se mais arredondado, sugerindo que a contribuição chiral aumenta na fase paramagnética. Isto pode ser explicado em termos do tempo típico de observação numa medida de transporte, o qual é da ordem do tempo de relaxação (este tempo é da ordem de $10^{-12} - 10^{-14}$ s). Isto torna possível a observação de correlações de origem chiral mesmo em temperaturas superiores à de ordenamento magnético.

A intensidade máxima da contribuição chiral, pode ser estudada em função do campo magnético aplicado, cujo comportamento está representado na figura 5.35 para as amostras AuMn 8at% e AuFe 8at%. Observa-se que $R_S^{(ch)maximo}$ cresce com H em uma região de muito baixos campos aplicados, porém atinge um plateau em $\mu_0 H \approx 0.1$ T.

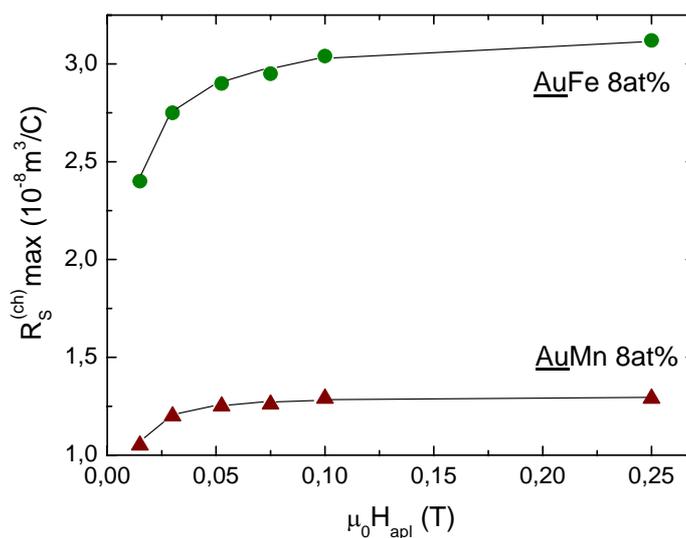


Figura 5.35 - Valor máximo da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo, determinada a partir do pico nas curvas de $R_S^{(ch)}$ versus T, em função do campo magnético aplicado para as amostras AuMn 8at% e AuFe 8at%. As linhas são guias visuais.

SISTEMAS REENTRANTES

Da mesma maneira que foi feito nos vidros-de-spin, determinamos a contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para os sistemas reentrantes estudados neste trabalho. O comportamento de $R_S^{(ch)}$ como função da temperatura está ilustrado nas figuras 5.36, 5.37 e 5.38.

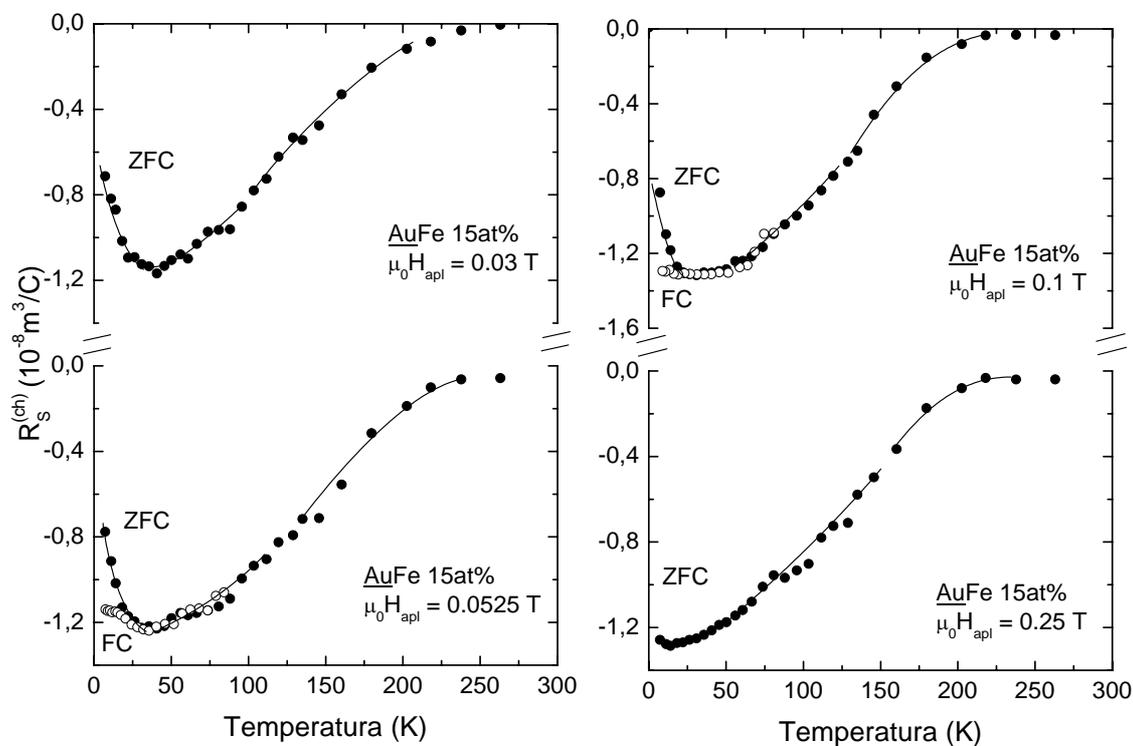


Figura 5.36 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra AuFe 15at\% . As linhas são guias visuais.

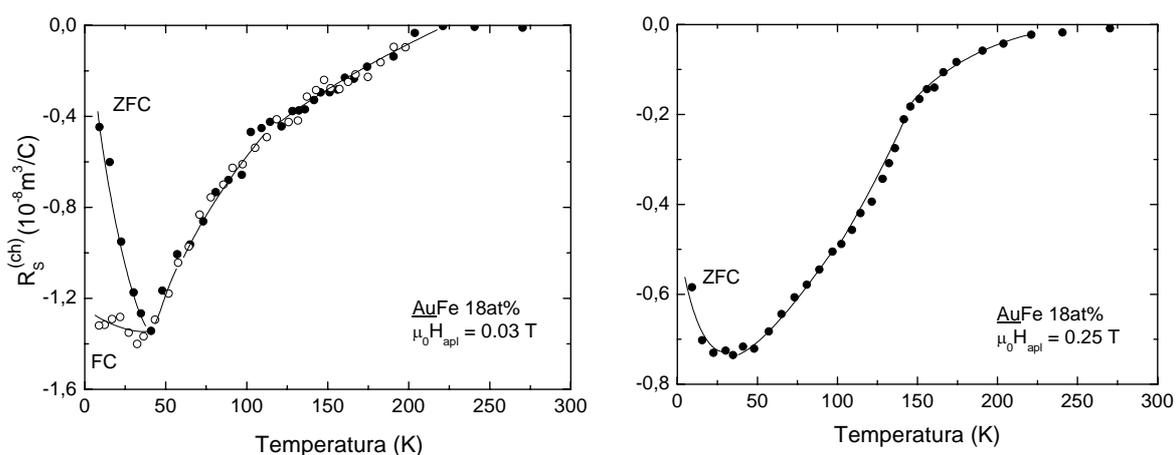


Figura 5.37 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra reentrante AuFe 18at\% . As linhas são guias visuais.

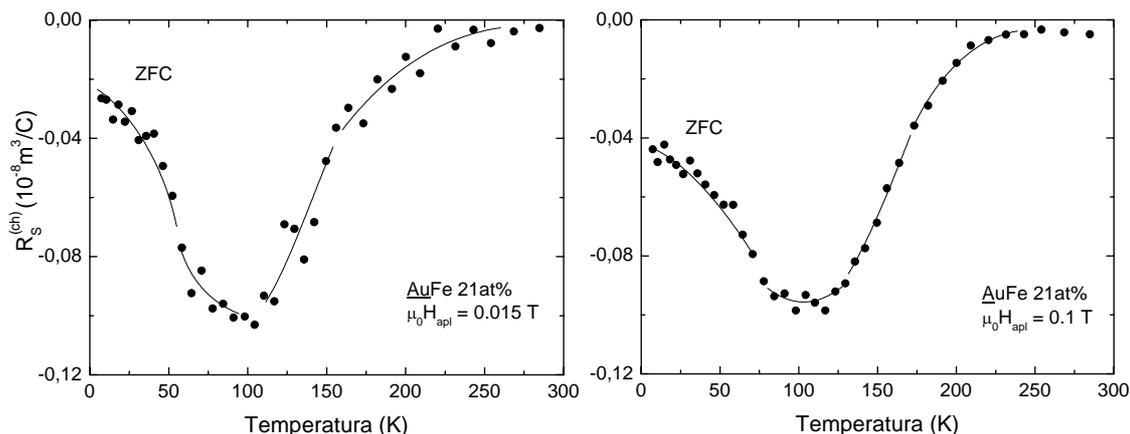


Figura 5.38 – Contribuição chiral ao efeito Hall anômalo para a amostra reentrante AuFe 21at%. As linhas são guias visuais.

