

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL

INSTITUTO DE FÍSICA

PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA

*Fenomenologia Crítica e Correntes AC nos Sistemas
Magnéticos Reentrantes σ -Fe-Cr, σ -Fe-V e Au-Fe**

Reginaldo Barco

Tese realizada sob a orientação de Paulo Pureur Neto e coorientação de Gilberto Luiz Ferreira Fraga e apresentada ao Instituto de Física em preenchimento parcial dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Porto Alegre

Dezembro de 2011

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

“Todo ser humano tem dentro de si
um vazio do tamanho de Deus”.

Fiódor Dostoievski

AGRADECIMENTOS

Antes de tudo, agradeço a Deus, pois, sem a certeza de Sua presença em minha vida, tenho certeza de que não seria capaz de realizar qualquer trabalho;

Aos Profs. Dr. Paulo Pureur e Dr. Gilberto L. F. Fraga pela orientação, paciência, disponibilidade, exemplo e, principalmente, pela partilha de conhecimentos;

Ao Prof. Dr. Jacob Schaf pela fundamental partilha de conhecimentos experimentais;

Ao Prof. Dr. Stanislaw M. Dubiel pela disponibilização de parte das amostras;

Ao Paulo William pela importante amizade;

Ao Luiz Antônio e ao Guilherme pelo suporte criogênico e pelas conversas, nem sempre de cunho científico;

Aos integrantes da oficina mecânica e ao Sr. Otelo pelo suporte;

Aos professores do IF-UFRGS: Miguel A. C. Gusmão, Daniel A. Stariolo, João Batista M. da Cunha, Alba Theuman e M^a. Beatriz Gay Ducatti, pelo aprendizado;

À família de amigos encontrada fora da UFRGS por fazer de minha mudança para Porto Alegre mais adaptável;

A meus familiares, especialmente meus pais: Luiz e Eni, que formaram meu caráter, minha crença e pelo incondicional apoio educacional;

Ao CNPq que, como veículo de ligação entre os brasileiros, financiou parte dessa pesquisa;

Aos colegas de pesquisa do laboratório de Resistividade / Supercondutividade do IF-UFRGS e aos que pelo laboratório passaram durante este trabalho;

A todos enfim que, de alguma forma, colaboraram pessoal ou profissionalmente para que este trabalho fosse realizado.

DEDICATÓRIA

A Claudia, carne de minha carne, e ao nosso amado filho, Jose Luiz por estarem incondicionalmente ao meu lado, tornando meus dias mais completos.

RESUMO

Este trabalho consiste de um estudo da fenomenologia crítica nas vizinhanças da temperatura de Curie (T_C) das ligas binárias reentrantes $\sigma\text{-Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$, onde $x = 0,46$ e $0,49$; $\sigma\text{-Fe}_{0,52}\text{V}_{0,48}$ e $\text{Au}_{1-y}\text{Fe}_y$, onde $y = 0,135$; $0,15$; $0,18$ e $0,21$. As técnicas experimentais empregadas neste estudo são (1) Magnetização e (2) Impedanciometria. As medidas efetuadas permitiram a obtenção dos parâmetros críticos da transição de fase para-ferromagnética e caracterizar a transição reentrante em baixas temperaturas. A criticalidade nas proximidades da temperatura de Curie foi estudada mediante o emprego de diversos métodos, que levaram à identificação dos expoentes críticos estáticos β (magnetização), γ (susceptibilidade paramagnética) e δ (isoterma crítica). O comportamento crítico da susceptibilidade paramagnética nos sistemas $\sigma\text{-FeCr}$ e $\sigma\text{-FeV}$ é melhor descrito quando se considera o escalonamento estendido CHT (Campbell, Hukushima, Takayama), que supõe que a temperatura reduzida deve ser escrita como $\tau = (T - T_C)/T$.

As componentes real e imaginária da permeabilidade magnética são obtidas a partir dos resultados de impedância em função da temperatura, da frequência e do campo magnético aplicado. Nas proximidades de T_C , a parte real da permeabilidade se comporta como uma lei de potência, tanto acima como abaixo de T_C . A análise deste comportamento crítico acima de T_C leva a expoentes críticos razoavelmente coincidentes com aqueles obtidos a partir das medidas magnéticas. Dos resultados de magnetoimpedância, foi possível estimar o campo de anisotropia das amostras estudadas, confirmando a ocorrência das transições de fases para-ferromagnética e ferromagnética-vidro de spin.

ABSTRACT

In this work, we report an experimental study of the critical phenomenology near the Curie temperature (T_C), of the reentrant binary alloys $\sigma\text{-Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$, with $x = 0.46$ and 0.49 ; $\sigma\text{-Fe}_{0.52}\text{V}_{0.48}$ and $\text{Au}_{1-y}\text{Fe}_y$, with $y = 0.135$; 0.15 ; 0.18 and 0.21 . The employed techniques were (1) Magnetization and (2) Impedanciometry. From the results, the ferromagnetic critical phase transition and the reentrant transition at low temperatures were identified. The transition at the Curie temperature was studied using several methods and the static critical exponents β (magnetization), γ (susceptibility) and δ (critical isotherm) were obtained. The description of the critical behavior of the paramagnetic susceptibility in the $\sigma\text{-FeCr}$ and $\sigma\text{-FeV}$ systems, was improved when the CHT (Campbell, Hukushima, Takayama) extended scaling was considered. In this scaling scheme, the reduced temperature is written as $\tau = (T - T_C)/T$.

The complex magnetic permeability was obtained from the impedance measurements as a function of the temperature, frequency and magnetic field. Near T_C , the real part of the permeability behaves as a power law of the conventional reduced temperature, either above and below T_C . The values of critical exponents obtained from these analyses reproduce those obtained from the magnetic measurements. From the magnetoimpedance experiments it was also possible to estimate the anisotropy field. This property clearly reveals the sequential occurrence of the para-ferromagnetic and ferromagnetic-spin glass transitions upon decreasing the temperature.

SUMÁRIO

1. INTRODUÇÃO	10
2. SISTEMAS MAGNÉTICOS REENTRANTES, FENOMENOLOGIA CRÍTICA E CORRENTES ALTERNADAS	13
2.1 Sistemas Magnéticos Desordenados e Frustrados.....	13
2.1.1 Apresentação e Caracterização dos Vidros de Spin	14
2.1.1.1 Características Experimentais	14
2.1.1.2 Conceito de Frustração	16
2.1.1.3 Teoria de Campo Médio para os Vidros de Spin.....	17
2.1.1.3.a Modelo de Edwards e Anderson	17
2.1.1.3.b Modelo de Sherrington e Kirkpatrick.....	18
2.1.1.3.c Linha de Almeida-Thouless	18
2.1.2 Apresentação e Caracterização dos Sistemas Magnéticos Reentrantes	19
2.1.2.1 Magnetização	20
2.1.2.2 Susceptibilidade AC	21
2.1.2.3 Efeito Mössbauer	22
2.1.2.4 Teoria de Campo Médio para Sistemas Magnéticos Reentrantes	24
2.1.2.4.a Modelo de Sherrington-Kirkpatrick	24
2.1.2.4.b Modelo de Gabay-Toulouse.....	25
2.1.2.4.c Problema da Fenomenologia Crítica na Temperatura de Curie de Sistemas Magnéticos Reentrantes.....	26
2.2 Fenômenos Críticos Magnéticos	26
2.2.1 <i>Motivação</i>	26
2.2.2 <i>Expoentes Críticos</i>	28
2.2.2.1 Previsões da Teoria de Campo Médio para os Expoentes Críticos Estáticos γ , β e δ	29
2.2.2.2 Expoentes Críticos em Sistemas Ordenados	30
2.2.2.3 Expoentes Críticos em Sistemas Desordenados	31
2.2.3 <i>Métodos de Determinação dos Expoentes Críticos</i>	32
2.2.3.1 Método de Kouvel-Fisher	32
2.2.3.2 Método de Arrot-Noakes	33
2.2.3.3 Isoterma Crítica.....	34
2.2.3.4 Método de Escala.....	35
2.2.4 <i>O Escalonamento Estendido de Campbell, Hukushima e Takayama (CHT)</i>	36
2.3 Correntes AC: Impedância e Permeabilidade.....	37

2.3.1	Motivação.....	37
2.3.2	Conceitos Básicos	38
2.3.2.1	A Impedância e a Permeabilidade Magnética	38
3.	METODOLOGIA	45
3.1	Processo de Produção das Ligas	45
3.1.1	Escolha das Amostras	47
3.1.1.1	Magnetização	47
3.1.1.2	Impedanciometria	48
3.2	Técnicas de Medidas	49
3.2.1	Magnetização.....	49
3.2.2	Impedanciometria.....	52
3.3	Experimentos Realizados.....	59
3.3.1	Magnetização.....	59
3.3.2	Impedanciometria.....	60
4.	FENOMENOLOGIA CRÍTICA NOS SISTEMAS σ -FeCr E σ -FeV	61
4.1	Introdução.....	61
4.2	O Campo Desmagnetizante	62
4.3	O Sistema σ -Fe _{1-x} Cr _x	63
4.3.1	Resultados de Magnetização	63
4.3.2	Análises.....	65
4.3.2.1	Análises com o Método de Kouvel-Fisher	65
4.3.2.1.a	Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional.....	66
4.3.2.1.b	Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT.....	69
4.3.2.1.c	Comparação entre os Escalonamentos	72
4.3.2.1.d	Magnetização no Escalonamento Convencional.....	73
4.3.2.2	Ciclos de Magnetização.....	75
4.3.2.3	Análises com o Método de Arrot-Noakes	78
4.3.2.4	Isoterma Crítica.....	80
4.3.2.5	Análises com o Método de Escala	82
4.4	O Sistema σ -Fe _{0,52} V _{0,48}	85
4.4.1	Medidas de Magnetização	85
4.4.2	Análises.....	86
4.4.2.1	Análises com o Método de Kouvel-Fisher	86
4.4.2.1.a	Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional.....	86
4.4.2.1.b	Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT	87
4.4.2.1.c	Comparação entre os Escalonamentos	88
4.4.2.1.d	Magnetização no Escalonamento Convencional.....	90
4.4.2.2	Ciclos de Magnetização.....	91
4.4.2.3	Análises com o Método de Arrot-Noakes	91
4.4.2.4	Isoterma Crítica.....	93
4.4.2.5	Análises com o Método de Escala	93
4.5	Diagrama de Fases H - T	94
4.6	Comparação entre os parâmetros críticos nos sistemas σ -FeCr e σ -FeV	97
5.	FENOMENOLOGIA CRÍTICA NO SISTEMA Au-Fe	99
5.1	Introdução.....	99

5.2 O Sistema <i>Au-Fe</i>	100
5.2.1 Difractometria de Raios-X.....	100
5.2.2 Resultados de Magnetização.....	101
5.2.2 Análises.....	106
5.2.2.1 Análises com o Método de Kouvel-Fisher.....	106
5.2.2.1.a Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional.....	106
5.2.2.1.b Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT.....	109
5.2.2.1.c Magnetização no Escalonamento Convencional.....	110
5.2.2.2 Ciclos de Magnetização.....	114
5.2.2.3 Análises com o Método de Arrot-Noakes.....	119
5.2.2.4 Isoterma Crítica.....	122
5.2.2.5 Análises com o Método de Escala.....	126
5.3 Diagrama de Fases H - T.....	129
5.4 Comparação entre os parâmetros críticos no sistema <i>Au-Fe</i>	133
6. IMPEDANCIOMETRIA.....	135
6.1 Introdução.....	135
6.2 A Permeabilidade Magnética.....	136
6.2.1 Determinação da Permeabilidade Magnética a partir da Impedância.....	136
6.2.2 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura nas Proximidades de uma Transição Crítica.....	137
6.3 O Sistema <i>Au-Fe</i>	138
6.3.1 Resultados de Impedanciometria em Temperatura Variável.....	138
6.3.2 Análises da Permeabilidade Magnética no Sistema <i>Au-Fe</i>	144
6.3.2.1 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura.....	144
6.3.2.1.a Análise K-F na Permeabilidade Magnética.....	148
6.3.2.2 Magnetoimpedância e Campo de Anisotropia.....	150
6.4 O Sistema σ <i>FeCr</i>	153
6.4.1 Resultados de Impedanciometria.....	153
6.4.2 Análises.....	155
6.4.2.1 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura.....	155
6.4.2.2 Magnetoimpedância e Campo de Anisotropia.....	157
6.5 Comparação Entre os Resultados de Magnetização e de Impedanciometria.....	158
CONCLUSÕES.....	160
APÊNDICES.....	164
Introdução.....	164
A. O Campo Desmagnetizante e o Fator de Desmagnetização.....	164
B. O Programa FEMM e o Cálculo da Contribuição Externa.....	168
B.1 O Programa FEMM.....	168
B.2 A Estimativa da Contribuição Externa nos Resultados de Impedância.....	171
C. A Obtenção da Permeabilidade Magnética Inicial a partir dos Resultados de Impedância em Função da Temperatura.....	173
REFERÊNCIAS.....	176

1. INTRODUÇÃO

O estudo da fenomenologia crítica em sistemas magnéticos desordenados tem despertado muito interesse em tempos presentes. Um dos aspectos fundamentais envolvidos neste estudo consiste em determinar se a desordem é uma variável relevante, ou não, para a descrição do comportamento crítico destes sistemas. Um exemplo particularmente interessante é o dos sistemas magnéticos reentrantes, onde a desordem é acompanhada de frustração. Assim, a determinação da classe de universalidade da transição da fase paramagnética para a fase ferromagnética nestes sistemas é um problema atual, em que a investigação experimental sistemática é ainda incipiente e incompleta. O interesse nesta fenomenologia é também estimulado pelo fato de que a transição reentrante é fortemente associada com o problema mais geral da transição reversa, que recentemente tem merecido intenso esforço de investigação teórica [1].

Os sistemas ditos reentrantes são aqueles em que o estado desordenado paramagnético, de altas temperaturas, e o estado fundamental tipo vidro de spin estão separados por um estado de ordenamento tipo ferro, ou antiferromagnético. Segundo a teoria de campo médio, a desestabilização do estado intermediário em baixas temperaturas deve-se ao congelamento aleatório das componentes transversais dos spins abaixo de uma temperatura crítica, T_{irr} , embora o ordenamento na componente longitudinal seja conservado.

Os vidros de spin mais estudados são aqueles formados por ligas binárias compostas por uma matriz de elemento nobre (Au, Pt, Cu, Ag) na qual são diluídos átomos magnéticos, como Fe ou Mn. A interação entre os íons magnéticos é caracterizada por desordem e frustração, os ingredientes básicos dos vidros de spin. Em alguns casos, como o sistema Au-Fe, o aumento da concentração do átomo magnético leva ao comportamento reentrante. No entanto, sistemas variados, metálicos ou isolantes, têm sido caracterizados como

reentrantes. Nos últimos anos, tem-se encontrado novos sistemas com comportamento reentrante, como é o caso das ligas $\sigma\text{-FeCr}$ e $\sigma\text{-FeV}$.

Tradicionalmente, a caracterização dos materiais tem sido feita por meio de medidas magnéticas, e as análises da transição crítica para-ferromagnética têm sido realizadas com base nos métodos de Kouvel-Fisher, Arrot-Noakes, e no método de escala. O mais usado, por dispensar qualquer tipo de parametrização inicial, é o método de Kouvel-Fisher, sendo os outros dois muito úteis para a confirmação dos valores obtidos para os expoentes críticos, ingredientes fundamentais na definição da classe de universalidade da transição. A suposição básica destas análises propõe que as propriedades magnéticas (susceptibilidade e magnetização) escalam nas vizinhanças de T_C com a temperatura reduzida $t = |T - T_C|/T_C$. Porém, em 2007, I. A. Campbell e colaboradores [2] propuseram um escalonamento não linear baseado na variável $\tau = (\beta - \beta_C)/\beta_C$ onde $\beta = 1/k_B T$ e $\beta_C = 1/k_B T_C$. Como veremos, este novo escalonamento é perfeitamente aplicável ao estudo da fenomenologia crítica de materiais magnéticos reentrantes estudados nesta Tese.

Outra técnica útil no estudo das transições de fase magnéticas são as medidas de impedância, que ganhou destaque na década de 1990 em razão dos fortes efeitos observados em ferromagnetos macios. Uma das vantagens desta técnica é que o campo desmagnetizante não influencia no resultado das análises, uma vez que os campos internos envolvidos são tipicamente da ordem de 10^{-2} Oe e são circunferenciais para amostras com geometria cilíndrica. Campos tão baixos permitem o estudo de efeitos magnéticos dinâmicos (componentes real e imaginária da permeabilidade magnética transversa inicial). A aplicação de campos externos paralelos à corrente de sonda permite o estudo da magnetoimpedância.

Esta técnica se baseia na aplicação de uma corrente AC ao longo de um material condutor e na medida da diferença de potencial complexa entre dois pontos fixados na sua superfície. A impedância ($Z = V/I = R - iX$) depende da geometria da amostra, da frequência da corrente de sonda, da resistividade e da permeabilidade magnética do material. A permeabilidade magnética por sua vez, varia significativamente com a temperatura, ao atingir a transição de fase magnética.

Nesta Tese estudamos o comportamento crítico nas vizinhanças da temperatura de Curie para os sistemas reentrantes $\sigma\text{-FeCr}$, $\sigma\text{-FeV}$ e Au-Fe por meio de três técnicas experimentais: magnetização, susceptibilidade DC e impedanciometria.

As medidas de magnetização e susceptibilidade DC foram realizadas observando-se variações na temperatura para campos magnéticos fixos e, em um segundo momento, variações de campo magnético em condições isotérmicas em torno da região de transição para-ferromagnética. As medidas de impedanciometria foram realizadas observando-se: (i) variações na temperatura para campos aplicados fixos e frequências fixas; (ii) medidas de magnetoimpedância em frequência e isothermas fixas.

No capítulo 2 são feitas, num primeiro momento, breves considerações sobre os sistemas vidros de spin e reentrantes. Após, apresenta-se os modelos teóricos e as técnicas empregadas no estudo da transição de fase para-ferromagnética, e ainda são feitas algumas considerações sobre os efeitos da aplicação de correntes AC em um material condutor. Discute-se também a teoria de Landau e a dependência da impedância com a permeabilidade magnética.

No capítulo 3 são apresentados os procedimentos adotados na confecção das amostras e dos experimentos realizados, a descrição das técnicas de medida (susceptibilidade e magnetização DC, e impedanciometria) e a descrição dos equipamentos correspondentes às técnicas utilizadas.

Os resultados experimentais, obtidos por meio da técnica de magnetização, bem como as análises e a investigação dos resultados obtidos para os sistemas $\sigma\text{-FeCr}$, $\sigma\text{-FeV}$ e $\underline{\text{Au-Fe}}$, são apresentados, respectivamente, nos capítulos 4 e 5.

No capítulo 6 são apresentados os resultados e as discussões pertinentes à técnica de impedanciometria nos sistemas $\underline{\text{Au-Fe}}$ e $\sigma\text{-FeCr}$.

As considerações finais, na forma das conclusões, que pudemos obter a partir deste estudo, são apresentadas no capítulo 7.

Nos apêndices são apresentadas as considerações acerca do fator de desmagnetização (apêndice A), os detalhes da utilização do programa FEMM, necessário para se extrair a contribuição externa nos resultados experimentais de impedanciometria (apêndice B) e os métodos de cálculo necessários para se obter a permeabilidade magnética a partir dos resultados experimentais de impedância (apêndice C).

2. SISTEMAS MAGNÉTICOS REENTRANTES, FENOMENOLOGIA CRÍTICA e CORRENTES ALTERNADAS

2.1 Sistemas Magnéticos Desordenados e Frustrados

Os sistemas magnéticos reentrantes são formados por soluções sólidas, metálicas ou isolantes, nas quais as interações entre os íons magnéticos apresentam certo grau de desordem e frustração. O chamado comportamento reentrante está associado ao fato de que, em altas temperaturas, o sistema apresenta uma fase paramagnética de alta entropia. Ao se diminuir a temperatura ocorre uma transição para uma fase ordenada, tipo ferro ou antiferromagnética. Porém, em baixas temperaturas, o sistema reentra para um estado tipo vidro de spin. Esta fenomenologia peculiar é, aparentemente, paradoxal. A priori, se poderia supor que o estado fundamental do tipo vidro de spin teria uma entropia maior que a da fase intermediária, tipo ferro ou antiferromagnética.

O estudo dos sistemas reentrantes remonta aos anos 1970. O trabalho publicado por Coles e col. [3], que investigaram algumas ligas do sistema $Au-Fe$, é um dos marcos pioneiros da época. As ligas de $Au-Fe$ se tornaram o exemplo mais característico dentre os sistemas reentrantes.

Uma grande variedade de técnicas micro e macroscópicas tem sido empregadas no estudo destes sistemas. Exemplos são: ressonância ferromagnética, espectroscopia Mössbauer, espalhamento de nêutrons polarizados, resistividade elétrica, calor específico, magnetorresistência, susceptibilidade AC, magnetização entre outras. Nesta Tese, além da

realização de medidas de magnetização, introduz-se, pela primeira vez, o uso da impedanciometria como técnica de investigação de sistemas reentrantes.

Este capítulo contempla uma breve revisão bibliográfica pertinente ao comportamento magnético dos sistemas reentrantes.

2.1.1 Apresentação e Caracterização dos Vidros de Spin

2.1.1.1 Características Experimentais

Os vidros de spin são assim chamados por possuírem momentos magnéticos congelados em direções aleatórias. Para que esse fenômeno ocorra é necessário que haja competição entre alinhamentos de tipo ferro e antiferromagnético, de modo a gerar a frustração. O comportamento dos vidros de spin é intrinsecamente diferente das formas de ordenamento magnético convencionais. Estes sistemas foram descobertos e caracterizados experimentalmente na década de 1970 [3, 4].

Estudos sistemáticos, envolvendo várias técnicas de análise apontaram a ocorrência de ordem magnética em ligas diluídas de metais nobres com pequenas concentrações de elementos magnéticos, como Fe ou Mn, que não se enquadram nas descrições dos estados ferro ou antiferromagnéticos convencionais. Por exemplo, uma cúspide é observada na curva de susceptibilidade em função da temperatura, cuja temperatura depende do campo magnético aplicado ou da frequência da medida. Por outro lado, resultados de difração de nêutrons e estudos de campo hiperfino revelaram que os spins no estado ordenado não se alinham paralelamente, nem se distribuem segundo qualquer arranjo com ordem de longa distância.

Na figura 2.1 são mostradas medidas realizadas de susceptibilidade AC na liga Cu-Mn. A cúspide em T_G é a assinatura dos sistemas vidro de spin. No detalhe da figura é mostrada a dependência de T_G com a frequência, onde nota-se que, à medida que a frequência é aumentada, a cúspide é menos marcante e a temperatura T_G aumenta [5].

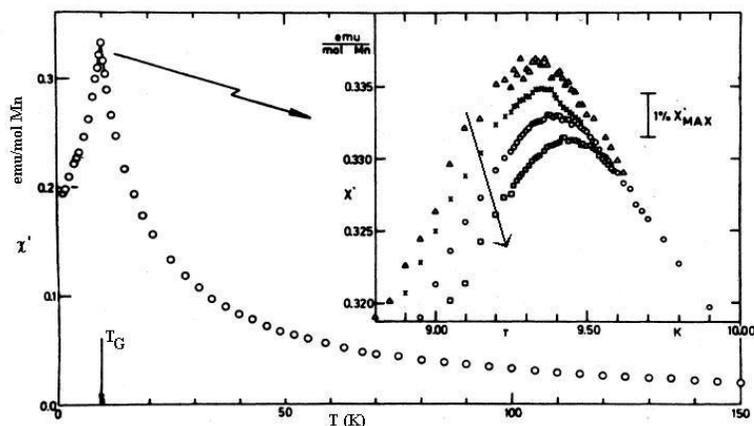


Figura 2.1: Parte real χ' em função da temperatura para a amostra de Cu-Mn com 0,94 at% de Mn. O detalhe revela a dependência com a frequência. As frequências estudadas foram 2,6 Hz, 104 Hz, 234 Hz e 1,33 kHz, conforme indica a seta [5].

Nas medidas de susceptibilidade DC, a característica marcante é a irreversibilidade entre as medidas ZFC e FC, mostrada na figura 2.2 [6]. No procedimento ZFC (*Zero Field Cooled*), a amostra é resfriada na ausência de campo magnético aplicado, até a temperatura mínima desejada. O campo é, então, ligado e a medida acontece durante o aumento da temperatura. No procedimento FC (*Field Cooled*), o campo magnético fixo é aplicado, em uma temperatura seguramente acima da transição crítica. Enquanto a amostra é resfriada, as medidas são realizadas.

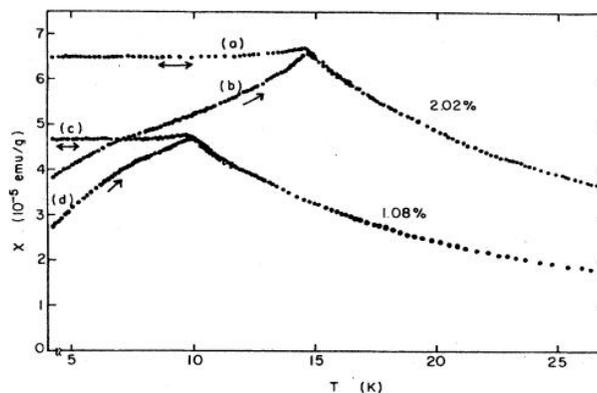


Figura 2.2: Susceptibilidade DC em função da temperatura para a amostra de Cu-Mn com 1,08 e 2,02 at% de Mn. As curvas (b) e (d) mostram o procedimento ZFC enquanto que (a) e (c) mostram o procedimento FC [6].

Os resultados experimentais realizados segundo o procedimento ZFC são irreversíveis, e correspondem a um estado metaestável da amostra. As medidas realizadas segundo a prescrição FC são aproximadamente reversíveis e representam, aproximadamente, o comportamento de equilíbrio da susceptibilidade magnética na fase vidro de spin. A irreversibilidade pode ser explicada em termos do complexo espaço de fases gerado pelas interações magnéticas frustradas entre os spins. O estado fundamental resultante é caracterizado por muitas configurações de equilíbrio não equivalentes energeticamente degeneradas. Assim, em lugar de evoluir em torno de um mínimo de energia livre global, o sistema, sob ação da temperatura e de campos aplicados, evolui de um mínimo local para outro, dando origem à metaestabilidade e irreversibilidades observadas.

2.1.1.2 Conceito de Frustração

Nos vidros de spin, a magnetização total se anula em baixas temperaturas, de forma que os momentos magnéticos estáticos apontam em direções aleatórias [6].

A frustração pode ser entendida com base na figura 2.3. Na parte (a) da figura, é mostrado o caso não frustrado, no qual todas as interações de troca fornecem o alinhamento ferromagnético dos spins. No caso em que as interações de troca levam a um alinhamento antiferromagnético entre spins vizinhos resulta a figura 2.3b. Supondo que os spins 1 e 2 se orientam antiferromagneticamente, o spin 3 não poderá satisfazer simultaneamente as interações J_{13} e J_{23} . Assim, a competição de interações na posição do spin 3 leva à frustração, de modo que todos os pares de interações não podem mais ser satisfeitos simultaneamente.

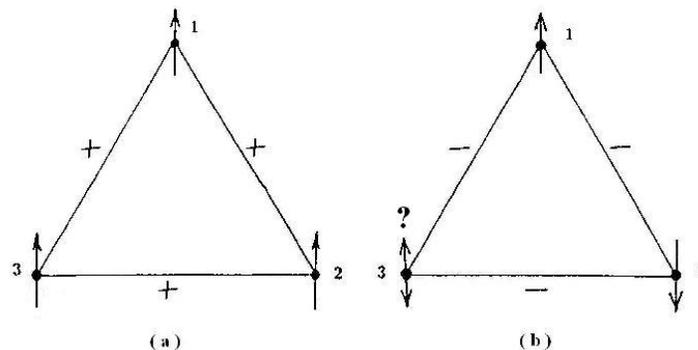


Figura 2.3: (a) Rede triangular sem frustração: as interações de troca ferromagnéticas J_{ij} são todas satisfeitas. (b) Rede com frustração: somente a interação J_{12} é satisfeita. As interações J_{13} e J_{23} não podem ser satisfeitas simultaneamente. Diz-se que a rede é frustrada [7].

Entretanto, havendo liberdade de giro no plano XY, o estado fundamental para o sistema triangular frustrado será duplamente degenerado, como mostram as figuras 2.4a e 2.4b, e a energia global será maior que o estado não frustrado. Este fenômeno é comumente chamado de *canting*, onde as orientações dos spins individuais desviam do alinhamento colinear, assumindo posições aleatórias no plano.

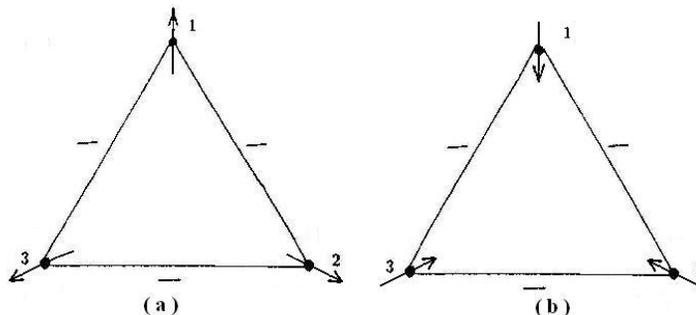


Figura 2.4: Rede triangular com frustração em configurações de equilíbrio, ilustrando o fenômeno de *canting*.

2.1.1.3 Teoria de Campo Médio para os Vidros de Spin

A teoria de campo médio para os sistemas magnéticos está baseada na hipótese de que um dado momento magnético microscópico interage com o campo médio gerado por todos os demais momentos do sistema [8 - 10].

Segundo esta hipótese, o campo molecular, ou campo médio, está diretamente relacionado com o efeito cooperativo dos momentos magnéticos do sistema, ou seja

$$\vec{H}_M = \lambda \vec{M} \quad ,$$

onde λ é um parâmetro independente da temperatura que mede a intensidade do campo médio.

2.1.1.3.a Modelo de Edwards e Anderson

Em 1975 Edwards e Anderson [11] propuseram um modelo simples, inaugurando a teoria dos vidros de spin. O modelo EA é baseado no hamiltoniano:

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} S_i \cdot S_j \quad ,$$

onde os spins de Ising S_i estão dispostos numa rede periódica e as interações de troca J_{ij} são tomadas como variáveis independentes e aleatórias. Supõe-se que as interações ocorrem segundo uma distribuição gaussiana simétrica dada por:

$$P(J_{ij}) = \frac{1}{(2\pi\Delta J_{ij})^{1/2}} \exp\left[-\frac{(J_{ij} - \bar{J}_{ij})^2}{2(\Delta J_{ij})^2}\right] ,$$

onde ΔJ_{ij} é a variância.