As amostras reentrantes estudadas também apresentam uma contribuição chiral ao efeito Hall anômalo. O comportamento de $R_S^{(ch)}$ em função da temperatura é similar ao obtido para as amostras do tipo vidro-de-spin. Contudo, $R_S^{(ch)}$ apresenta um mínimo negativo nas proximidades da temperatura de “canting”. O comportamento de $R_S^{(ch)maximo}$ em função do campo magnético nestes sistemas está ilustrado na figura 5.39.

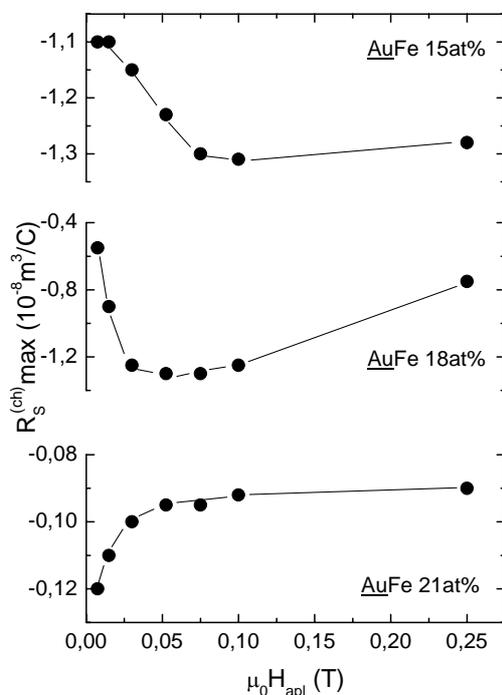


Figura 5.39 - Valor máximo da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo, determinada a partir do pico nas curvas de $R_S^{(ch)}$ versus T , em função do campo magnético aplicado para as amostras reentrantes. As linhas são guias visuais.

A figura 5.39 mostra que a intensidade máxima da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo evolui com o aumento do campo magnético de uma maneira distinta para cada amostra. Nos sistemas AuFe 15at% e AuFe 18at%, $R_S^{(ch)maximo}$ inicialmente torna-se mais negativo com o campo e depois tende a diminuir. Para a amostra AuFe 21at%, em todo o intervalo de campos estudados, observamos que a intensidade de $R_S^{(ch)maximo}$ decresce com H.

Com o intuito de observar a evolução da intensidade da contribuição chiral nos diferentes sistemas estudados, apresentamos a figura 5.40, que compara as curvas de $|R_S^{(ch)}|$ em função da temperatura para todas as amostras da série AuFe x at% medidas sob campo aplicado de 0.015 e 0.1 T. Observa-se que a intensidade da contribuição de origem chiral diminui progressivamente com o aumento da concentração de Fe, tornando-se muito pequena na amostra AuFe 21at%.

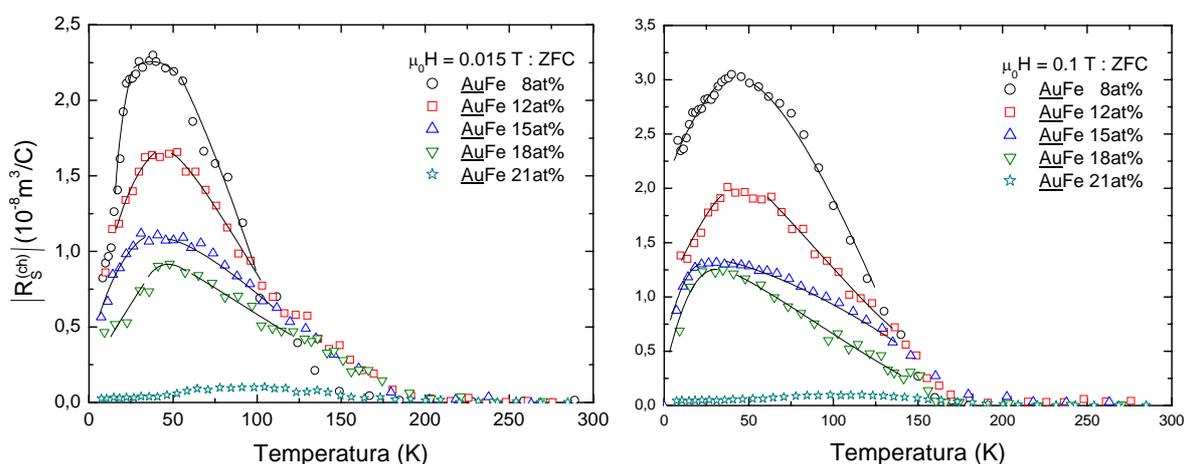


Figura 5.40 - $|R_S^{(ch)}|$ em função da temperatura para as amostras da série AuFe x at%. A contribuição chiral é maior na amostra AuFe 8at% e diminui progressivamente com o aumento da concentração de Fe.

A variação do módulo da contribuição chiral ao efeito Hall anômalo em função da concentração no sistema AuFe x at%, é ilustrado na figura 5.41 para diferentes campos magnéticos estudados. Em todos os casos, observa-se que o aumento da concentração de Fe diminui a intensidade da contribuição ao efeito Hall anômalo devida à chiralidade, o que é consistente com o estabelecimento progressivo de ordem ferromagnética e diminuição de canting com o aumento da concentração de Fe. Como esperado, o efeito da chiralidade é mais evidente nas amostras do tipo vidro-de-spin.

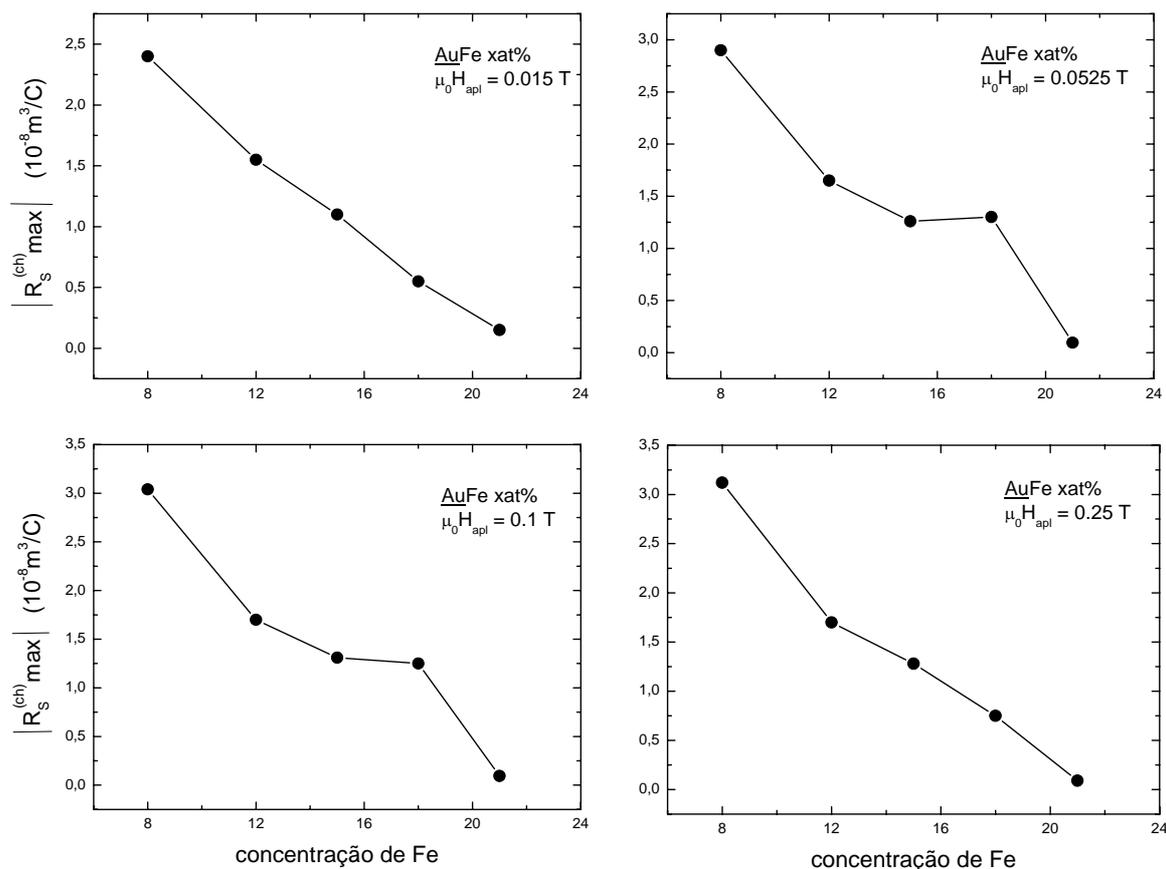


Figura 5.41 – Comportamento de $R_S^{(ch) \max imo}$ em função da concentração de átomos de Fe no sistema AuFe xat%.