2.1.1.3.b Modelo de Sherrington e Kirkpatrick

D. Sherrington e S. Kirkpatrick [12] apresentaram um modelo semelhante ao EA (modelo SK), baseado no hamiltoniano:

$$\mathcal{H} = -\frac{1}{2} \sum_{ij} J_{ij} S_i \cdot S_j - \sum_i H_i S_i , \quad (2.1)$$

onde os J_{ij} se distribuem de acordo com

$$P(J_{ij}) = \frac{1}{J(2\pi/N)^{1/2}} \exp\left[-\frac{N(J_{ij})^2}{2J^2}\right] .$$

2.1.1.3.c Linha de Almeida-Thouless

J. R. L. de Almeida e D. J. Thouless [13] mostraram que existe uma instabilidade na região de baixas temperaturas da fase ferromagnética, de forma que o campo magnético, H , varia de acordo com uma lei de potência do tipo $(1 - T_G(H)/T_G(0))^{3/2}$, conforme figura 2.5.

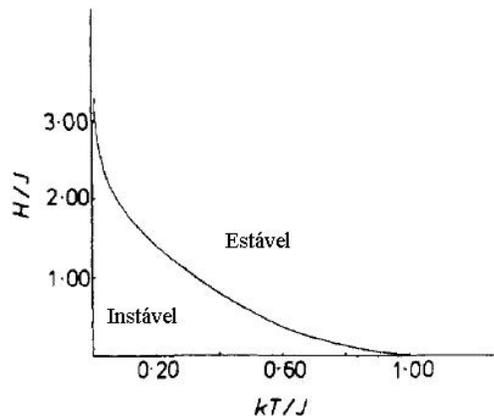


Figura 2.5: Linha de Almeida-Thouless [13].

2.1.2 Apresentação e Caracterização dos Sistemas Magnéticos Reentrantes

Em 1978, B. R. Coles e col. [3] estudaram as propriedades magnéticas da liga Au-Fe, em concentrações desde 0,5 até 28 at% de Fe. Neste trabalho, os autores mostraram que existe um limite de percolação na concentração de 15,5 at% de Fe. Acima desta concentração, coexistem duas fases distintas: uma em temperaturas intermediárias, com ordenamento tipo ferromagnético e interações de longo alcance entre os momentos magnéticos; a outra, em baixas temperaturas, também com ordenamento magnético, porém, com interações de curto alcance, produzindo magnetização local em pequenas ilhas distribuídas aleatoriamente pela matriz, os chamados *cluster glass* (cg na figura 2.6). Entretanto, trabalhos posteriores mostraram que o estado fundamental é do tipo vidro de spin, com spins ordenados individualmente em direções aleatórias.

Na figura 2.6 tem-se o diagrama de fases do sistema Au-Fe, apresentado por B. V. B. Sarkissian, em 1981 [14]. Observam-se as regiões paramagnética (p), ferromagnética (f), vidro de spin (sg), reentrante (f+cg) e a região chamada de quase crítica (f*), mencionada por alguns autores como região de percolação. Os estados sg e f+cg, apesar de denotados como diferentes, possuem propriedades magnéticas similares.

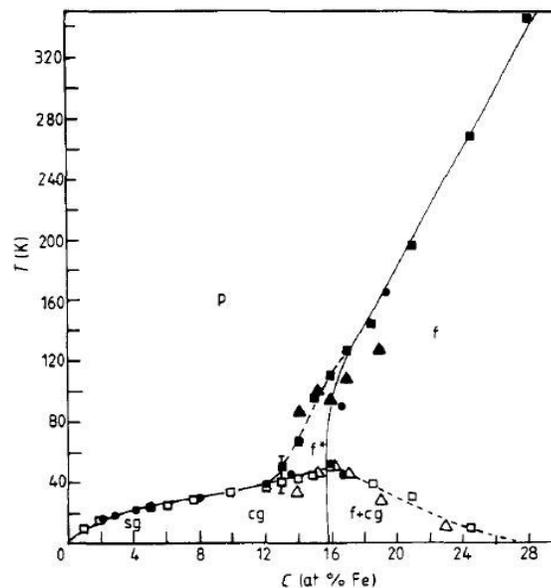


Figura 2.6: Diagrama de fases magnéticas para o sistema Au-Fe, determinado por meio de vários métodos experimentais. Fases paramagnética, p, ferromagnética, f, vidro de spin, sg, reentrante, f+cg, e região quase crítica, f* [14].

2.1.2.1 Magnetização

As medidas de magnetização em sistemas magnéticos reentrantes são realizadas segundo dois tipos de protocolo: 1) medidas de magnetização em função da temperatura, que possibilitam acompanhar a evolução das transições críticas com a temperatura e; 2) medidas de magnetização em função do campo aplicado, que permitem avaliar os efeitos de memória magnética.

1) Nas medidas $M \times T$, utiliza-se os procedimentos padrão ZFC e FC.

A figura 2.7 mostra uma medida de magnetização ZFC e FC na liga $Ni-Mn$, evidenciando a ocorrência de irreversibilidades magnéticas em temperaturas inferiores a T_g . Entre T_g e T_C a magnetização é reversível e limitada pelo campo desmagnetizante.

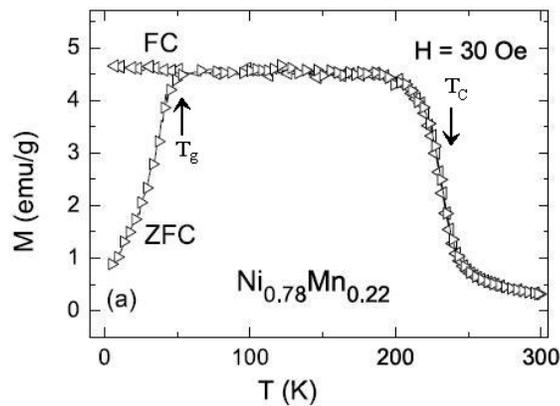


Figura 2.7: Magnetização em função da temperatura para o sistema $Ni_{0,78}Mn_{0,22}$, medido em $H_a = 30$ Oe, de acordo com os procedimentos ZFC e FC [15].

2) Nas medidas de magnetização em função do campo, o procedimento usual é a realização de ciclos. Em temperatura fixa, o campo magnético é variado desde zero até um valor máximo desejado, $+H_{max}$, quando o campo é invertido e direcionado ao máximo oposto, em $-H_{max}$. Para completar o ciclo, o campo magnético é direcionado novamente ao máximo positivo, $+H_{max}$.

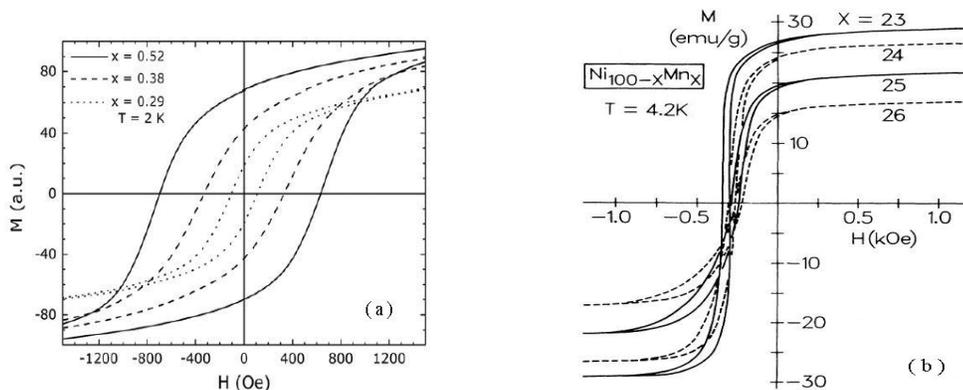


Figura 2.8: (a) Ciclos de histerese no sistema Gd_xCr_{1-x} em 2 K, mostrando que a magnetização não satura [16]. (b) Ciclos de histerese no sistema Ni-Mn, na temperatura de 4,2 K mostrando anisotropia unidirecional, quando a amostra é resfriada na presença de um campo magnético aplicado [17].

Estes ciclos de histerese, quando realizados em sistemas reentrantes, apresentam a particularidade de não apresentar saturação em campos elevados. Outra característica é a baixa intensidade do campo coercivo (anisotropia uniaxial). Por fim, observa-se também o deslocamento do ciclo para campos negativos (anisotropia unidirecional), que ocorre quando o resfriamento da amostra é feito na presença de um campo aplicado (procedimento FC) [6]. As figuras 2.8a e 2.8b ilustram estes efeitos.

2.1.2.2 Susceptibilidade AC

Em medidas de susceptibilidade AC em ligas amorfas de Fe-Zr [18], nota-se que tanto a temperatura de Curie (T_C) como a temperatura de congelamento (T_{RSG}), são evidenciadas por mudanças acentuadas no comportamento da parte imaginária da susceptibilidade (χ''). Um exemplo desta constatação é mostrado na figura 2.9a. Este efeito já havia sido observado na liga Au-15 at% Fe, estudada por R. N. Kleiman e col. [19]. Neste trabalho, os autores aplicaram campos moderados, entre 75 Oe e 500 Oe, e uma frequência de 2,4 kHz. As conclusões a que chegaram foram de que, em temperaturas intermediárias, ocorre um ordenamento ferromagnético em $T = T_C$, marcado por um aumento acentuado na susceptibilidade AC, $\chi(T)$. Em baixas temperaturas, um novo pico foi observado, ao qual atribuíram ao congelamento total dos spins numa ordem tipo vidro de spin (ver figura 2.9b).

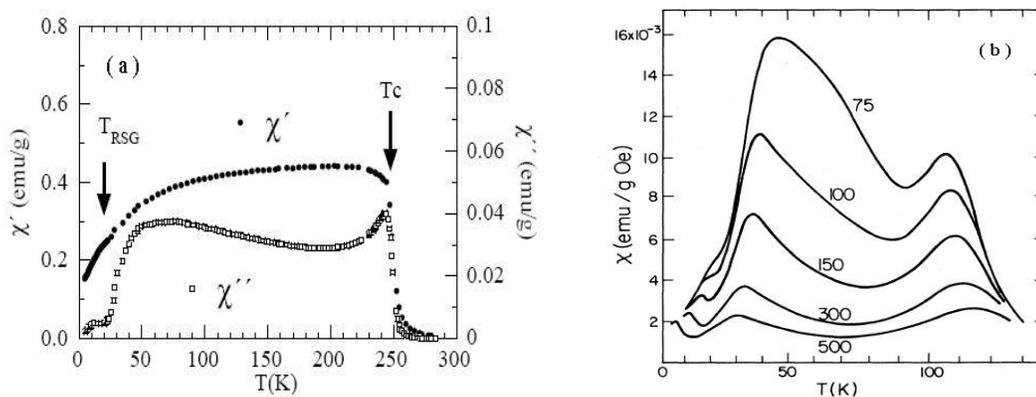


Figura 2.9: (a) Susceptibilidade AC na amostra $Fe_{90}Zr_7B_3$. A frequência utilizada é de 10 kHz e o campo magnético aplicado de 1 Oe [18]. (b) Susceptibilidade AC na amostra Au - 15 at%Fe, medida em vários campos magnéticos, em função da temperatura. Os campos magnéticos aplicados estão marcados em cada curva [19].

2.1.2.3 Efeito Mössbauer

A técnica de efeito Mössbauer é outra técnica utilizada no estudo das transições de fases magnéticas nos sistemas reentrantes.

A figura 2.10a ilustra o efeito do campo hiperfino médio, H_{hf} , no sistema $Fe_xMn_{0,7-x}Al_{0,3}$, observado por L. E. Zamora e col. [20]. O campo hiperfino médio apresenta valores positivos desde $T = T_C \sim 250$ K, até que, em 50 K uma nova mudança de regime é observada, indicando a transição ao estado reentrante.

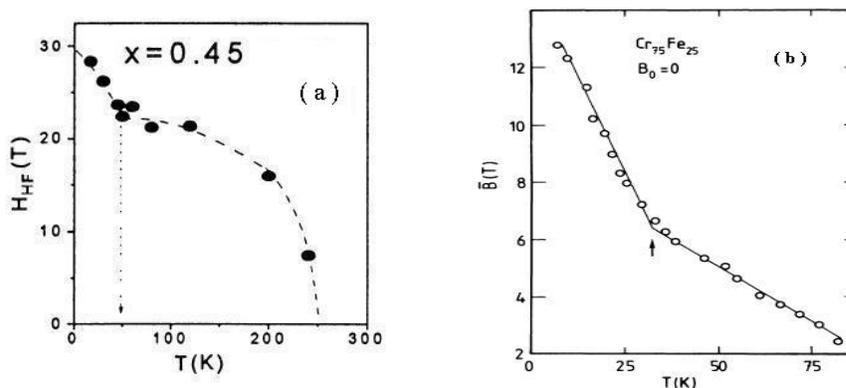


Figura 2.10: Campo hiperfino médio em função da temperatura. (a) Para a liga $Fe_xMn_{0,7-x}Al_{0,3}$ [20]. (b) Para a liga na fase α $Cr_{75}Fe_{25}$ [21].

A figura 2.10b mostra o campo hiperfino médio para a liga $Cr_{75}Fe_{25}$, estudado por S. M. Dubiel e col. [21], indicando que o aumento do campo hiperfino em baixas temperaturas é um efeito marcante dos sistemas reentrantes.

Em 1983, I. A. Campbell e col. [22] publicaram resultados de espectroscopia Mössbauer para a liga Au – 19 at% Fe. O campo hiperfino médio, H_{hf} , em função da temperatura é mostrado na figura 2.11. O aumento do campo é observado desde zero, em $T = T_C \sim 150$ K, até um valor finito aproximadamente constante. Em baixas temperaturas ocorre um novo aumento de H_{hf} , mostrando o efeito da desordem não trivial provocada pelo estado tipo vidro de spin. O efeito esperado para um ferromagneto clássico é assinalado pela linha pontilhada.

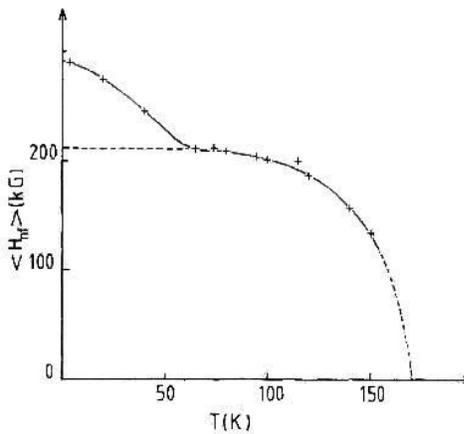


Figura 2.11: Campo hiperfino médio em função de T na liga Au – 19 at% Fe [22].

O aumento do campo hiperfino médio em baixas temperaturas, a partir da transição reentrante, é associado ao efeito de *canting* dos momentos magnéticos. No estado ferromagnético, o campo hiperfino médio identifica as componentes longitudinais dos momentos magnéticos. A partir da temperatura de transição reentrante, o congelamento das componentes transversais dos momentos indica um aumento local da magnetização, porém o estado global apresenta desordem. Desta forma, o ordenamento longitudinal tipo ferromagnético coexiste com a desordem tipo vidro de spin das componentes transversais dos momentos magnéticos. Assim, enquanto o campo hiperfino médio identifica os momentos localizados, a susceptibilidade DC identifica o estado global desordenado, mostrando a redução na intensidade da magnetização ZFC em função da temperatura.