Na figura 5.42 mostra-se a variação da razão $|R_S^{(ch)} / R_S^{(sj)}|$ em função da concentração de Fe para temperaturas fixas de $T = 30 \text{ K}$ e $T = 50 \text{ K}$ em alguns dos campos aplicados. Observa-se um máximo para $x = 18 \text{ at\%}$.

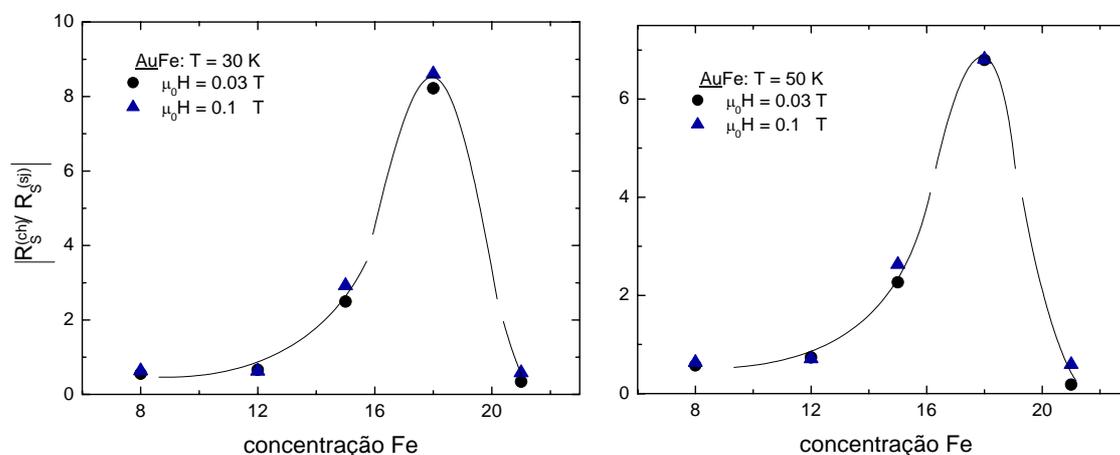


Figura 5.42 - Razão $|R_S^{(ch)} / R_S^{(sj)}|$ em função da concentração de Fe para $T = 30 \text{ K}$ e $T = 50 \text{ K}$.

Confirmando as previsões teóricas⁷², o coeficiente Hall anômalo dos vidros-de-spin e dos sistemas reentrantes estudados neste trabalho apresenta uma contribuição devida ao ordenamento de vidro chiral, característico dos vidros-de-spin e que também se manifesta nos reentrantes em razão do “canting” dos momentos magnéticos nestes sistemas. Estes são os primeiros resultados¹⁰⁶ mostrando que efeitos de chiralidade, uma propriedade fundamental de sistemas desordenados e frustrados, podem ser diretamente identificados a partir de uma técnica experimental em sistemas do tipo vidro-de-spin de Heisenberg canônicos e em sistemas reentrantes.

5.5.4 – Estimativa da susceptibilidade chiral para as amostras AuMn 8at% e AuFe 8at%

Conforme vimos no capítulo 2, a contribuição chiral ao efeito Hall anômalo contém informações sobre a susceptibilidade linear e a susceptibilidade não-linear de origem chiral.

A partir da equação obtida por Kawamura para o coeficiente Hall anômalo (equação 2.24):

$$R_S = R_S^{skew} + R_S^{SJ} - \tilde{C}D[X_\chi + X_\chi^{nl}(DM)^2] \quad , \quad (5.7)$$

identificamos a contribuição de origem chiral, a qual é dada por:

$$R_S^{(ch)} = -\tilde{C}D[X_\chi + X_\chi^{nl}(DM)^2] \quad . \quad (5.8)$$

Levando-se em conta que $\rho_h^{(ch)} = R_S^{(ch)}M$, obtemos:

$$\rho_h^{(ch)} = -\tilde{C}DX_\chi M - \tilde{C}D^3X_\chi^{nl}M^3 \quad . \quad (5.9)$$

Definindo novas constantes, $a = -\tilde{C}D$ e $b = -\tilde{C}D^3$, obtemos:

$$\rho_h^{(ch)} = aX_\chi M + bX_\chi^{nl} M^3, \quad (5.10)$$

ou

$$R_S^{(ch)} = aX_\chi + bX_\chi^{nl} M^2. \quad (5.11)$$

Assim, a identificação de um regime linear em curvas do coeficiente Hall de origem chiral em função de M^2 numa região onde a magnetização é suficientemente pequena permite a identificação simultânea de aX_χ e bX_χ^{nl} .

Segundo Kawamura⁷⁴, a susceptibilidade chiral linear exibe uma singularidade do tipo cúspide enquanto que a susceptibilidade chiral não-linear exibe uma divergência. Estas susceptibilidades podem ser expressas na forma:

$$X_\chi \approx c_0^{(\pm)} |t|^{\beta_\chi} + b_0(t) \quad \text{e} \quad X_\chi^{nl} \approx c_2^{(\pm)} |t|^{-\gamma_\chi} + b_2(t), \quad (5.12)$$

onde $t = \frac{T - T_g}{T_g}$, $\beta_\chi \cong 1$ e $\gamma_\chi \cong 2$. As constantes $c_0^{(\pm)} < 0$ e $c_2^{(\pm)} < 0$ referem-se ao comportamento acima e abaixo de T_g , enquanto que $b_0(t) > 0$ e $b_2(t)$ representam termos regulares.

Uma estimativa para a susceptibilidade chiral linear e não-linear nas amostras do tipo vidro-de-spin AuMn 8at% e AuFe 8at% foi feita a partir das equações 5.10 e 5.11 e seus comportamentos com a temperatura estão ilustradas nas figuras 5.43, 5.44, 5.45 e 5.46.

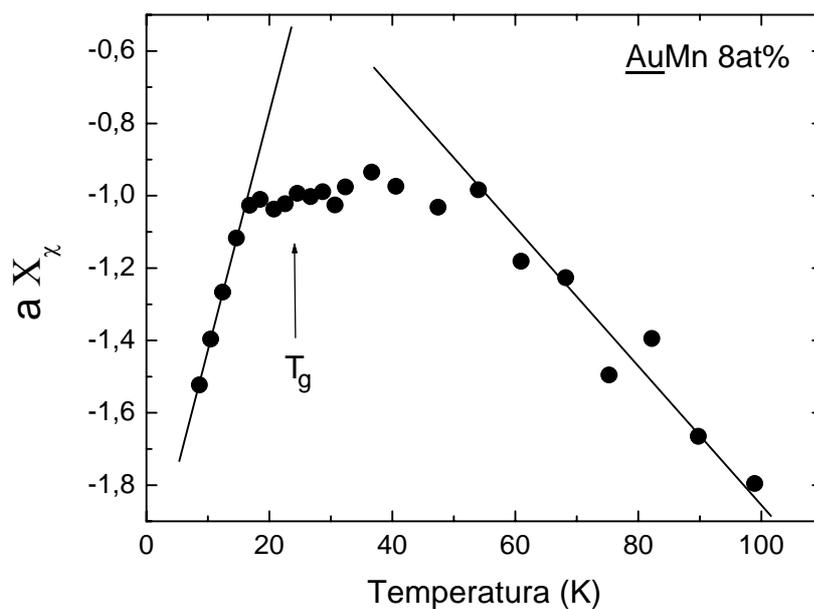


Figura 5.43 – Susceptibilidade chiral linear para a amostra AuMn 8at\% .

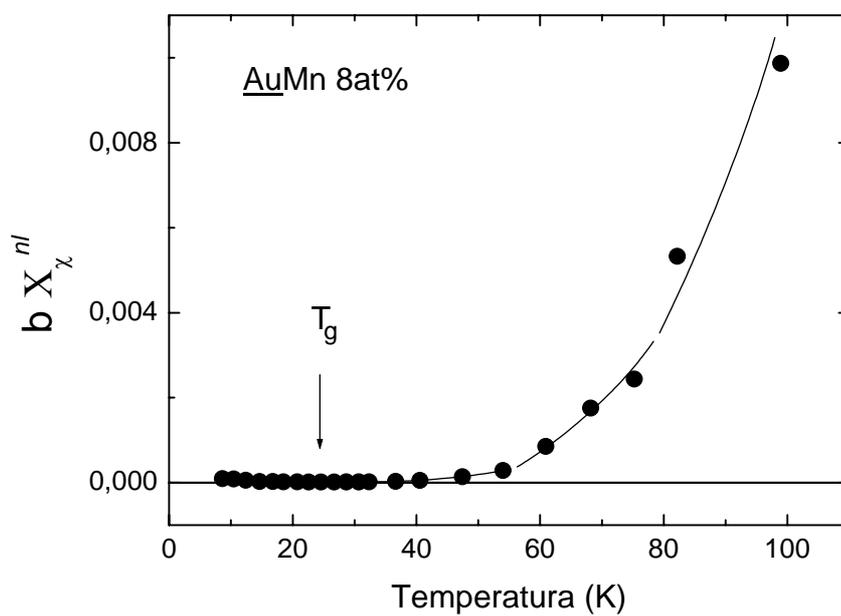


Figura 5.44 – Susceptibilidade chiral não-linear para a amostra AuMn 8at\% .

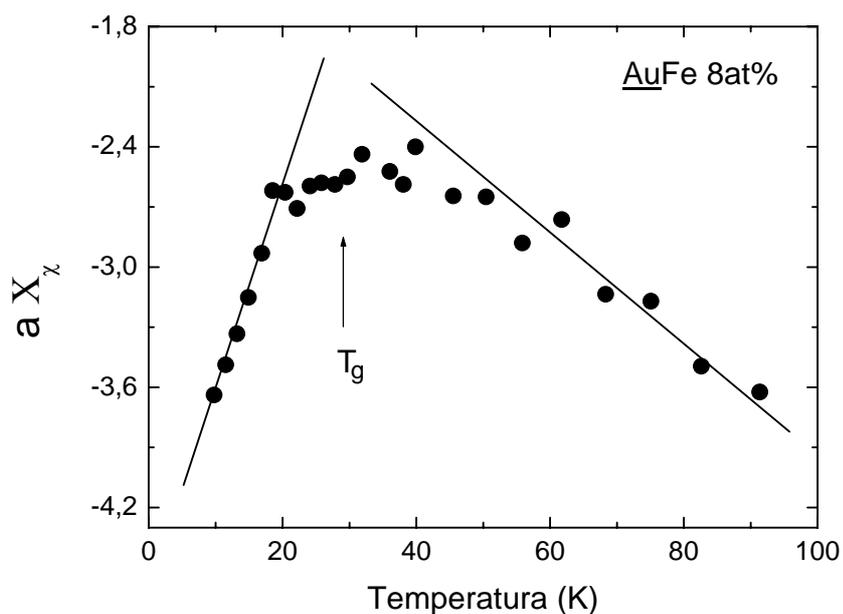


Figura 5.45 – Susceptibilidade chiral linear para a amostra AuFe 8at%.

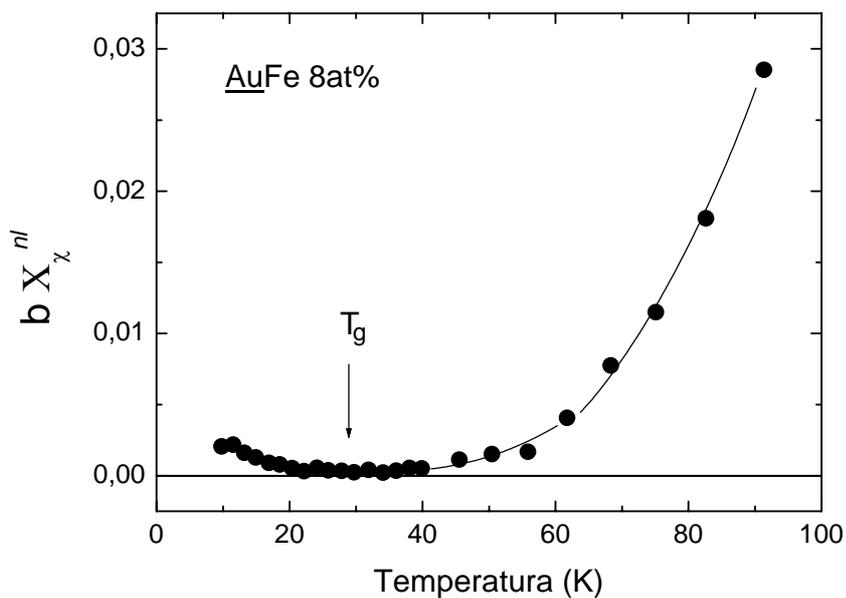


Figura 5.46 – Susceptibilidade chiral não-linear para a amostra AuFe 8at%.

Os resultados obtidos para ambas as amostras mostram que a susceptibilidade chiral linear apresenta uma anomalia nas proximidades de $T = T_g$. Este comportamento é refletido no coeficiente Hall anômalo. A anomalia observada nas figuras 5.43 e 5.45 não é do tipo cuspide – como previsto por Kawamura – provavelmente devido à presença de fortes flutuações chirais na fase paramagnética, que são detectáveis em experiências “rápidas”

como o efeito Hall. A susceptibilidade chiral não-linear, embora tenha o sinal previsto teoricamente, não apresenta comportamento divergente. Acreditamos que isto também se deve às flutuações de chiralidade.

5.5.5 – *Discussão final*

Os resultados experimentais apresentados neste capítulo mostram que o efeito Hall anômalo em sistemas magnéticos desordenados e frustrados não pode ser interpretado apenas levando-se em conta a teoria convencional baseada no acoplamento spin-órbita. As estruturas formadas pela configuração não-trivial dos spins (chiralidade) induz uma contribuição suplementar ao efeito Hall. Como vimos, é possível identificar a contribuição devida às chiralidades, $R_S^{(ch)}$, ao efeito Hall anômalo que é aditiva à contribuição convencional. Além disso, esta contribuição de origem chiral torna-se dominante nas proximidades da temperatura de congelamento para os sistemas vidros-de-spin e da temperatura de “canting” para os sistemas reentrantes.

Este estudo da resistividade Hall extraordinária nos vidros-de-spin indica que a natureza física da transição e do congelamento dos spins nestes sistemas é controlada pela chiralidade. A presença da chiralidade se faz importante nos sistemas de spins aleatoriamente frustrados e leva o sistema a um estado ordenado de vidro chiral (no qual as chiralidades são congeladas de uma maneira espacialmente aleatória) que torna-se estável através de uma transição de fase termodinâmica. A transição magnética está associada à transição chiral via mecanismos de anisotropia, tal como discutido no cenário proposto por Kawamura.

O modelo de vidro chiral descreve bem o comportamento do efeito Hall anômalo nos sistemas vidros-de-spin e reentrantes. Contudo, é possível que alguns ajustes na teoria tenham que ser considerados, principalmente quanto ao comportamento da susceptibilidade chiral não-linear, onde não observamos a divergência prevista pela teoria. Além disso, a presença de correlações de origem chiral na região paramagnética é outro ponto que deve merecer atenção.

Acreditamos que este trabalho contribui no sentido do esclarecimento do mecanismo responsável pelo ordenamento em sistemas do tipo vidro-de-spin e reentrantes. Esperamos que, incentivados pela observação experimental direta de efeitos da chiralidade, novas pesquisas em sistemas desordenados e frustrados sejam realizadas.