2.1.2.4 Teoria de Campo Médio para Sistemas Magnéticos Reentrantes

2.1.2.4.a Modelo de Sherrington-Kirkpatrick

Considerando-se os sistemas reentrantes, o modelo SK [12] apresenta uma adição na exponencial da distribuição de probabilidades, de modo que

$$P(J_{ij}) = \frac{1}{J(2\pi)^{1/2}} \exp \left[-\frac{(J_{ij} - J_0)^2}{2J^2} \right] ,$$

onde $J_0 > 0$, refere-se aos sistemas magnéticos reentrantes cujo estado ordenado é ferromagnético. Neste modelo, SK impõem que os spins S_i são do tipo Ising.

O modelo SK leva ao diagrama de fases da figura 2.12. Neste diagrama observa-se que, se $\tilde{J} > \tilde{J}_0$ onde $\tilde{J} = J_{ij}/N$ e $\tilde{J}_0 = J_0/N$, ao reduzir a temperatura, a transição de fase é do tipo canônica, paramagnética-vidro de spin. Entretanto, se $\tilde{J} < \tilde{J}_0$, tem-se a possibilidade de um estado intermediário com ordenamento magnético tipo ferro, ou antiferromagnético entre o estado paramagnético e a desordem tipo vidro de spin em baixas temperaturas. A linha de separação entre a fase estável (ferromagnética) e a região instável (reentrante) é uma linha do tipo de Almeida-Thouless.

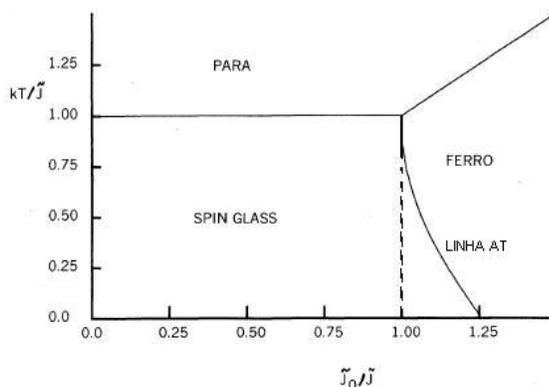


Figura 2.12: Diagrama de fases típico de um sistema magnético segundo o modelo SK com a linha AT[12].

2.1.2.4.b Modelo de Gabay-Toulouse

M. Gabay e G. Toulouse propuseram uma teoria de campo médio para vidros de spin supondo spins vetores. Os autores propuseram ainda, que a linha de transição reentrante, para baixos campos, deve ter curvatura inversa, de acordo com a figura 2.13 [23]. Nesta situação, a linha AT representa apenas um “*crossover*”, indicada pela linha de separação entre as fases M_1 e M_2 , na figura 2.13.

A linha GT permite uma interpretação mais clara da natureza da transição reentrante. De acordo com essa teoria, ocorre um desacoplamento entre os graus de liberdade transversais e longitudinais dos momentos magnéticos. Assim, nos sistemas magnéticos reentrantes, o sistema evolui de uma fase paramagnética, de grande agitação térmica, onde os momentos magnéticos são dinâmicos e dispostos em condições aleatórias, para uma fase tipo ferro, ou antiferromagnética, onde os spins são alinhados parcialmente numa direção preferencial, imposta por um campo magnético aplicado externamente à amostra. Somente em baixas temperaturas (linha (a) na figura 2.13ii), ocorre o congelamento dos graus de liberdade transversais dos spins em ordem aleatória, formando o estado reentrante, explicado pelo efeito de *canting*.

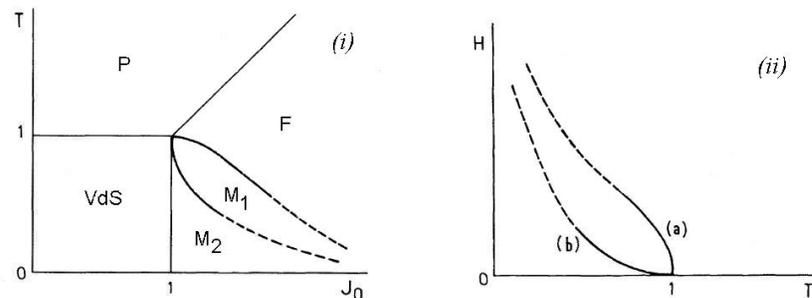


Figura 2.13: Diagrama de fases magnéticas identificando a linha de Gabay-Toulouse (linha GT) para a transição reentrante de acordo com o modelo SK. (i) M_1 e M_2 são regiões instáveis do tipo reentrante, separadas por uma linha do tipo AT no espaço T em função de J_0 . (ii) Diagrama de fases no espaço $H \times T$. A linha (a) mostra a linha GT enquanto que a linha (b) indica a linha AT [23].

2.1.2.4.c Problema da Fenomenologia Crítica na Temperatura de Curie de Sistemas Magnéticos Reentrantes

As transições de fases que possuem similaridades no comportamento crítico pertencem a uma classe de universalidade [10]. Estudos realizados por C. M. Haettinger [24] sugerem que, no caso dos sistemas reentrantes, deve existir uma classe de universalidade fraca que caracteriza os parâmetros críticos da transição na temperatura de Curie. Neste trabalho é discutida a relevância dos efeitos da desordem não trivial sobre a transição para-ferromagnética, de tal forma que os expoentes críticos possuem valores intermediários entre os observados em ferromagnetos ordenados tipo Heisenberg [25] e os vidros de spin canônicos [6], levantando a discussão sobre a possibilidade da existência de uma fenomenologia crítica não convencional para explicar o fenômeno da reentrância. Assim, a desordem não trivial pode ser encarada como um parâmetro termodinâmico relevante na transição de fase paramagnética dos sistemas reentrantes.

2.2 Fenômenos Críticos Magnéticos

2.2.1 Motivação

Os fenômenos críticos são observados nas proximidades das transições de fase de segunda ordem. Tais transições são descritas por meio de um parâmetro de ordem, que tende a zero segundo uma lei de potência na temperatura reduzida ($T - T_C$), quando a temperatura aumenta em direção à temperatura crítica, T_C , onde ocorre a transição de fase. No caso de uma transição magnética, o parâmetro de ordem é a magnetização.

As transições de fase ocorrem em uma ampla variedade de sistemas. Porém, os parâmetros que descrevem a transição, chamados parâmetros críticos, classificam-se em classes de universalidade [8, 10]. Assim, transições em sistemas distintos, mostram características universais.

A transição de fase é identificada quando ocorre uma singularidade na energia livre de Gibbs, ou em alguma de suas derivadas [26]. A transição de fase é chamada de primeira ordem quando a singularidade ocorre na energia livre, e é chamada de segunda ordem quando

a singularidade ocorre na derivada primeira da energia livre. Nas transições de segunda ordem ocorre uma mudança contínua de uma fase desordenada para uma fase ordenada como é o caso da transição de um estado paramagnético para um estado ferromagnético.

A figura 2.14 mostra um diagrama da magnetização espontânea de um ferromagneto em função da temperatura. Nesta ilustração observa-se que a magnetização se anula continuamente na temperatura crítica, mostrando que a transição em $T = T_C$, é de segunda ordem.

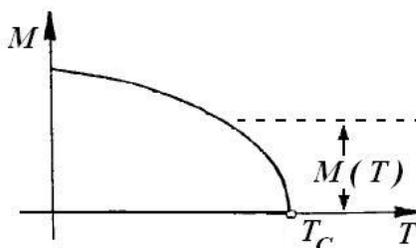


Figura 2.14: Diagrama da magnetização espontânea em função da temperatura para um material ferromagnético [10].

A susceptibilidade paramagnética e o calor específico divergem na temperatura crítica, segundo um comportamento característico observado nas transições de fase de segunda ordem.

Quando a transição de segunda ordem ocorre em razão da variação da temperatura, ela é regulada pelo comprimento de correlação, $\xi(T)$, que diverge na temperatura crítica segundo uma lei de potência e leva ao estabelecimento de uma ordem de longo alcance e baixa entropia, em $T < T_C$. Com isso, as propriedades termodinâmicas relevantes também apresentam singularidades nas vizinhanças da temperatura crítica, dando origem aos fenômenos críticos. As equações abaixo definem algumas das propriedades físicas que possuem singularidades em $T = T_C$:

$$M = \left(\frac{dG}{dH} \right)_T \quad (a) ; \quad \chi = \left(\frac{d^2G}{dH^2} \right)_T \quad (b) ; \quad C = \left(\frac{d^2G}{dT^2} \right)_H \quad (c) , \quad (2.5)$$

onde M é a magnetização, χ é a susceptibilidade paramagnética, C é o calor específico, G é a energia livre de Gibbs e H é o campo magnético aplicado.

2.2.2 Expoentes Críticos

O estudo das transições de fase críticas implica na determinação dos expoentes críticos cujos valores definem a classe de universalidade da transição estudada [8, 10, 27].

Escrevendo-se a temperatura reduzida, t , como

$$t = \frac{T - T_C}{T_C} ,$$

onde T_C é a temperatura de Curie. A dependência das quantidades definidas nas equações 2.5a, 2.5b e 2.5c pode ser descrita da seguinte forma,

$$\chi \propto t^{-\gamma} , \quad (2.6)$$

onde γ é o expoente crítico estático da susceptibilidade, que é relevante acima da temperatura crítica, ou seja, em $T > T_C$,

$$M \propto (-t)^\beta , \quad (2.7)$$

onde β é o expoente crítico estático da magnetização, relevante abaixo da transição crítica, ou seja, em $T < T_C$,

$$C \propto |t|^{-\alpha} , \quad (2.8)$$

onde α é o expoente crítico estático do calor específico e pode ser avaliado tanto em $T < T_C$ como em $T > T_C$.

O comprimento de correlação também diverge em $T = T_C$, nas situações em que a temperatura crítica é aproximada por cima ou por baixo,

$$\xi \propto |t|^{-\nu} , \quad (2.9)$$

onde ν é o expoente crítico estático relevante.

Em propriedades dinâmicas, que dependem do tempo de relaxação, deve-se considerar que este também diverge em $T = T_C$ segundo a expressão

$$\tau \propto |t|^{-\nu z} , \quad (2.10)$$

onde z é o expoente crítico dinâmico.

A magnetização pode ser escrita, ainda, em termos do campo magnético aplicado, de forma que, na temperatura crítica,

$$M \propto H^{1/\delta} \quad (T = T_C) \quad , \quad (2.11)$$

onde δ é outro expoente crítico estático.

Esses expoentes estão interrelacionados por leis de escala [10] que são:

$$\beta\delta \leq \beta + \gamma \quad (\text{desigualdade de Widom}) \quad (2.12a)$$

$$\alpha + 2\beta + \gamma \geq 2 \quad (\text{desigualdade de Rushbrooke}) \quad (2.12b)$$

$$\alpha + \beta(\delta + 1) \geq 2 \quad (\text{desigualdade de Griffiths}) \quad (2.12c)$$

$$\alpha = 2 - \nu d \quad (\text{lei de hiperescala de Josephson}) \quad (2.12d)$$

Onde d , na equação 2.12d, refere-se à dimensionalidade da transição de fases estudada.

Este trabalho não contempla os estudos de calor específico, comprimento de correlação, ou tempo de relaxação. Portanto, não se determina experimentalmente os valores de α , ν ou z . Porém, é possível se estimar α por meio da relação de Rushbrooke ou de Griffiths. No caso de ν , seu valor pode ser estimado pela lei de hiperescala. Assim sendo, a relação de escala de Widom (equação 2.12a) é a única que pode ser testada a partir dos resultados experimentais obtidos nesta Tese.

2.2.2.1 Previsões da Teoria de Campo Médio para os Expoentes Críticos Estáticos γ , β e δ

De acordo com a teoria de campo médio, e considerando a validade da lei de Curie na fase magneticamente desordenada ($T > T_C$), a magnetização pode ser escrita sob a forma

$$\vec{M} = \frac{C}{T} (\vec{H} + \lambda \vec{M}) \quad .$$

Isolando a magnetização, obtém-se a expressão da susceptibilidade de Curie-Weiss,

$$\chi = \frac{M}{H} = \frac{C}{T - T_C} \quad , \quad (2.13)$$

onde χ é a susceptibilidade paramagnética, $T_C = C\lambda$ é a temperatura de Curie e C é a constante de Curie.

A equação 2.13 indica que o expoente crítico estático associado à susceptibilidade paramagnética, na teoria de campo médio, vale $\gamma = 1$.

Acima de T_C , os momentos magnéticos são orientados aleatoriamente e, embora exista magnetização local, as flutuações dos spins são insuficientes para estabelecer algum tipo de ordenamento de longo alcance. Abaixo de T_C , o sistema apresenta ordenamento magnético, que se traduz em uma magnetização diferente de zero. A magnetização, na fase ordenada, é dada por

$$M = N_g \mu_B J B_J \left(\frac{\mu H_{ef}}{k_B T} \right) ,$$

onde μ é a intensidade do momento magnético microscópico, B_J é a função de Brillouin, N_g é o número de momentos magnéticos por unidade de volume, k_B é a constante de Boltzmann e $H_{ef} = H + \lambda M$ é o campo médio efetivo no interior do material.

Nas proximidades de T_C , a magnetização tende a zero segundo a expressão:

$$M \propto (T_C - T)^{1/2} .$$

Portanto, a teoria de campo médio supõe que $\beta = 0,5$.

Analisando-se a magnetização, no plano $M \times H$ e na isoterma crítica $T = T_C$, é possível mostrar que o valor para o expoente crítico estático δ , pela teoria de campo médio, vale $\delta = 3$.

Entretanto, a teoria de campo médio não é válida nas proximidades imediatas da temperatura crítica, uma vez que os efeitos de flutuações correlacionadas não são considerados. Assim, nas proximidades da transição, flutuações genuinamente críticas, de grande amplitude, devem ser tratadas com outros métodos, como a teoria de escala, ou o grupo de renormalização.

2.2.2.2 Expoentes Críticos em Sistemas Ordenados

Os expoentes críticos não dependem do sistema estudado, mas sim de quantidades básicas como a dimensionalidade desse sistema ou a simetria do parâmetro de ordem relacionado com a transição de fase verificada. No modelo de Ising 2-D [8], por exemplo, os expoentes críticos são definidos como $\beta = 0,125$, $\gamma = 1,75$ e $\delta = 15,04$. Entretanto, neste modelo, o parâmetro de ordem é unidimensional, pois os momentos magnéticos têm somente orientações paralela ou antiparalela em determinada direção. Outros valores para os expoentes críticos, descritos de acordo com os respectivos modelos, são listados na tabela 2.1.

Tabela 2.1: Expoentes críticos calculados conforme modelos baseados em expansões em série de potência.

Classe de universalidade							
Modelo	Dimensão espacial	Dimensão do parâmetro de ordem	α	β	γ	δ	Ref
Ising	3	1	0,11	0,32	1,24	5,0	25
XY	3	2	-0,01	0,35	1,32	4,77	25
Heisenberg	3	3	-0,12	0,36	1,39	4,8	25
Esférico	3	∞	-1	0,5	2	5	8

2.2.2.3 Expoentes Críticos em Sistemas Desordenados

Intensos esforços teóricos e experimentais têm sido dispensados no intuito de se verificar se, e quanto, a desordem pode interferir na transição de fase para-ferromagnética. O efeito da desordem em baixas temperaturas provoca modificações nas interações de longo alcance. Assim, deduz-se que modificações significativas podem ocorrer nos expoentes críticos que caracterizam os sistemas magnéticos desordenados.

A desordem pode estar relacionada com a mobilidade dos átomos na rede cristalina do material estudado e, em geral, é decorrente de dois fatores. A desordem clássica é obtida por métodos de têmpera dos materiais (*quenching*), que fixa os átomos magnéticos em posições específicas, mas que não necessariamente correspondam ao equilíbrio térmico. A desordem dinâmica é obtida por meio de recozimento do material (*annealing*), que garante que a configuração atômica reflete o equilíbrio termodinâmico na distribuição dos átomos.