Conclusões

Realizamos, neste trabalho, um estudo experimental de propriedades de transporte elétrico e de magnetização DC em uma amostra granular do supercondutor de alta temperatura crítica $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (YBCO) e em amostras do tipo vidro-de-spin e reentrantes das ligas magnéticas diluídas $\underline{\text{AuMn}}$ 8at% e $\underline{\text{AuFe}}$ x at% ($x = 8, 12, 15, 18$ e 21). Estes materiais são caracterizados pela presença de desordem e frustração. Foram estudados efeitos das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica e a linha de irreversibilidades magnéticas na amostra supercondutora. As ligas magnéticas foram estudadas a partir de experimentos de efeito Hall anômalo. As conclusões correspondentes aos resultados obtidos são apresentadas a seguir.

1 – Amostra granular de YBCO

A – Flutuações termodinâmicas

Verificou-se que a transição resistiva para o estado supercondutor ocorre segundo um processo de duas etapas. Inicialmente, a supercondutividade é estabelecida no interior dos grãos que compõem o sistema em uma temperatura, T_C , que é praticamente coincidente com a temperatura crítica de amostras massivas (transição de pareamento). Em temperaturas inferiores, ocorre a transição de coerência, que caracteriza o estabelecimento do estado de resistência nula numa temperatura crítica denominada de T_{C0} . Estas observações indicam que, na transição resistiva de amostras granulares, ocorrem regimes dominados por flutuações na amplitude (transição de pareamento) e na fase (transição de coerência) do parâmetro de ordem. Na transição de coerência, as fases do parâmetro de ordem dos grãos individuais são correlacionadas através do acoplamento de Josephson intergrão e adquirem ordem de longo alcance. A aplicação de campo magnético provoca o alargamento do regime de flutuações precursor à transição de coerência.

Na fase normal, foi estudado o regime assintótico nas proximidades imediatas da transição de pareamento. O expoente crítico para o excesso de condutividade elétrica neste regime evolui com o aumento do campo magnético. No caso de baixos campos, os pequenos valores encontrados para o expoente sugerem a ocorrência de regimes “super-críticos” (além

do 3D-XY). No intervalo de campos intermediários, a transição para o estado supercondutor é dominada por flutuações 3D-XY com dinâmica dada pelo modelo-E. Na região de altos campos, o valor encontrado para o expoente crítico sugere que restam apenas flutuações Gaussianas tridimensionais. Portanto, o aumento do campo magnético tende a desestabilizar os regimes “super-críticos” assim como o regime 3D-XY. Os resultados para os expoentes críticos da condutividade na fase normal do YBCO são indicativos de que a supercondutividade neste sistema é um fenômeno genuinamente tridimensional.

A análise das flutuações na região precursora à transição de coerência permite a identificação de um regime em lei de potências cujo expoente assume o valor $\bar{\lambda}_c = 3.2 \pm 0.1$ no limite em que o campo magnético tende a zero e $\bar{\lambda}_c = 4.1 \pm 0.3$ para $0.001 < \mu_0 H < 3$ T. A interpretação destes resultados é feita com base na existência de um crossover na dinâmica crítica, causado pela aplicação de campos magnéticos de baixa intensidade. Considerando o modelo de vidro chiral, no qual $\eta = -0.2$ e $\nu \cong 4/3$, encontramos que no regime de campos aplicados muito baixos, o expoente crítico dinâmico assume o valor $z \approx 3$, que é compatível com simulações numéricas baseadas no Hamiltoniano de tunelamento de pares. Na presença de campos magnéticos mais intensos, os resultados encontrados para o expoente λ_c são compatíveis com um expoente crítico dinâmico $z \approx 4$, que é característico de sistemas cuja dinâmica é do tipo vidro-de-spin.

O comportamento da condutividade elétrica é consistente com a ocorrência de uma transição de fase em T_{C0} . A classe de universalidade para esta transição é do tipo 3D-XY com desordem relevante. Na região precursora à transição de coerência foi também possível descrever o comportamento do excesso de condutividade na forma de uma lei de escala, o que representa um teste de validação para a criticalidade da transição de coerência.

B – Linha de irreversibilidades magnéticas

As temperaturas de irreversibilidades, T_{IRR} , são obtidas para o YBCO granular a partir de medidas de magnetização DC e magnetoresistência segundo os procedimentos ZFC e FC. Nota-se que a separação entre essas curvas ocorre em temperaturas nitidamente inferiores à temperatura crítica de pareamento. A temperatura na qual ocorre a separação entre as curvas ZFC e FC é deslocada para mais baixas temperaturas com o aumento do campo magnético. Convém ressaltar que as temperaturas de irreversibilidades determinadas com as duas técnicas são coincidentes dentro da imprecisão experimental.

Nossos resultados indicam que a linha de irreversibilidades segue um comportamento do tipo Almeida-Thouless (AT) para campos magnéticos aplicados entre 0 e 0.1 T. Na faixa de campos $0.1 < \mu_0 H < 1$ T, a linha de irreversibilidades segue um comportamento do tipo Gabay-Toulouse (GT). Em campos superiores a 1 T, a linha de irreversibilidades representa uma linha de depinning, tal como previsto pela teoria de flux-creep gigante.

Uma discussão do comportamento em campo e temperatura da linha de irreversibilidades magnéticas com base no ordenamento de vidro chiral é apresentada. Segundo esta interpretação, a linha que denota a transição para um estado de vidro chiral tem uma curvatura do tipo GT, exatamente como foi observado experimentalmente no YBCO granular. Portanto, no regime de campos até 1 T, a linha de irreversibilidades indica a estabilização de um estado ordenado de vidro chiral formado por estruturas frustradas localmente, que são representadas por correntes orbitais através de anéis fechados de grãos supercondutores. Em campos superiores a 1 T, a dinâmica de vórtices de Abrikosov intergrãos passa a ser relevante para a descrição do comportamento magnético do sistema.

As temperaturas de irreversibilidade são localizadas entre as temperaturas correspondentes à transição de pareamento e àquelas que definem a transição de coerência. Estes resultados sugerem que a linha de irreversibilidades está relacionada com o limite superior da região paracoerente da fase supercondutora. Assim, a temperatura de irreversibilidade, $T_{IRR}(H)$, representa a transição para o estado de vidro chiral, enquanto que $T_{C0}(H)$ é uma temperatura que define o bloqueio das fases, análoga à temperatura de congelamento do sistema vidro-de-spin. Entre T_{IRR} e T_{C0} ocorre uma fase puramente chiral. Em temperaturas inferiores à T_{C0} , o material está na fase supercondutora, com resistência elétrica nula.

2 – Sistemas magnéticos $\underline{\text{AuMn}}$ 8at% e $\underline{\text{AuFe}}$ x at%

A – Efeito Hall anômalo

As medidas de magnetização mostram um comportamento típico de sistemas vidro-de-spin para as amostras $\underline{\text{AuMn}}$ 8at%, $\underline{\text{AuFe}}$ 8at% e $\underline{\text{AuFe}}$ 12at%, cujas temperaturas de congelamento, T_g , são, respectivamente, 24 K, 28 K e 37 K. As amostras $\underline{\text{AuFe}}$ 15at%, $\underline{\text{AuFe}}$ 18at% e $\underline{\text{AuFe}}$ 21at% mostram um caráter do tipo reentrante. Em todas as amostras verificam-se as irreversibilidades ZFC-FC em baixos campos magnéticos aplicados.

O comportamento observado nas medidas de efeito Hall nas amostras vidros-de-spin é semelhante aos resultados de susceptibilidade magnética. O sinal da tensão Hall é sempre negativo nestes sistemas. Observa-se um mínimo nas curvas do coeficiente Hall total, R_h , em função da temperatura, que corresponde à transição para o estado de vidro-de-spin. No caso de campos magnéticos suficientemente baixos, a transição para o estado de ordenamento vidro-de-spin é caracterizada por uma anomalia do tipo cúspide no comportamento de R_h quando a medida é feita segundo o procedimento ZFC. Pode-se notar também que, abaixo da temperatura do cúspide, ocorrem os efeitos de irreversibilidade magnética denotados pela separação entre as curvas ZFC e FC. À medida que o campo magnético é aumentado, ocorre um arredondamento progressivo do pico correspondente à transição vidro-de-spin na curva ZFC.