Estudos teóricos e experimentais investigaram amplamente a desordem imposta de forma dinâmica em sistemas magnéticos [28 - 30]. Foi identificado que a desordem depende do expoente crítico do calor específico do sistema puro correspondente.

Em sistemas com desordem do tipo *annealing* também se verifica a dependência com a desordem do expoente crítico α , do calor específico do sistema ordenado correspondente. Entretanto, controvérsias existem quanto à validade do critério de Harris [31], que estabelece que, se $\alpha < 0$, a desordem não altera o valor dos expoentes críticos estáticos com relação aos valores observados no sistema ordenado correspondente. Porém, se $\alpha > 0$, a classe de universalidade da transição pode ser modificada.

2.2.3 Métodos de Determinação dos Expoentes Críticos

Conforme relatado na seção 2.2.2, os expoentes críticos permitem identificar a classe de universalidade de um dado sistema. Existem vários métodos para a identificação dos parâmetros críticos, dentre os quais, os largamente utilizados são: (i) o método de Kouvel-Fisher (método KF), utilizado na determinação direta dos expoentes β e γ ; (ii) o método de Arrot-Noakes (método AN), utilizado para determinar os mesmos expoentes quando a relação de Widom (equação 2.12a) é suposta como uma igualdade; (iii) a técnica da isoterma crítica, usada na determinação do expoente crítico δ e (iv) o método de escala, útil na confirmação dos valores para os expoentes β e δ e para a temperatura de Curie, obtidos com outros métodos.

2.2.3.1 Método de Kouvel-Fisher

James S. Kouvel e Michael E. Fisher [32] propuseram, em 1964, uma técnica que tornou possível a identificação dos expoentes críticos estáticos γ e β , com base nos estudos de susceptibilidade (χ) e magnetização (M), descritas segundo as relações fundamentais das equações 2.2 e 2.3. O método supõe a determinação prévia do inverso da susceptibilidade inicial, $\chi_0(T)$, e da magnetização espontânea, $M_E(T)$, (equações 2.6a e 2.7a), ou seja

$$\chi_0^{-1}(T) = \lim_{H \rightarrow 0} \frac{H}{M(T)} = A(t)^\gamma \quad (2.6a)$$

$$M_E(T) = \lim_{H \rightarrow 0} M(T, H) = B(-t)^\beta \quad . \quad (2.7a)$$

A técnica propõe a divisão da função em questão por sua derivada. Por exemplo, considerando A como uma constante na equação 2.6, obtém-se

$$\frac{d\chi^{-1}}{dT} = \gamma A(T - T_C)^{\gamma-1} = \chi^{-1} \gamma (T - T_C)^{-1} \quad .$$

O método K-F supõe, então, a determinação experimental da função $Y(T)$, onde

$$Y(T) = \frac{\chi^{-1}}{d\chi^{-1}/dT} = \frac{1}{\gamma} (T - T_C) \quad . \quad (2.14)$$

Esta quantidade é também denominada de susceptibilidade K-F. De modo similar, obtém-se a magnetização K-F, ou função $X(T)$, dada por

$$X(T) = -\frac{M}{dM/dT} = \frac{1}{\beta}(T_C - T) \quad . \quad (2.15)$$

As equações 2.14 e 2.15 representam retas que cortam o eixo de temperaturas em $T = T_C$. A inclinação de uma dada reta permite a determinação do expoente crítico associado à função em questão.

A figura 2.15 ilustra a aplicação do método para a liga binária reentrante $Au_{0,81}Fe_{0,19}$ [15]. Verifica-se a dependência linear com a temperatura da susceptibilidade K-F representada no painel (a), e da magnetização K-F em relação à temperatura no painel (b). Ao se realizar o ajuste dos dados experimentais às retas em $T > T_C$ e $T < T_C$, é possível determinar tanto os expoentes críticos, como a temperatura crítica, que deve ser comum nas duas aplicações.

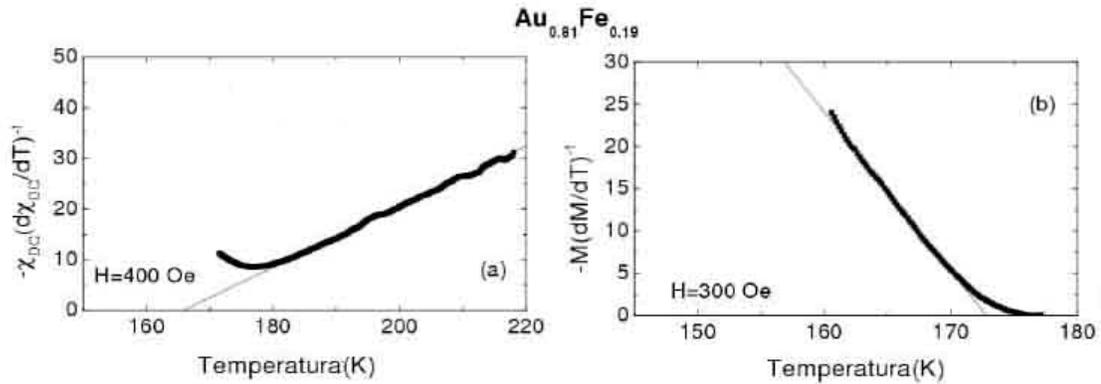


Figura 2.15: Determinação dos parâmetros críticos pelo Método K-F na liga $Au_{0,81}Fe_{0,19}$. (a) expoente γ ; (b) expoente β [15].

2.2.3.2 Método de Arrot-Noakes

Este método foi proposto por Anthony Arrot e John E. Noakes [33], em 1967. Com base na relação de escala de Widom (equação 2.12a), nas relações de estado da susceptibilidade (equação 2.6a) e da magnetização em função da temperatura (equação 2.7a) e da magnetização em função do campo aplicado (equação 2.11), eles propuseram a relação empírica

$$\left(\frac{H}{M}\right)^{1/\gamma} = \frac{T - T_C}{T_1} + \left(\frac{M}{M_1}\right)^{1/\beta} \quad , \quad (2.16)$$

onde M_1 e T_1 são constantes arbitrárias dependentes do material analisado.

Representando-se $(H/M)^{1/\gamma}$ no eixo das abscissas e $M^{1/\beta}$ no eixo das ordenadas, e escolhendo-se os valores corretos para os expoentes críticos, as curvas correspondentes às medidas de $M \times H$ são linearizadas, de tal modo que a isoterma correspondente a $T = T_C$ passa pela origem.

A figura 2.16 ilustra o método de Arrot-Noakes (painel (b)) aplicado às medidas de magnetização em função do campo magnético (painel (a)) para a liga reentrante $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.

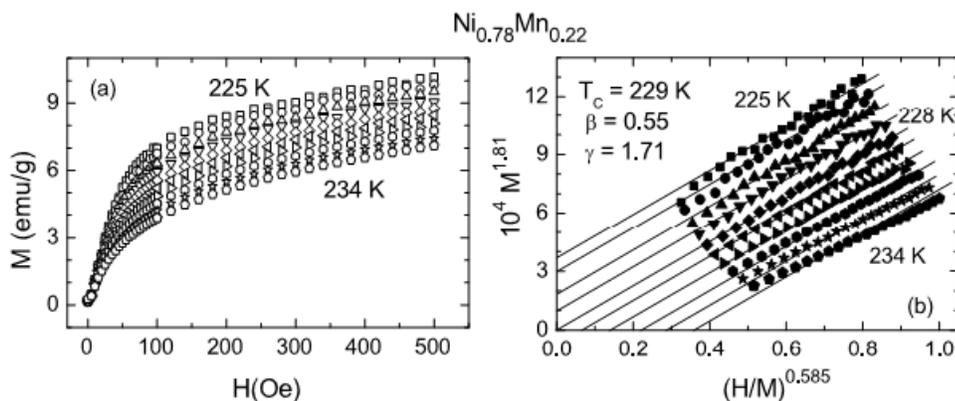


Figura 2.16: (a) Medidas de magnetização em função campo magnético na liga reentrante $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ [15]; (b) Método de Arrot-Noakes aplicado às medidas do painel (a).

2.2.3.3 Isoterma Crítica

O método da isoterma crítica é baseado na equação 2.11, e consiste em tomar o logaritmo de ambos os lados desta equação. Ao se considerar o gráfico de $\ln(M)$ em função de $\ln(H)$ na isoterma $T = T_C$, deve-se obter uma reta, de forma que o inverso da inclinação fornece o expoente crítico δ . Um exemplo do emprego dessa técnica pode ser visto na figura 2.17 [34], que mostra a determinação de δ para a manganita $Nd_{0.6}Pb_{0.4}MnO_3$.

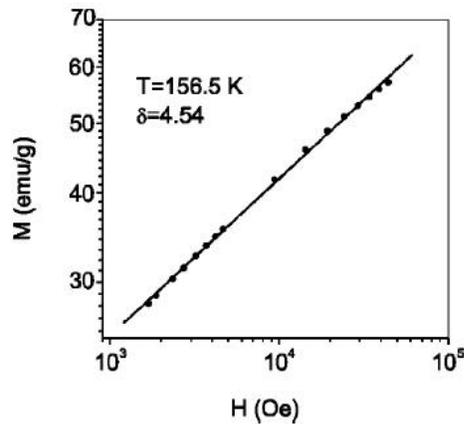


Figura 2.17: Método dos logaritmos utilizado para obter o expoente crítico estático δ para o óxido $\text{Nd}_{0,6}\text{Pb}_{0,4}\text{MnO}_3$ [34].

2.2.3.4 Método de Escala

O método de escala é baseado em uma equação de estado magnética representada sob a seguinte forma

$$m = f_{\pm}(h) \quad , \quad (2.17)$$

onde $m = M/|t|^{\beta}$ é a magnetização escalonada, $h = H/|t|^{\beta\delta}$ é o campo magnético escalonado, $f_{-}(h)$ é a função de escala em $T < T_C$ enquanto que $f_{+}(h)$ representa a função de escala para $T > T_C$. A temperatura reduzida é $t = (T - T_C)/T_C$.

Este método garante que a magnetização pode ser estudada tanto em $T < T_C$, quanto em $T > T_C$. Entretanto, a equação 2.17 somente é válida na região de temperaturas próximas a T_C . Com os expoentes críticos adequados, e usando-se o valor correto para a temperatura crítica, os resultados experimentais colapsam em duas curvas universais, acima e abaixo de T_C . Um exemplo de aplicação deste método pode ser visto na figura 2.18.

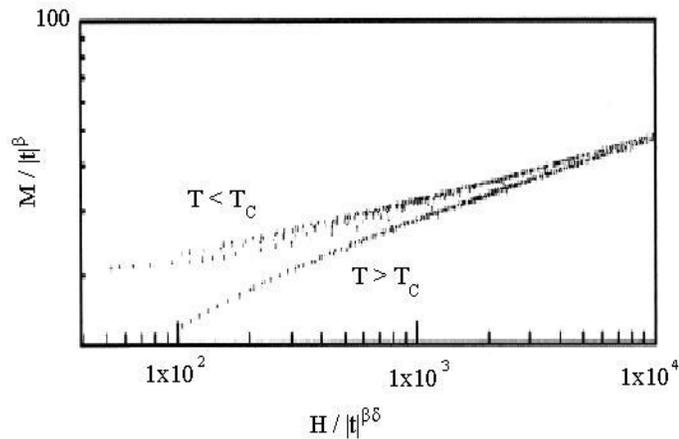


Figura 2.18: Exemplo de aplicação do método de escala na determinação dos expoentes críticos β e δ no sistema $Ni_{77}Fe_7V_{16}$ [35].

2.2.4 O Escalonamento Estendido de Campbell, Hukushima e Takayama (CHT)

Em 2007, I. A. Campbell e colaboradores [2] propuseram um escalonamento estendido (escalonamento CHT) inspirado na correção de uma contribuição não crítica associada à expansão das séries de alta temperatura [36] e testado nos modelos de Ising canônico 3-D, modelo XY e Heisenberg ordenado. Este escalonamento é baseado na hipótese de que as propriedades físicas escalam nas vizinhanças de T_C segundo a temperatura reduzida

$$\tau = \frac{T - T_C}{T} \quad . \quad (2.18)$$

A modificação na temperatura reduzida, para a condição de $T > T_C$, sugere que a susceptibilidade paramagnética deva ser escrita como

$$\chi \propto \left(\frac{T - T_C}{T} \right)^{-\nu} \quad . \quad (2.19)$$

O comprimento de correlação deve ser reescrito como

$$\xi \propto T^{-1/2} \tau^{-\nu} \quad ,$$

e o calor específico escala da seguinte forma:

$$C \propto T^{-2} \left(\frac{T^2 - T_C^2}{T^2} \right)^{-\alpha} \quad .$$

Supondo o escalonamento CHT válido para qualquer sistema, conforme sugerido recentemente por Campbell [37, 38], a susceptibilidade K-F necessita ser reescrita. A derivada da equação 2.19 é

$$\frac{d\chi^{-1}}{dT} = \chi^{-1}\gamma \frac{T}{T - T_c} \left(\frac{1}{T} - \frac{T - T_c}{T^2} \right) ,$$

e a susceptibilidade K-F, $W(T)$, baseada no escalonamento CHT, é dada pela equação

$$W(T) = \frac{1}{T} * \frac{\chi^{-1}}{d\chi^{-1}/dT} = \frac{1}{\gamma T_c} (T - T_c) . \quad (2.20)$$

A equação de estado de Arrot-Noakes, equação 2.16, também sofre modificações, de modo que

$$\left(\frac{H}{M} \right)^{1/\gamma} = a\tau + \frac{b}{T} M^{1/\beta} . \quad (2.21)$$

Já a equação de escala magnética, equação 2.17, não sofre modificação, exceto que a temperatura reduzida CHT, τ , deve substituir a temperatura reduzida convencional, t .

2.3 Correntes AC: Impedância e Permeabilidade

2.3.1 Motivação

O uso de correntes alternadas no intuito de investigar transições de fases por meio da técnica de impedanciometria é recente. A técnica ganhou destaque com o trabalho publicado em 1995, por F. L. A. Machado e col. [39].

Diversos trabalhos na área foram publicados desde então, ressaltando as características da impedância como função da frequência da corrente aplicada, ou ainda da magnetoimpedância (impedância em função do campo magnético aplicado externamente).

A impedância de um material condutor é a função resposta do sistema à aplicação de uma corrente alternada, ou seja, $V(\omega) = Z(T, \omega) * I(\omega)$, onde $I(\omega)$ é a corrente, $V(\omega)$ é a tensão desenvolvida no material e $Z(T, \omega)$ é a impedância, que é uma função da temperatura e de outras variáveis termodinâmicas relevantes ao problema. Nas experiências que não

envolvem campo magnético externo, os momentos magnéticos da amostra são estimulados pelo autocampo gerado pela corrente de sonda, de forma que, correntes alternadas de 10 mA produzem campos da ordem de 10^{-2} Oe. Os baixos campos a que os momentos magnéticos estão sujeitos, permitem avaliar o comportamento magnético das amostras sem a presença dos efeitos do campo desmagnetizante.

Nesta Tese, a impedância de sistemas reentrantes é estudada em função de T , da frequência, f , e do campo magnético aplicado, H . A partir das medidas de impedância, as componentes real e imaginária da permeabilidade magnética circunferencial são obtidas.