Os resultados de efeito Hall para a amostra reentrante AuFe 15at% diferem do comportamento apresentado pelas ligas do tipo vidro-de-spin. Em baixas temperaturas o coeficiente Hall é negativo. Porém, numa região de altas temperaturas, o coeficiente Hall total medido é positivo. O sinal Hall para a amostra AuFe 18at% é positivo no regime paramagnético e numa região ferromagnética de alta temperatura, antes de mostrar uma inversão de sinal em $T \sim 110$ K. O máximo positivo que é observado em aproximadamente 165 K está associado à temperatura de Curie e o mínimo negativo em baixas temperaturas corresponde à temperatura de “canting”. A amostra com mais alta concentração de impurezas magnéticas estudada neste trabalho (AuFe 21 at%) exhibe um comportamento análogo ao da amostra AuFe 18at%, porém o sinal Hall é predominantemente positivo nesta amostra.

O comportamento do coeficiente Hall anômalo, R_S , apresenta um máximo pronunciado nas proximidades da temperatura de congelamento para as curvas medidas segundo o procedimento ZFC nas amostras vidros-de-spin, enquanto que R_S apresenta um mínimo negativo nas vizinhanças da temperatura de canting dos sistemas reentrantes. O valor de R_S é sempre negativo nas amostras AuMn 8at%, AuFe 8at% e AuFe12at%. Nos sistemas reentrantes, a situação é mais complexa. Nos sistemas AuFe 15at% e AuFe 18at%, R_S é negativo em baixas temperaturas e torna-se positivo em temperaturas superiores a 140 K e 130 K, respectivamente. No sistema AuFe 21at%, R_S é predominantemente positivo. Além disso, os efeitos de irreversibilidade estão presentes em temperaturas inferiores à T_g nas medidas com baixo campo magnético aplicado. Estes resultados sugerem a presença de duas contribuições para R_S : um background somado com uma contribuição positiva, no caso dos sistemas vidros-de-spin ou negativa, no caso dos reentrantes. Supomos que uma delas (background) é a contribuição de side-jump, que é conhecida para sistemas magnéticos e deve

ser relevante em ligas concentradas. Contudo, a contribuição de side-jump não prevê a ocorrência de nenhum tipo de anomalia em R_S , o que foi verificado em nossos resultados.

A contribuição adicional ao efeito Hall anômalo é interpretada como tendo origem chiral, tal como proposto na teoria de H. Kawamura⁶⁶. Nenhum outro modelo para o efeito Hall prevê uma contribuição que apresente uma anomalia no comportamento de R_S nas proximidades de T_g . Mostra-se, assim, que o coeficiente Hall anômalo dos vidros-de-spin e dos sistemas reentrantes estudados neste trabalho apresenta uma contribuição devida à chiralidade, que é associada ao estabelecimento do ordenamento magnético nos vidros-de-spin e ao “canting” nos sistemas reentrantes. Mostra-se também que os efeitos da chiralidade, uma propriedade fundamental de sistemas desordenados e frustrados, podem ser diretamente observados a partir desta técnica experimental.

A partir dos resultados experimentais apresentados neste trabalho, concluímos que os efeitos relacionados as chiralidades são importantes na descrição da natureza física da transição para o estado de resistência nula no supercondutor granular de alta temperatura crítica, e do congelamento de spins na fase ordenada dos sistemas magnéticos desordenados e frustrados. Portanto, os resultados desta tese reforçam a importância da chiralidade na descrição das propriedades de sistemas físicos variados em que a desordem não-trivial, isto é, acompanhada de frustração, esteja presente.

Referências

- [1] GAVALER, J. R. Superconductivity in Nb-Ge films above 22 K. *Applied Physics Letters*, New York, v. 23, n. 8, p. 480-482, Oct. 1973.
- [2] BEDNORZ, J. G.; MÜLLER, K. A. Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. *Zeitschrift für Physik B*, Berlin, v. 64, n. 2, p. 189-193, Sept. 1986.
- [3] BEDNORZ, J. G.; MÜLLER, K. A.; TAKASHIGE, M. Superconductivity in alkaline earth-substituted La₂CuO_{4-y}. *Science*, Washington, v. 236, n. 4797, p. 73-75, Apr. 1987.
- [4] WU, M. K. Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 9, p. 908-910, Mar. 1987.
- [5] MAEDA, H. et al. A new high-T_c oxide superconductor without a rare earth element. *Japanese Journal of Applied Physics*, Tokyo, v. 27, n. 2, p. L209-L210, Feb. 1988.
- [6] HERMANN, A. M. et al. Magnetization of the 120 K Tl-Ca-Ba-Cu-O superconductor. *Physical Review B*, Woodbury, v. 37, n. 16, p. 9742-9744, June 1988.
- [7] SCHILLING, A. et al. Superconductivity above 130 K in the Hg-Ba-Ca-Cu-O system. *Nature*, London, v. 363, n. 6424, p. 56-58, May 1993.
- [8] ZHOU, H. et al. Normal and superconducting state magnetic properties of RBa₂Cu₃O_{7-δ} compounds. *Physica C*, Amsterdam, v. 152, n. 4, p. 321-328, June 1988.
- [9] KADOWAKI, K. et al. Coexistence of magnetism and high-T_c superconductivity in GdBa₂Cu₃O₇. *Physica B*, Amsterdam, v. 145, n. 3, p. 260-266, Aug. 1987.
- [10] GUO-MENG, Z.; RUI-LAN, W.; ZI-WEN, D. Magnetism and superconductivity in Ba₂GdCu₃O_{7-y}. *Solid State Communications*, Oxford, v. 65, n. 11, p. 1395-1398, Nov. 1988.
- [11] CAVA, R. J. et al. Structural anomalies at the disappearance of superconductivity in Ba₂YCu₃O_{7-δ}: evidence for charge transfer from chains to planes. *Physica C*, Amsterdam, v. 156, n. 4, p. 523-527, Nov. 1988.
- [12] JORGENSEN, J. D. et al. Structural properties of oxygen-deficient YBa₂Cu₃O_{7-δ}. *Physical Review B*, Woodbury, v. 41, n. 4, p. 1863-1877, Feb. 1990.
- [13] TARASCON, J. M. et al. Oxygen and rare-earth doping of the 90-K superconducting perovskite YBa₂Cu₃O_{7-x}. *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 1, p. 226-234, July 1987.
- [14] NAMGUNG, C.; IRVINE, J. T. S.; WEST, A. R. Absence of critical temperature plateaux in quenched samples of YBa₂Cu₃O_x. *Physica C*, Amsterdam, v. 168, n. 3/4, p. 346-350, June 1990.

- [15] FRIEDMANN, T. A. et al. Direct measurement of the anisotropy of the resistivity in the a-b plane of twin-free, single-crystal, superconducting $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 42, n. 10, p. 6217-6221, Oct. 1990.
- [16] PUREUR, P.; SCHAF, J.; KUNZLER, J. Electric and magnetic measurements on the high- T_c oxide superconductors $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. In: LATIN-AMERICAN CONFERENCE ON HIGH TEMPERATURE SUPERCONDUCTIVITY, 1., 1988, Rio de Janeiro. *Proceedings of the ...* Edited by R. Nicolsky et al. Singapore: World Scientific, 1988. p. 137-144.
- [17] COSTA, R. M. *Flutuações na magnetocondutividade de supercondutores de alta temperatura crítica*. 1998. 149 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [18] MALOZEMOFF, A. P. Macroscopic magnetic properties of high temperature superconductors. In: GINSBERG, D. M. (Ed.). *Physical properties of high temperature superconductors*. Singapore: World Scientific, 1989. v. 1, p. 71-150.
- [19] KOBAYASHI, N. et al. Upper and lower critical field of $\text{ReBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_z$ compounds. *Physica C*, Amsterdam, v. 153/155, p. 1525-1526, July 1988. pt. 2.
- [20] NEUMEIER, J. J. et al. Upper critical magnetic field measurements in $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (R = rare earth) compounds. *Physica C*, Amsterdam, v. 152, n. 4, p. 293-301, June 1988.
- [21] MÜLLER, K. A. et al. Flux trapping and superconductive glass state in $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}:\text{Ba}$. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 11, p. 1143-1146, Mar. 1987.
- [22] CANELLA, V.; MYDOSH, J. A. Magnetic ordering in gold-iron alloys. *Physical Review B*, New York, v. 6, n. 11, p. 4220-4237, Dec. 1972.
- [23] WOHLFARTH, E. P. *Ferromagnetic materials: a handbook on the properties of magnetically ordered materials*. Amsterdam: North-Holland, 1980. v. 1.
- [24] COLES, B. R. et al. The role of finite magnetic clusters in Au-Fe alloys near the percolation concentration. *Philosophical Magazine B*, London, v. 37, n. 4, p. 489-498, Apr. 1978.
- [25] SARKISSIAN, B. V. B.; TAYLOR, R. H. Electrical resistivity of Pt-Mn alloys. *Journal of Physics F*, Bristol, v. 4, n. 19, p. L243-L248, Oct. 1974.
- [26] MYDOSH, J. A. et al. Electrical resistivity of Au Fe alloys in the spin-glass, mictomagnetic, and ferromagnetic regimes. *Physical Review B*, New York, v. 10, n. 7, p.2845-2856, Oct. 1974.
- [27] SCHILLING, J. S. Pressure as a parameter in the study of dilute magnetic alloys. *Advances in Physics*, London, v. 28, n. 5, p. 657-715, Sept. 1979.
- [28] HUANG, C. Y. Some experimental aspects of spin glasses: a review. *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Amsterdam, v. 51, n. 1/3, p. 1-74, Aug. 1985.