2.3.2 Conceitos Básicos

Os efeitos de se submeter um material ao estímulo de uma corrente alternada, relativos à variação da frequência são:

- 1) Em baixas frequências, a corrente gera uma autoindutância no interior da amostra, que produz um campo magnético alternado, dando origem a um campo elétrico longitudinal fora de fase com a corrente, produzindo assim a reatância indutiva;
- 2) A frequências mais altas, o campo magnético circunferencial perpendicular à corrente, gera correntes induzidas, provocando o surgimento das correntes de Foucault. Esse efeito faz com que a corrente resultante no centro do condutor decresça com o aumento da frequência, que provoca o chamado “efeito skin”, ou seja, a expulsão da corrente elétrica do centro do condutor para as bordas.

2.3.2.1 A Impedância e a Permeabilidade Magnética

A permeabilidade de sistemas magnéticos possui caráter complexo e pode ser deduzido a partir da área interna de um ciclo de histerese. Para que esta área seja não nula, é necessário que o campo magnético possua uma diferença de fase em relação à magnetização. Ou seja, como $B = \mu H$, e se $B = B_0 e^{i(\omega t + \varphi)}$ e $H = H_0 e^{i\omega t}$, então $\mu = \frac{B_0}{H_0} e^{i\varphi} = \mu' + i\mu''$.

A permeabilidade magnética é então, uma das responsáveis pela dissipação da energia magnética em um sistema magnético submetido a uma corrente AC, e sua intensidade é medida de acordo com a área sob a curva da histerese $B \times H$ [9]. Como as correntes de

Foucault são as responsáveis pela dissipação de energia em meios condutores, é correto afirmar que o caráter complexo da permeabilidade magnética também está associado às correntes de Foucault.

A impedância depende da permeabilidade magnética, $Z[\mu(\omega, T, H)]$, e sua dependência explícita pode ser obtida por meio da teoria de Landau [40] para o eletromagnetismo. A impedância é a função resposta de um material condutor submetido a uma corrente alternada e pode ser escrita como

$$\Delta V(\omega, T, H) = Z(\mu, \omega) * I(\omega) \quad , \quad (2.22)$$

onde ΔV é a diferença de potencial entre dois pontos na superfície do material; $\omega=2\pi f$ é a frequência angular; T é a temperatura; H é o campo magnético aplicado externamente e μ é a permeabilidade magnética do material.

Por seu caráter complexo, Z pode ser expressa como sendo

$$Z = R - iX \quad , \quad (2.23)$$

onde R é a resistência e X a reatância indutiva.

A relação entre a impedância e a permeabilidade pode ser obtida por meio das equações de Maxwell para meios condutores, sem excesso de cargas. Se nestes meios a permeabilidade magnética, μ , permissividade elétrica, ϵ , e condutividade elétrica, σ , forem consideradas grandezas escalares, tem-se

$$\vec{j} = \sigma \vec{E} \quad , \quad \vec{D} = \epsilon \vec{E} \quad e \quad \vec{B} = \mu \vec{H} \quad . \quad (2.24)$$

Assim, as equações de Maxwell podem ser escritas como

$$\nabla \cdot \vec{E} = 0 \quad , \quad \nabla \cdot \vec{H} = 0 \quad (2.25)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \quad (a), \quad \nabla \times \vec{H} = \sigma \vec{E} \quad (b), \quad (2.26)$$

Faz-se necessário impor que, para o estudo da impedância, os efeitos dos campos elétrico e magnético ocorram no limite quase-estático, ou seja, o comprimento de onda dos campos elétrico e magnético devem ser muito maiores que o livre caminho médio dos elétrons de condução e o tempo médio entre as colisões deve ser muito menor que o período de oscilação entre os campos.

A teoria de Landau [40] permite estabelecer a relação entre impedância e permeabilidade apenas para três tipos de simetrias: plano semi-infinito, lâmina e cilindro. Assim, considerando-se um cilindro, formato que mais se aproxima das amostras estudadas nesta Tese, a equação 2.26a pode ser escrita como

$$\nabla^2 \vec{E}_S + k^2 \vec{E}_S = 0 \quad ,$$

onde \vec{E}_S é a amplitude de oscilação do vetor campo elétrico, ou seja, $\vec{E}(r, t) = \vec{E}_S(r)e^{-i\omega t}$ e $k^2 = i\omega\sigma\mu$, considerando-se a identidade vetorial $\nabla \times \nabla \times \vec{A} = \nabla(\nabla \cdot \vec{A}) - \nabla^2 \vec{A}$.

Escrevendo o laplaciano em coordenadas cilíndricas,

$$\nabla^2 \vec{E}_S + k^2 \vec{E}_S = \left(\frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r} + \frac{\partial^2}{\partial r^2} \right) \vec{E}_S + k^2 \vec{E}_S = 0 \quad ,$$

e comparando com a equação diferencial de Bessel $xy' + x^2y'' + (x^2 - n^2)y = 0$, com $n \geq 0$, o vetor campo elétrico pode ser expresso como

$$\vec{E} = AY_0(kr)e^{-i\omega t} \hat{e}_z \quad , \quad (2.27)$$

onde A é uma constante e $Y_0(kr)$ é a solução de Bessel para $n=0$.

Para o campo magnético, a partir das equações 2.26a e 2.27, tem-se

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial E}{\partial r} \hat{e}_\theta = -\mu \frac{\partial \vec{H}}{\partial t} \Rightarrow \vec{H}_S = -\frac{iA\tau}{\mu\omega} Y_1(kr) \hat{e}_\theta \quad .$$

Como os campos elétrico e magnético estão relacionados através do vetor de Poynting, e como $E = IZ$, escrevemos a impedância para um condutor cilíndrico, de raio a , a partir da lei de Ampère, como sendo

$$Z = \frac{1}{2} R_{DC} ka \frac{Y_0(ka)}{Y_1(ka)} \quad , \quad (2.28)$$

onde R_{DC} é a resistência elétrica para frequência nula, Y_0 e Y_1 são funções de Bessel, e

$$k = \pm \frac{1+i}{\delta} \quad (a) \quad ; \quad \delta = \sqrt{\frac{\rho}{\pi\mu\mu_0 f}} \quad (b) \quad (2.29)$$

onde δ é o comprimento de penetração.

A equação 2.28 é conhecida como equação de Landau para impedância [40]. Fazendo-se o gráfico de Z/R_{DC} em função de a/δ tem-se a chamada curva universal de Landau, mostrada na figura 2.19.

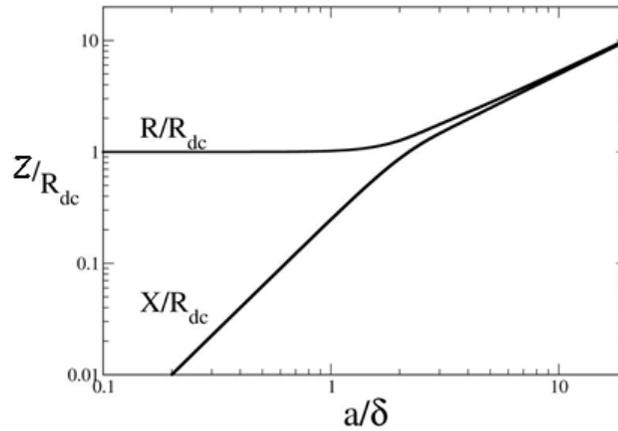


Figura 2.19: Curva universal de Landau [40].

Expandindo as funções de Bessel em baixas frequências, na equação 2.28, e considerando a equação 2.23, a resistência e a reatância podem ser escritas como

$$R = R_{DC} \left[1 + \frac{1}{48} \left(\frac{a}{\delta} \right)^4 + \dots \right] \quad (2.30)$$

$$X = -R_{DC} \left[\frac{1}{4} \left(\frac{a}{\delta} \right)^2 + \dots \right] \quad (2.31)$$

Considerando-se o primeiro termo das equações 2.30 e 2.31, a equação 2.29b e definindo $L = \mu l / 8\pi$ (como sendo a indutância), chega-se à expressão geral $Z = R_{DC} - i\omega L$, que é a impedância de um circuito R-L discreto. Assim, as equações 2.30 e 2.31 indicam que, a autoindutância do material é a principal responsável pela variação da impedância em função da frequência. A corrente alternada gera um autocampo magnético circunferencial no interior do material, que, por sua vez, é responsável pela produção de um campo elétrico longitudinal fora de fase com a corrente, e assim, produzindo a reatância indutiva no material.

Em altas frequências, as equações para Z, R e X sofrem modificações importantes:

$$Z = \frac{1}{2} R_{DC} ka \quad (2.28a)$$

$$R = aR_{DC} \sqrt{\frac{\pi\mu\mu_0}{8\rho}} \sqrt{f} \quad (2.30a)$$

$$X = -aR_{DC} \sqrt{\frac{\pi\mu\mu_0}{8\rho}} \sqrt{f} \quad (2.31a)$$

A equação 2.28a indica que o efeito predominante na variação da impedância em função da frequência, neste caso, é o chamado efeito *skin*. Ele é causado pela expulsão da corrente elétrica alternada do interior do condutor para as bordas, por meio das correntes de Foucault, que compensam o campo elétrico no interior do condutor. O aumento da frequência provoca a redução do comprimento de penetração que, por sua vez, provoca o aumento da impedância.

Conforme explicitado na equação 2.28, a teoria de Landau considera que a permeabilidade magnética é uma constante. Entretanto, a corrente alternada provoca um autocampo circunferencial no interior do condutor, provocando o alinhamento dos momentos magnéticos no plano transversal da corrente. Assim, variando-se a frequência, a permeabilidade transversal deverá sofrer modificações. Nota-se ainda que, em um paramagneto ideal, a permeabilidade é igual a unidade, $\mu = 1$, enquanto que, em materiais ferromagnéticos a permeabilidade pode chegar a valores da ordem de 10^6 vezes a permeabilidade do vácuo. Assim, a permeabilidade magnética transversal é uma grandeza dependente das quantidades campo magnético externo, frequência e temperatura, ou seja

$$\mu = \mu(f, H, T) = \mu' + i\mu'' \quad (2.32)$$

onde μ' é a parte real e μ'' é a parte imaginária da permeabilidade magnética transversal.

Aplicando-se campos magnéticos externos paralelamente ao sentido da corrente, ocorre competição entre o autocampo circunferencial e o campo externo, modificando a polarização da permeabilidade transversal. Este efeito é frequentemente associado ao campo de anisotropia.

Variações na impedância em função do campo magnético aplicado, ou simplesmente magnetoimpedância, foram verificadas em diversos sistemas que apresentam comportamento ferromagnético, como é o caso de fitas amorfas de $Co_{75-x}Fe_xSi_{15}B_{10}$, em temperatura ambiente, conforme resultados de F. L. A. Machado e col. [39]. Neste trabalho, assim como em trabalhos posteriores [41 - 44], é relatado que a magnetoimpedância sofre um pequeno

aumento de intensidade em baixos campos, cuja posição depende da frequência de medida, e, em seguida, uma descida até um valor mínimo, em campos mais elevados. Um exemplo deste efeito pode ser visto na figura 2.20.

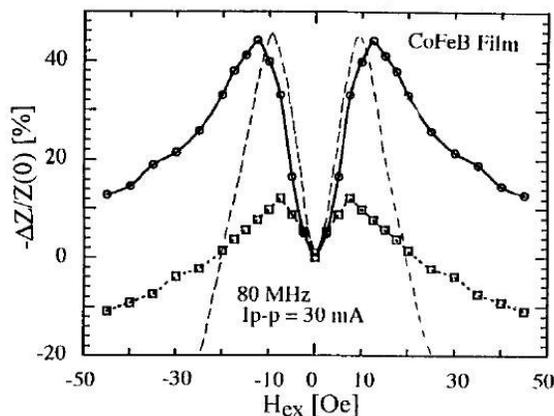


Figura 2.20: Magnetoimpedância considerando filmes de CoFeB conforme foram produzidos, nos pontos vazados, e após tratamento térmico, nos pontos cheios. A linha tracejada corresponde à estimativa teórica. A frequência e a corrente de sonda utilizada estão indicadas [41].

Medidas de impedância em função da temperatura mostram um máximo de impedância na região próxima à temperatura de transição crítica para-ferromagnética, conforme trabalhos publicados recentemente [45 - 49]. Este comportamento está associado ao fato de que, em alguns sistemas, a permeabilidade magnética possui um pico na magnitude, levemente abaixo da transição de fase para-ferromagnética (efeito Hopkinson).

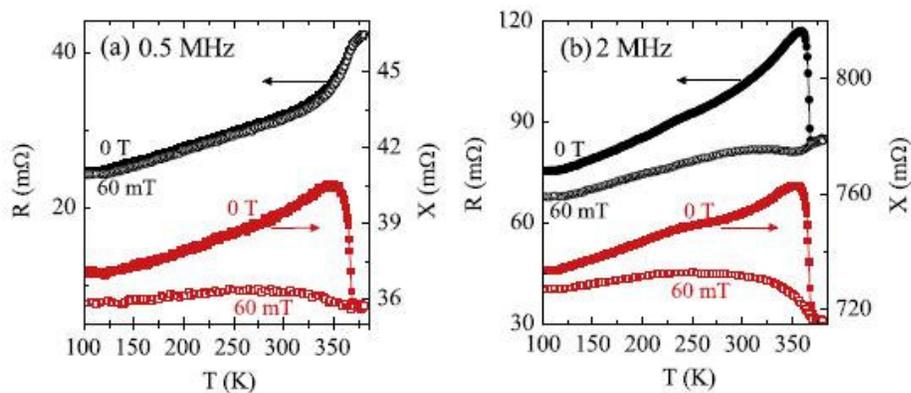


Figura 2.21: Dependência da resistência e reatância com T para a amostra $La_{0,7}Sr_{0,3}MnO_3$, nas frequências indicadas e para os campos aplicados indicados [47].

Nota-se, na figura 2.21, que o campo magnético externo influencia no sentido de tornar a transição de fase menos marcante. O campo magnético externo é paralelo à corrente AC, e consequentemente, é perpendicular ao campo interno, produzido pela corrente, responsável pela polarização transversa dos momentos magnéticos no interior do material.

Nos materiais reentrantes, além do salto na impedância, em $T = T_C$, nova mudança de regime se observa em baixas temperaturas, assinalando a temperatura de congelamento, T_K , conforme apresentado no trabalho de G. L. F. Fraga e col. [49], ilustrado na figura 2.22.

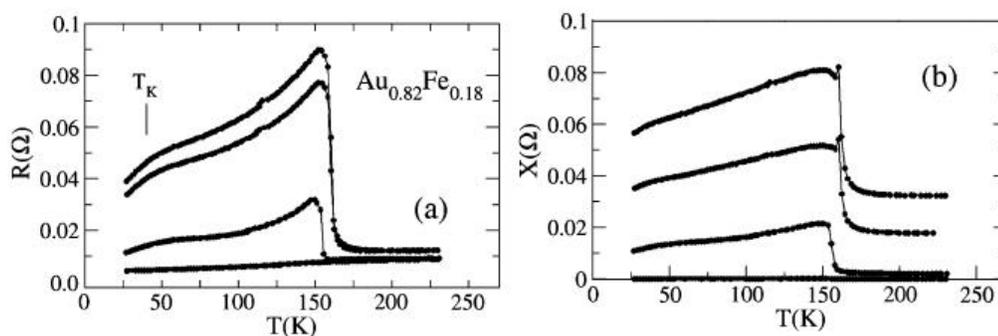


Figura 2.22: (a) Resistência e (b) Reatância em função da temperatura para a liga $Au_{0,82}Fe_{0,18}$. A temperatura de canting, T_K , está indicada. As frequências aplicadas são, a partir do topo, 1,8 MHz, 1,0 MHz, 100kHz e 80 Hz [49].

3. METODOLOGIA

Neste capítulo são apresentados os procedimentos adotados na preparação das ligas estudadas nesta Tese, bem como a descrição dos equipamentos e das técnicas de medidas empregadas para a caracterização de suas propriedades magnéticas e de transporte elétrico AC.

3.1 Processo de Produção das Ligas

As ligas de fase sigma foram produzidas na Faculdade de Física e Ciência Computacional da Cracóvia, Polônia, sob a supervisão do Prof. Dr. Stalislaw M. Dubiel, tendo sido considerados os seguintes passos:

As ligas $\sigma\text{-Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$ ($x = 0,46$ e $0,49$) e $\sigma\text{-Fe}_{0,52}\text{V}_{0,48}$, por simplicidade, denotadas respectivamente como *Cr46*, *Cr49* e *V48*, foram produzidas a partir de seus precursores metálicos Fe (99,95% de pureza), Cr (99,9% de pureza) e V (99,5% de pureza). Para a obtenção da fase σ , que apresenta comportamento magnético reentrante em baixas temperaturas, foi necessário realizar mais de um tratamento térmico. Após a fusão, um primeiro tratamento térmico (1200°C por 24h para Fe-Cr e 1000°C por 72h para Fe-V) seguido de resfriamento rápido (*quenching*), fez com que a liga adquirisse a estrutura cristalina bcc característica da fase α . Um novo tratamento de longa duração (700°C durante 100h para Fe-Cr e 700°C durante 25 dias para Fe-V) se fez necessário para que as ligas estabilizassem a fase σ [50 - 52].

A figura 3.1 apresenta o diagrama de fases para as ligas *Fe-Cr*. A região de estabilidade para a fase σ pura é restrita à região de concentrações entre 40 e 50% de Cr. A figura 3.2 apresenta o diagrama para as ligas *Fe-V*. De forma semelhante, apenas a região central (entre 35 e 65% de V) permite a estabilização da fase σ . As ligas que formam esta fase possuem estrutura cristalina complexa. No caso da liga *Fe-Cr*, a estrutura foi identificada em 1954 por B. G. Bergman [54]. A simetria é tetragonal, com 30 átomos por cela unitária. De acordo com S. M. Dubiel e B. F. O. Costa [55], desde 1966 até 1993, data do referido artigo, foram identificadas 53 ligas que podem ser estabilizadas na fase σ . Os átomos de ferro distribuem-se na rede cristalina de maneira que os átomos de cromo, ou vanádio, os circundem isto enfraquece a interação magnética entre os átomos de Fe e favorece a formação do sistema reentrante.

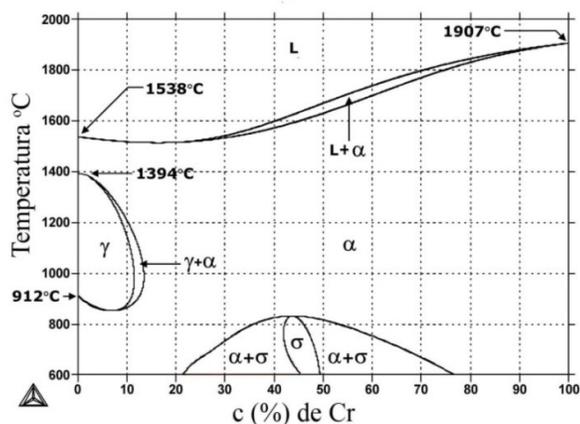


Figura 3.1: Diagrama de fases da liga *Fe-Cr* [53].

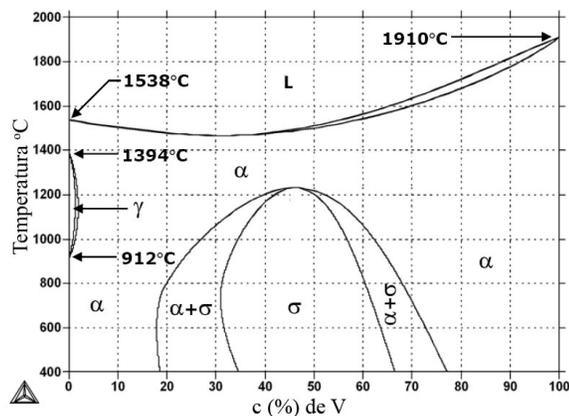


Figura 3.2: Diagrama de fases da liga *Fe-V* [53].

As ligas $Au_{1-y}Fe_y$ ($y = 0,135, 0,15, 0,18$ e $0,21$), denotadas, por simplicidade, respectivamente como *Fe13*, *Fe15*, *Fe18* e *Fe21*, foram produzidas no Laboratório de Supercondutividade e Magnetismo do IF-UFRGS realizando-se a fusão a arco dos precursores metálicos Au (99,99% de pureza) e Fe (99,95% de pureza) a partir do cálculo estequiométrico, de acordo com a concentração desejada. Após a homogeneização das ligas, as amostras foram formatadas de acordo com o tipo de técnica a ser estudada, magnetização e impedanciometria. Em seguida foi realizado tratamento térmico por 1h em 900°C, seguido de resfriamento rápido em óleo (*quenching*) para que se pudesse obter uma diluição homogênea dos átomos de Fe na rede do Au e produzir o comportamento magnético reentrante em baixas temperaturas.

Na figura 2.6 (seção 2.1.2) é mostrado o diagrama de fases magnéticas para o sistema *Au-Fe*. Nota-se que, para baixas concentrações de Fe ocorre uma transição vidro de spin canônica, em baixas temperaturas. Em concentrações acima de 13 at% de Fe, tem-se a formação de uma fase tipo ferromagnética entre o estado paramagnético de alta temperatura e o estado fundamental tipo vidro de spin. Acima de 26 at% de Fe, o sistema se torna ferromagnético em temperatura ambiente e não mais apresenta reentrância em baixas temperaturas.

3.1.1 Escolha das Amostras

3.1.1.1 Magnetização

Para a realização das experiências de magnetização, as amostras foram escolhidas com formatos alongados do tipo agulha ou fitas, de forma que se minimizasse o campo desmagnetizante. Na tabela 3.1 são apresentadas as dimensões (comprimento, a , largura, b , espessura, c), a massa, m , e o fator de desmagnetização, η , para cada uma das amostras estudadas.

Tabela 3.1: Dimensões, $a \times b \times c$, massa m e fator de desmagnetização η (conforme equação A.5) das amostras estudadas nesta Tese.

<i>Amostra</i>	<i>a (cm)</i>	<i>b (cm)</i>	<i>c (cm)</i>	<i>m (mg)</i>	<i>η</i>
<i>Cr46</i>	0,42	0,32	0,07	63,6	0,126
<i>Cr49</i>	0,17	0,06	0,03	1,9	0,133
<i>V48</i>	0,14	0,05	0,03	0,63	0,123
<i>Fe13</i>	0,54	0,16	0,01	17,3	0,014
<i>Fe15</i>	0,32	0,06	0,03	8,9	0,043
<i>Fe18</i>	0,39	0,11	0,02	11,8	0,026
<i>Fe21</i>	0,33	0,08	0,01	2,8	0,013

3.1.1.2 Impedanciometria

As amostras utilizadas nas experiências de impedanciometria possuíam formato de paralelepípedo, com seção reta aproximadamente quadrada (comprimento, c , largura, a_1 , espessura, a_2) e a distância entre os contatos de tensão, d . As dimensões das amostras estudadas por esta técnica estão listadas na tabela 3.2.

Tabela 3.2: Dimensões das amostras estudadas com auxílio da técnica de impedanciometria.

<i>Liga</i>	<i>c (cm)</i>	<i>a_1 (cm)</i>	<i>a_2 (cm)</i>	<i>d (cm)</i>
<i>Fe13</i>	1,26	0,10	0,10	1,15
<i>Fe18</i>	1,78	0,11	0,13	1,51
<i>Fe21</i>	1,42	0,09	0,10	1,23
<i>Cr46</i>	0,53	0,10	0,16	0,36

3.2 Técnicas de Medidas

No intuito de realizar a caracterização magnética das ligas investigadas nesta Tese, utilizou-se dois sistemas de medidas disponíveis no Laboratório de Supercondutividade e Magnetismo do IF-UFRGS: Magnetização, e Impedanciometria. As técnicas de medida são descritas a seguir.

3.2.1 Magnetização

As medidas de magnetização foram realizadas com um magnetômetro de SQUID (Superconductor Quantum Interferometer Device), modelo MPMS-XL (Magnetic Properties Measurements System), da empresa Quantum Design Inc. e foram observados dois procedimentos:

(1) Magnetização em função da temperatura ($M \times T$), considerando campos magnéticos aplicados fixos e observando-se os procedimentos ZFC e FC. No procedimento ZFC, a amostra é resfriada na ausência de campo magnético, o qual é aplicado somente quando a mais baixa temperatura de medida é atingida. As medidas são realizadas enquanto a temperatura é aumentada. No procedimento FC, um campo magnético fixo é aplicado com a amostra aquecida e, enquanto ocorre o resfriamento da amostras, as medidas são realizadas.

(2) Magnetização em função do campo magnético ($M \times H$), avaliando-se isotermas nas proximidades da temperatura de Curie, considerando-se curvas de magnetização inicial e ciclos de magnetização. A partir da estabilização de determinada temperatura, são realizadas medidas de magnetização em função do campo magnético aplicado, a partir do campo nulo até um valor máximo. Concluída a medida, o campo é desligado e o sistema é aquecido até uma temperatura bem acima de T_C para eliminar a história magnética persistente na amostra.

Para a realização das medidas no magnetômetro de SQUID, adota-se dois procedimentos:

i – Formato das amostras. Para a minimização da ação do campo desmagnetizante, as amostras escolhidas (quando possível) possuíam formatos alongados e laminares, como, por exemplo, folhas retangulares estreitas, ou agulhas. A amostra deve ser colocada com o

formato mais alongado na direção paralela ao campo magnético aplicado para que o efeito do campo desmagnetizante seja minimizado.

ii – Instalação das amostras. O procedimento padrão é feito através da fixação da amostra no interior de um canudo plástico próprio. Um pequeno pedaço do canudo é cortado, onde se fixa a amostra com auxílio de algodão, formando um envelope. Este é introduzido no canudo, que é fixado na vareta que suporta o conjunto amostra e porta-amostras no magnetômetro.

O magnetômetro de SQUID opera nos modos RSO ou DC. No modo RSO (*Reciprocating Sample Option*), a vareta contendo a amostra oscila de forma senoidal, o que torna a medida mais rápida. No modo DC (por extração da amostra), a amostra excursiona para fora da região central da bobina de detecção do momento magnético. O sistema permite medidas na faixa de temperaturas entre 1,9 K e 400 K. A temperatura pode ser estabilizada ou excursionada com taxas que variam entre um mínimo de 0,01 K/min e um máximo de 10 K/min. Campos magnéticos de até 50 kOe podem ser aplicados. O momento magnético é medido com precisão máxima de 5×10^{-9} emu.

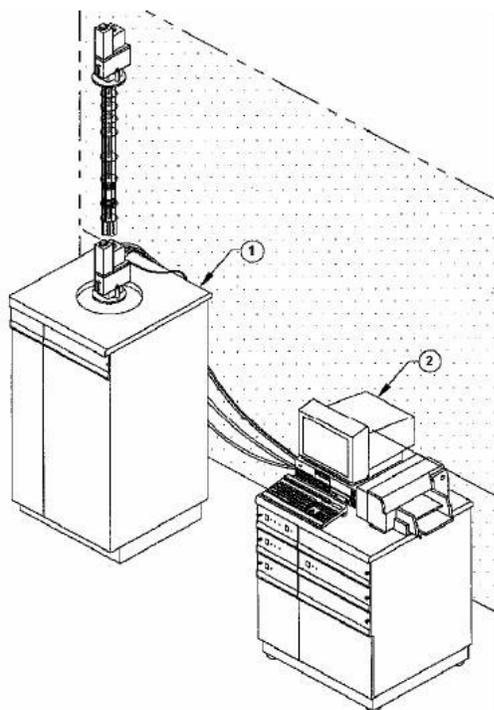


Figura 3.3: Magnetômetro de SQUID. (1) Criostato; (2) Sistema de controle.

O equipamento é composto por dois sistemas principais: (1) criostato e (2) controle eletro-mecânico, conforme exemplificado na figura 3.3.

O criostato é composto de um reservatório *Dewar* superisolado que é resfriado com hélio líquido e tem capacidade para 56 litros. Este *Dewar* é blindado termicamente com nitrogênio líquido. Em seu interior estão a bobina supercondutora, o sensor SQUID, o sistema de termometria, o controle eletrônico e a vara de transporte da amostra (ver figura 3.4).

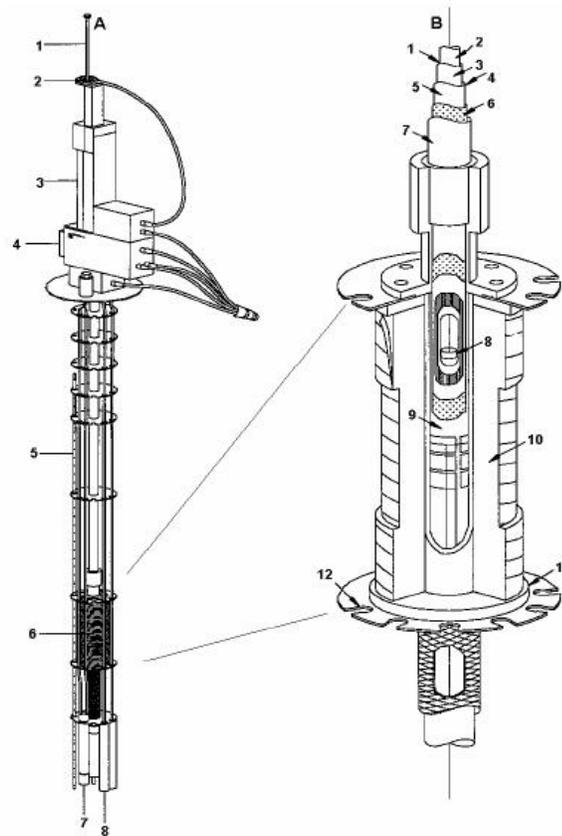


Figura 3.4: Sistema interno do criostato do magnetômetro MPMS. (A) 1- vara de transporte; 2- rotor; 3- transporte (DC ou RSO); 4- sonda; 5- sensor de nível de He-L; 6- bobina supercondutora; 7- setor de impedância; 8- cápsula do SQUID. (B) 1- câmara da amostra; 2- espaço da amostra; 3- folha com aquecedor; 4- região de isolamento térmico; 5- parede de vácuo interno; 6- superisolamento; 7- parede de vácuo externo; 8- amostra; 9- parede interna da bobina; 10- bobina supercondutora; 11- parede externa da bobina; 12- culote da bobina.

O controle do equipamento é feito por meio de um computador, que opera no sistema Windows, com uma interface IEEE-488. Três sistemas são comandados pelo software. O controlador modelo 1822 é responsável pelas seguintes funções e subsistemas: (1) transporte da amostra no interior da bobina; (2) aquecedor interno; (3) detecção do sinal SQUID; (4) fonte de corrente que gera campo magnético; (5) chave de operação no modo persistente; (6) impedância e (7) sensor de nível de He. O segundo controlador é responsável pela chave de fluxo de gás, de ar e do sistema de vácuo. O terceiro controlador (ponte R/G modelo 1802) é responsável pelo monitoramento do sensor de temperatura e aquecimento de He-gás.