- [29] BRODALE, G. E. et al. The effect of spin-glass ordering on the specific heat of CuMn . *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Amsterdam, v. 31/34, n. 3, p. 1331-1333, Feb. 1983.
- [30] RIVIER, N.; ADKINS, K. Resistivity of spin glasses. *Journal of Physics F*, Bristol, v. 5, n. 9, p. 1745-1755, Sept. 1975.
- [31] CAMPBELL, I. A. Resistivity and relaxation in spin-glasses. *Physical Review Letters*, New York, v. 47, n. 20, p. 1473-1475, Nov. 1981.
- [32] McALISTER, S. P.; HURD, C. M. Anomalous Hall effect in some typical spin glass alloys. *Journal of Physics F*, Bristol, v. 8, n. 2, p. 239-246, Feb. 1978.
- [33] BARNARD, R. D.; UL-HAQ, I. The low-field Hall effect and susceptibility of archetypal spin glasses - evidence for a second magnetic transition. *Journal of Physics F*, Bristol, v. 18, n. 6, p. 1253-1270, June 1988.
- [34] CANELLA, V. et al. Effect of magnetic ordering on the thermoelectric power of concentrated Au(Fe) . *Journal of Applied Physics*, New York, v. 41, n. 3, p. 1421-1422, Mar. 1970.
- [35] FOILES, C. L. Thermopower in some classic spin-glasses. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 67, n. 3, p. 214-216, Aug. 1978.
- [36] STANLEY, H. E. *Introduction to phase transitions and critical phenomena*. Oxford: Clarendon Press, 1971. 308 p.
- [37] GINZBURG, V. L. Some remarks on phase transitions of the second kind and the microscopic theory of ferroelectric materials. *Soviet Physics – Solid State*, New York, v. 2, n. 9, p. 1824-1834, Mar. 1961.
- [38] ASLAMAZOV, L. G.; LARKIN, A. I. Effect of fluctuation on the properties of a superconductor above the critical temperature. *Soviet Physics - Solid State*, New York, v. 19, n. 4, p. 875-880, Oct. 1968.
- [39] MAKI, K.; THOMPSON, R. S. Fluctuation conductivity of high- T_c superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 39, n. 4, p. 2767-2770, Feb. 1989.
- [40] LAWRENCE, W. E.; DONIACH, S. Theory of layer structure superconductors. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON LOW TEMPERATURE PHYSICS, 12., 1970, Kyoto. *Proceedings of the...* Edited by E. Kando. Kyoto: Academic Press of Japan, 1971. p.361-362.
- [41] HOHENBERG, P. C.; HALPERIN, B. I. Theory of dynamics critical phenomena. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 49, n. 3, p. 435-475, July 1977.
- [42] LOBB, J. C. Critical fluctuations in high- T_c superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 7, p. 3930-3932, Sept. 1987.

- [43] CHAR, K.; KAPITULNIK, A. Fluctuation conductivity in inhomogeneous superconductors. *Zeitschrift für Physik B*, Berlin, v. 72, n. 2, p. 253-259, Aug. 1988.
- [44] RABOUTOU, A. et al. Fractal vortices in disordered superconductors. *Physica A*, Amsterdam, v. 207, n. 1/3, p. 271-279, June 1994.
- [45] JURELO, A. R. et al. Coherence transition in granular high temperature superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 311, n. 2, p. 133-139, Jan. 1999.
- [46] ROSENBLATT, J. et al. Intragranular and intergranular transitions in Y-Ba-Cu-O ceramics. *Revue de Physique Appliquée*, Les Ulis, v. 25, n. 1, p. 73-78, janv. 1990.
- [47] EBNER, C.; STROUD, D. Diamagnetic susceptibility of superconducting clusters: spin-glass behavior. *Physical Review B*, Woodbury, v. 31, n. 1, p. 165-171, Jan. 1985.
- [48] KAWAMURA, H.; LI, M. S. Chiral glass: a new equilibrium phase of ceramic high-T_c superconductors. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 66, n. 7, p. 2110-2122, July 1997.
- [49] BLATTER, G. et al. Vortices in high-temperature superconductors. *Reviews of Modern Physics*, Woodbury, v. 66, n. 4, p. 1125-1388, Oct. 1994.
- [50] WENGEL, C.; YOUNG, A. P. Common universality class for the three-dimensional vortex glass and chiral glass. *Physical Review B*, Woodbury, v. 56, n. 10, p. 5918-5924, Sept. 1997.
- [51] KURSMATSEV, F. V. Destruction of the Meissner effect in granular high-temperature superconductors. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 69, n. 15 p. 2268-2271, Oct. 1992.
- [52] VILLAIN, J. Two-level systems in a spin-glass model: I. General formalism and two-dimensional model. *Journal of Physics C*, London, v. 10, n. 23, p. 4793-4803, Dec. 1977.
- [53] LI, M. S. Paramagnetic Meissner effect and related dynamical phenomena. *Physics Reports*, Amsterdam, v. 376, n. 3, p. 133-223, Mar. 2003.
- [54] FISHER, M. P. A. Vortex-glass superconductivity: a possible new phase in bulk high-T_c oxides. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 62, n. 12, p. 1415-1418, Mar. 1989.
- [55] BINDER, K.; YOUNG, A. P. Spin glasses: experimental facts, theoretical concepts, and open questions. *Reviews of Modern Physics*, Woodbury, v. 58, n. 4, p. 801-976, Oct. 1986.
- [56] CHIKAZAWA, S.; YUOCHUNAS, Y. G.; MIYAKO, Y. Nonlinear susceptibility of a spin glass compound (Ti_{1-x}V_x)₂O₃. I. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 49, n. 4, p. 1276-1281, Oct. 1980.

- [57] MONOD, P.; BOUCHIAT, H. Equilibrium magnetization of a spin glass: is mean-field theory valid? *Journal de Physique: Lettres*, Paris, v. 43, n. 2, p. L45-L53, janv. 1982.
- [58] MORRIS, B. W. et al. Zero-temperature critical behaviour of vector spin glasses. *Journal of Physics C*, London, v. 19, n. 8, p. 1157-1171, Mar. 1986.
- [59] OLIVE, J. A.; YOUNG, A. P.; SHERRINGTON, D. Computer simulation of the three-dimensional short-range Heisenberg spin glasses. *Physical Review B*, Woodbury, v. 34, n. 9, p. 6341-6346, Nov. 1986.
- [60] KAWAMURA, H. Chiral ordering in Heisenberg spin glasses in two and three dimensions. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 68, n. 25, p. 3785-3788, June 1992.
- [61] KAWAMURA, H. Dynamical simulation of spin-glass and chiral-glass orderings in three-dimensional Heisenberg spin glasses. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 80, n. 24, p. 5421-5424, June 1998.
- [62] HUKUSHIMA, K.; KAWAMURA, H. Chiral-glass transition and replica symmetry breaking of a three-dimensional Heisenberg spin glass. *Physical Review E*, Melville, v. 61, n. 2, p. R1008-R1011, Feb. 2000.
- [63] IMAGAWA, D.; KAWAMURA, H. Replica symmetry breaking transition of the weakly anisotropic Heisenberg spin glasses in magnetic fields. *Physical Review Letters*, Melville, v. 92, n. 7, 772041 4p., Feb. 2004.
- [64] NAKAMURA, T.; ENDOH, S.-I. A spin-glass and chiral-glass transition in a $\pm J$ Heisenberg spin-glass model in three dimensions. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 71, n.9, p. 2113-2116, Sept. 2002.
- [65] LEE, L. W.; YOUNG, A. P. Single spin and chiral glass transition in vector spin glasses in three dimensions. *Physical Review Letters*, Melville, v. 90, n. 22, 2272031 4p., June 2003.
- [66] TATARA, G.; KAWAMURA, H. Chirality-driven anomalous Hall effect in weak coupling regime. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 71, n. 11, p. 2613-2616, Nov. 2002.
- [67] BERGMANN, G. The anomalous Hall effect. *Physics Today*, New York, v. 32, n. 8, p. 25-30, Aug. 1979.
- [68] SMIT, J. The spontaneous Hall effect in ferromagnetics I. *Physica*, Amsterdam, v. 21, n. 6, p. 877-887, Aug. 1955.
- [69] McALISTER, S. P.; HURD, C. M. Field-dependent electron scattering in AgMn and CuMn alloys. *Physical Review B*, New York, v. 15, n. 2, p. 561-568, Jan. 1977.
- [70] FERT, A.; JAOU, O. Left-right asymmetry in the scattering of electrons by magnetic impurities, and a Hall effect. *Physical Review Letters*, New York, v. 28, n. 5, p. 303-307, Jan. 1972.

- [71] BERGER, L. Side-Jump mechanism for the Hall effect of ferromagnets. *Physical Review B*, New York, v. 2, n. 11, p. 4559-4566, Dec. 1970.
- [72] KAWAMURA, H. Anomalous Hall effect as a probe of the chiral order in spin glasses. *Physical Review Letters*, Melville, v. 90, n. 4, 472021 4p., Jan. 2003.
- [73] KOUVEL, J. S.; FISHER, M. E. Detailed magnetic behavior of nickel near its Curie point. *Physical Review*, New York, v. 136, n. 6A, p. 1626-1632, Dec. 1964.
- [74] PUREUR, P. et al. Critical and gaussian conductivity fluctuations in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 17, p. 11420-11425, May 1993.
- [75] ROA-ROJAS, J. et al. Pairing transition, coherence transition, and the irreversibility line in granular $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 18, p. 12457-12462, May 2000.
- [76] DIAS, F. T. *Expansão térmica, magnetização e flutuações na condutividade elétrica do sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* . 1998. 128 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [77] FABRIS, F. W.; ROA-ROJAS, J. ; PUREUR, P. Magnetotransport properties and the irreversibility line in ceramic $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physica C*, Amsterdam, v. 354, n. 1/4, p. 304-308, May 2001.
- [78] VIEIRA, V. das N. *Efeitos das substituições químicas na irreversibilidade magnética e magnetocondutividade do supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* . 2004. 220 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2004.
- [79] FABRIS, F. W. *Transição resistiva e irreversibilidades magnéticas do supercondutor granular $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* . 1998. 102 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [80] JURELO, A. R. *Efeitos de flutuações termodinâmicas em supercondutores de alta temperatura crítica*. 1999. 172 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1999.
- [81] HALPERIN, B. I.; LUBENSKY, T. C.; MA, S.-K. First-order phase transitions in superconductors and smectic-A liquid crystals. *Physical Review Letters*, New York, v. 32, n. 6, p. 292-295, Feb. 1974.
- [82] ROSENBLATT, J. et al. Coherence in 3D networks : application on high-Tc superconductors. *Physica B*, Amsterdam, v. 152, n. 1/2, p. 95-99, Aug. 1988.
- [83] FERREIRA, L. M. *Efeitos de granularidade e flutuações termodinâmicas em supercondutores do sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* . 1998. 117 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.

- [84] GRANATO, E. Resistive transition in π -junction superconductors. *Physical Review B*, Melville, v. 69, n. 12, 012503 4p., Apr. 2004.
- [85] OLSON, T.; YOUNG, A. P. Finite temperature ordering in the three-dimensional gauge glass. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 18, p. 12467–12473, May 2000.
- [86] OLSSON, P. Vortex glass transition in a frustrated 3D XY model with disorder. *Physical Review Letters*, Melville, v. 91, n. 7, 770021 4p., Aug. 2003.
- [87] LIDMAR, J. Amorphous vortex glass phase in strongly disordered superconductors. *Physical Review Letters*, Melville, v. 91, n. 9, 097001 4p., Aug. 2003.
- [88] WENGEL, C.; YOUNG, A. P. Common universality class for the three dimensional vortex glass and chiral glass. *Physical Review B*, Woodbury, v. 56, n. 10, p. 5918-5924, Sept. 1997.
- [89] ZIPPELIUS, A. Critical dynamics of spin-glasses. *Physical Review B*, Woodbury, v. 29, n. 5, p. 2717-2723, Mar. 1984.
- [90] FISHER, D. S.; FISHER, M. P. A.; HUSE, D. A. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 43, n. 1, p. 130–159, Jan. 1991.
- [91] KÖTZLER, J. et al. Anisotropic dynamical scaling near the vortex-glass transition of twinned $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 13, p. 2081–2084, Mar. 1994.
- [92] ROJAS, J. R. *Flutuações nas propriedades de magnetotransporte de supercondutores de alta temperatura crítica*. 1999. 192 f. Tese (Doutorado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1999.
- [93] CAROLAN, J. F. et al. The superconducting glass transition in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 64, n. 5, p. 717-719, Nov. 1987.
- [94] ALMEIDA, J. R. L. de; TOULESS, D. J. Stability of the Sherrington-Kirkpatrick solution of a spin glass model. *Journal of Physics A*, Bristol, v. 11, n. 5, p. 983–990, May 1978.
- [95] GABAY, M.; TOULOUSE, G. Coexistence of spin-glass and ferromagnetic orderings. *Physical Review Letters*, New York, v. 47, n. 3, p. 201–204, July 1981.
- [96] YESHURUN, Y.; MALOZEMOFF, A. P. Giant flux creep and irreversibility in an Y-Ba-Cu-O crystal: an alternative to the superconducting-glass model. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 60, n. 21, p. 2202-2205, May 1988.
- [97] NELSON, D. R. Vortex entanglement in high- T_c superconductors. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 60, n. 19, p. 1973-1976, May 1988.
- [98] HOUGHTON, A.; PELCOVITS, R. A.; SUDBØ, A. Flux lattice melting in high- T_c superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 40, n. 10, p. 6763-6770, Oct. 1989.

- [99] KENNING, G. G.; CHU, D.; ORBACH, R. Irreversibility crossover in a Cu:Mn spin glass in high magnetic fields: evidence for the Gabay-Toulouse transition. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 66, n. 22, p. 2923-2926, June 1991.
- [100] FISHER, K. H. Dynamics of vector spin glasses with random anisotropy. *Zeitschrift für Physik B*, Berlin, v. 60, n. 2/4, p. 151-159, Sept. 1985.
- [101] KIVELSON, S. A.; SPIVAK, B. Z. Aharonov-Bohm oscillations with periodic $hc/4e$ and negative magnetoresistance in dirty superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 45, n. 18, p. 10490-10495, May 1992.
- [102] KIRTLEY, J. R. et al. Spontaneous flux and magnetic-interference patterns in $0-\pi$ Josephson junctions. *Physical Review B*, Woodbury, v. 56, n. 2, p. 886-891, July 1997.
- [103] KAWAMURA, H. Phase transition of the three-dimensional Heisenberg antiferromagnet on the layered-triangular lattice. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 54, n. 9, p. 3220-3223, Sept. 1985.
- [104] RODRIGUES JUNIOR, P.; SCHAF, J.; PUREUR, P. Field and oxygen dependence of the magnetic irreversibility line in $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 49, n. 21, p. 15292-15298, June 1994.
- [105] RODRIGUES JUNIOR, P. *Irreversibilidades magnéticas e flutuações na condutividade elétrica do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$* . 1994. 108 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1994.
- [106] PUREUR, P. et al. Chiral susceptibility in canonical spin glass and re-entrant alloys from Hall effect measurements. *Europhysics Letters*, Les Ulis, v. 67, n. 1, p. 1-7, July 2004.