3.2.2 Impedanciometria

Para as medidas de impedanciometria foi utilizado um conjunto de equipamentos eletrônicos, descritos mais adiante, e dois tipos de criostatos para o resfriamento das amostras. Três tipos de medida da impedância são possíveis: impedância em função da temperatura, impedância em função da frequência e impedância em função do campo magnético externo (magnetoimpedância).

(1) Impedância em função da Temperatura ($Z \times T$), mantendo-se fixos a frequência e o campo magnético aplicado. Devido a condições de ordem técnica para o procedimento de medidas adotado, espera-se até que o equipamento atinja a temperatura mínima, sem a presença de campo magnético externo. As medidas são realizadas enquanto a temperatura é aumentada, com, ou sem, a presença do campo aplicado. Logo após este procedimento, medidas podem ser feitas durante a diminuição da temperatura, se necessário, obtendo-se ciclos de aquecimento e resfriamento.

(2) Impedância em função da Frequência ($Z \times f$), mantendo-se temperatura e campo magnético constantes. Resfria-se o sistema até a temperatura desejada, sem a presença de campo aplicado, e executa-se a medida variando a frequência, na presença, ou não, do campo magnético.

(3) Impedância em função do Campo aplicado ($Z \times H_a$), mantendo-se as demais grandezas constantes. Escolhe-se a frequência e, quando o sistema atinge a temperatura escolhida, realizam-se as medidas como num ciclo de magnetização. O campo é desligado e o sistema é aquecido até $T \gg T_C$ e novamente resfriado para executar um novo ciclo em outra

temperatura. Este procedimento garante que a amostra não apresentará efeito de memória magnética.

Para realizar as medidas, é necessário que sejam feitos contatos elétricos nas amostras. O modo mais eficiente de fixação dos contatos é o de solda ponto, observando a técnica de quatro pontos, ilustrada na figura 3.5. Amostra e contatos elétricos são ancorados em um porta-amostras (lâmina de cobre) com o auxílio de verniz GE.

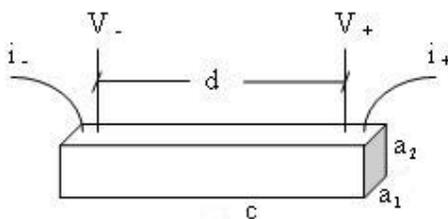


Figura 3.5: Ilustração da técnica de quatro pontos utilizada nas experiências de impedanciometria.

Para a realização das medidas foram utilizados dois sistemas criogênicos, ilustrados nas figuras 3.6, 3.7 e 3.8. Um dos sistemas é baseado num criostato convencional para nitrogênio líquido desenvolvido no Laboratório de Supercondutividade IF-UFRGS (figura 3.6), que opera entre 80 K e 350 K. O outro sistema é baseado num criorefrigerador DISPLEX, da empresa Advanced Research Systems (ARS) que opera entre 19 K e 350 K (figuras 3.7 e 3.8).

A parte interna do criostato de N_2-L , ilustrado na figura 3.6, é composta por uma câmara fechada com junta de índio, suspensa por tubos de aço inox de parede fina, por onde é feito vácuo. A câmara possui dupla função: impedir que a amostra e o aquecedor fiquem imersos diretamente no banho de N_2 e manter homogênea a temperatura no porta-amostra. No interior da câmara está instalado o porta-amostras de cobre, em formato circular, conforme figura 3.6b. Em um dos lados foi instalado um sensor CGR (Carbon-Glass Resistor), para a leitura da temperatura, e um aquecedor, constituído por um fio de manganina enrolado de forma a anular o autocampo. Do outro lado, estão colocados os contatos elétricos para que se possa instalar a amostra. O criostato possui ainda uma bobina responsável pela produção de campo magnético externo. A bobina foi também confeccionada no laboratório e pode gerar campos de até 500 Oe. Externamente, é colocado um vaso *dewar* de vidro, de parede dupla espelhada, para que o conjunto seja colocado em banho de N_2 líquido.

O criorefrigerador de ciclo fechado, da ARS, é composto por um compressor e um dedo-frio acoplado a um criostato, mostrado esquematicamente na figura 3.7.

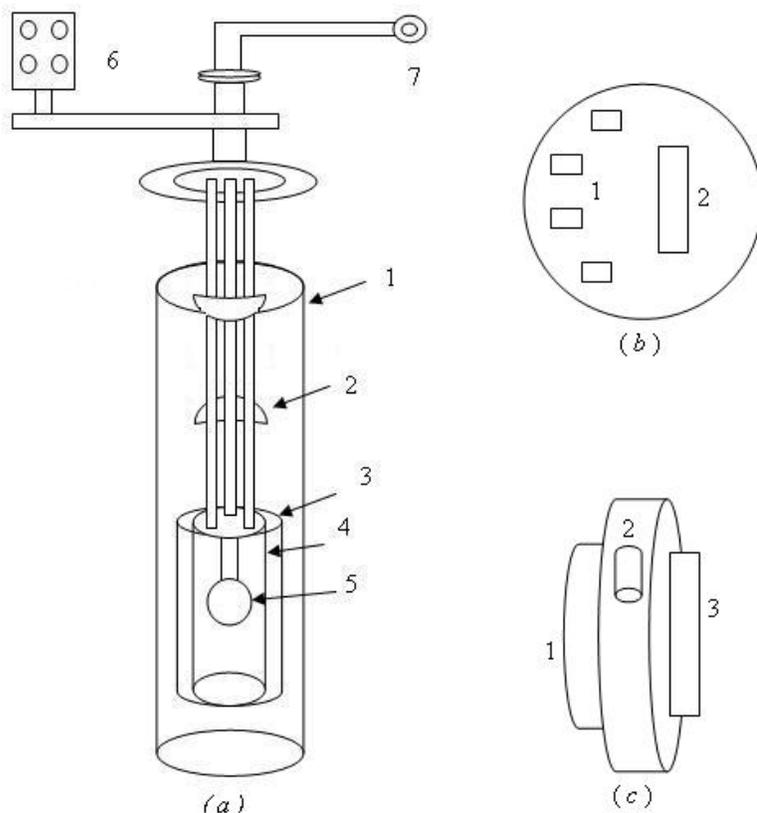


Figura 3.6: (a) Esquema do criostato de N_2-L . 1- Vaso Dewar para N_2-L ; 2- aletas; 3- bobina geradora de campo magnético; 4- vaso de isolamento; 5- porta- amostras; 6- caixa de terminais elétricos; 7- conexão para bomba de vácuo. (b) Vista frontal do porta-amostras. 1- contatos elétricos; 2- amostra. (c) Vista lateral do porta-amostras. 1- aquecedor; 2- sensor CGR; 3- amostra.

O compressor necessita de uma pressão mínima de repouso de 185 psig de hélio gasoso, atingindo 250 psig em modo trabalho, e funciona em regime de ciclo fechado, retirando calor por meio de compressão e expansão do gás. O compressor é refrigerado com o auxílio de uma serpentina de água pressurizada.

A central de comando do criorefrigerador é composta por um sistema de pistões, acionados pelo compressor, que é mantida no ambiente externo ao criostato evacuado no qual

o dedo frio, com dois estágios de resfriamento, está inserido. No interior do dedo frio circula He gasoso. Na porção intermediária do dedo frio encontra-se o estágio de 40 K e na região inferior, o estágio 12 K. Neste ponto está instalado um sensor de temperatura e um aquecedor. Os detalhes do criostato podem ser vistos na figura 3.8. Externamente à câmara onde é situada a amostra, é possível inserir uma bobina para a aplicação de campos magnéticos. A bobina utilizada nas experiências atinge o valor máximo do campo magnético de 160 Oe.

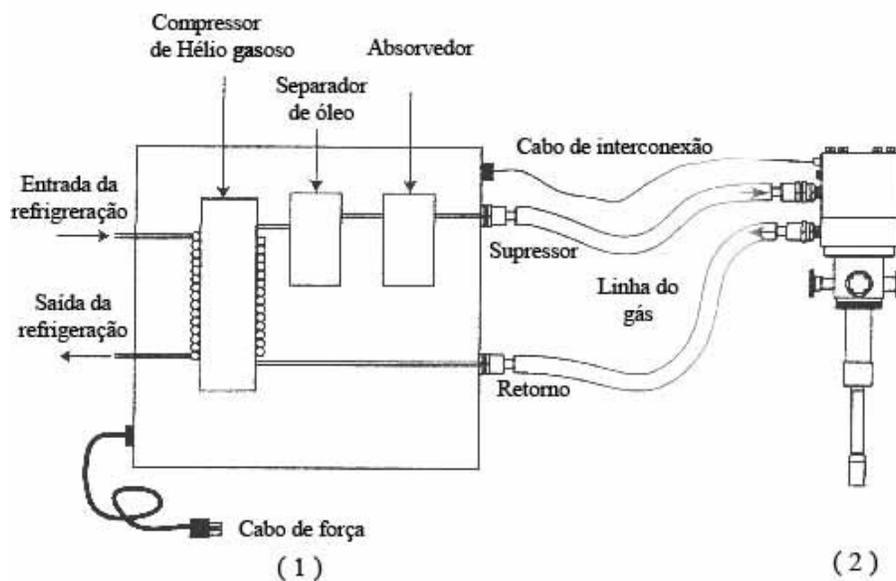


Figura 3.7: Esquema do criorefrigerador ARS. 1- compressor; 2- dedo frio.

O porta-amostras é uma cana em aço inox de parede fina, que é inserido em uma câmara acoplada ao criostato (ver figura 3.8). A caixa de terminais elétricos está colocada na extremidade superior da cana, acima de um flange de conexão. No corpo da cana foram colocadas 4 aletas em inox com dupla função: conter a convecção do He gás injetado na câmara e blindar a incidência de radiação infravermelha sobre a amostra. A amostra e o sensor CGR, fixados na extremidade inferior da cana, são ligados aos terminais da caixa externa através de um conjunto de fios criogênicos da *LakeShore*. A figura 3.9 mostra, esquematicamente, a cana porta-amostras.

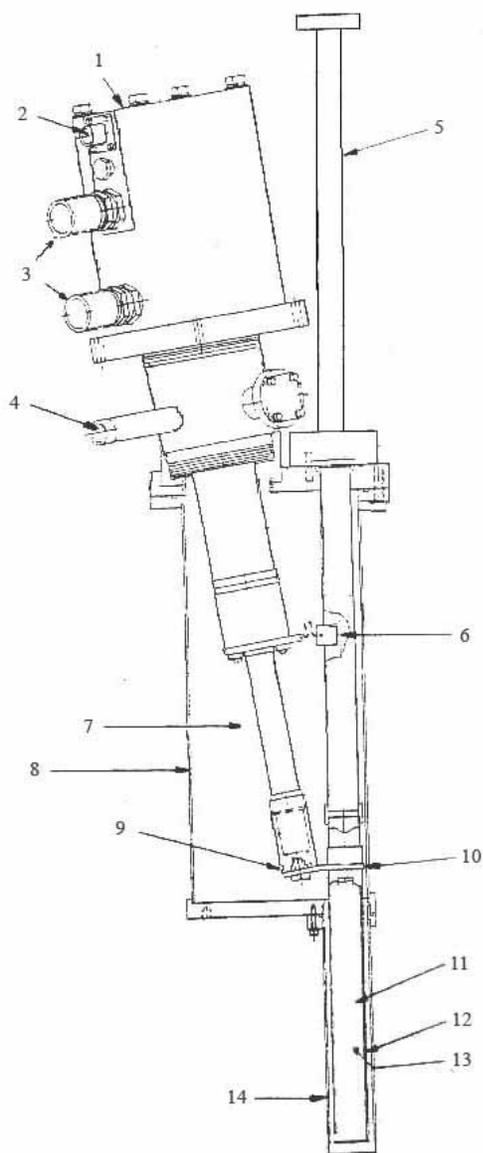


Figura 3.8: Detalhe do criostato com dedo frio. 1- Expansor DE 202; 2- receptáculo de controle do motor do expansor; 3- Conectores da linha de gás; 4- Conexão para bomba de vácuo; 5-Tubo extensor da câmara da amostra; 6- estágio 40K; 7-Dedo-frio; 8- Câmara de vácuo; 9- Controlador e sensor de temperatura; 10- Estágio 12K; 11- Posição do sensor CGR; 12- Parede interna da câmara da amostra; 13- Posição da amostra; 14- Tubo extensor.

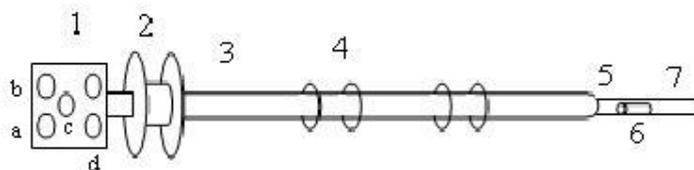


Figura 3.9: Detalhe da cana porta-amostras do criostato de ciclo fechado. 1- central de conectores elétricos (a – contato de V_+ ; b – contato de V_- ; c – contato de i_+ ; d – contato do CGR); 2- flange; 3- tubo em inox de parede fina; 4- aletas; 5- haste em fibra; 6- sensor CGR; 7- local da amostra.

A amostra é fixada na cana do porta-amostras com verniz GE, com a possibilidade de ser colocada em série com um resistor de $50\ \Omega$ (ver 11 na figura 3.10). A função do resistor é melhorar o casamento da impedância da amostra com os cabos externos. O transporte de corrente para a amostra, a leitura da d.d.p., o monitoramento da frequência e corrente e a leitura do sensor de temperatura são feitos por meio de cabos blindados coaxiais, com impedância de $50\ \Omega$.

O controle, a leitura e o armazenamento dos dados são realizados por meio de um conjunto de equipamentos eletrônicos, mostrado esquematicamente no diagrama de blocos da figura 3.10 e explicado a seguir.

A corrente que atravessa a amostra é senoidal e é aplicada por um gerador de funções da *Hewlett Packard*, modelo 33120A (3), associado a um amplificador diferencial (2) com ganho 1:1. A intensidade e a frequência da corrente aplicada são monitoradas por um osciloscópio *Tektronix*, TDS 1012B (4). Na montagem baseada no criostato de N_2 -L, o controle de temperatura é feito por meio de um controlador da *Oxford*, ITC 502 (6). O aquecedor é constituído por um bobinado de manganina, enrolado de forma a anular o autocampo. A medida de temperatura é feita com um sensor CGR. No caso da montagem baseada no criorefrigerador ARS, o controle de temperatura é feito por um controlador da *Scientific Instruments*, modelo 9650, associado a um sensor CGR fixado nas vizinhanças da amostra e acoplado a uma fonte de corrente DC. Este sensor é monitorado por dois multímetros digitais *Keithley*, modelo 196, operando nos modos tensão e corrente. O campo magnético externo é obtido por meio de uma bobina (8) que recebe corrente de uma fonte bipolar (7), desenvolvida no IF-UFRGS, que é monitorada por um multímetro digital *Keithley*, modelo 195A (5). Por

fim, a leitura da d.d.p. na amostra é feita por meio de um detector síncrono (*lock-in*) da *Perkin Elmer*, modelo 7280 DSP (1). O *lock-in* possui dois canais para a medida da impedância; o canal A é responsável pela leitura da d.d.p. em fase com a corrente (canal V_X , associado à resistência), enquanto que o canal B identifica a d.d.p. em diferença de fase de 90° em relação à corrente (canal V_Y , associado à reatância). Todas as leituras são feitas via conexão GPIB de forma automatizada, com o auxílio de um programa em Qbasic, desenvolvido em ambiente DOS.

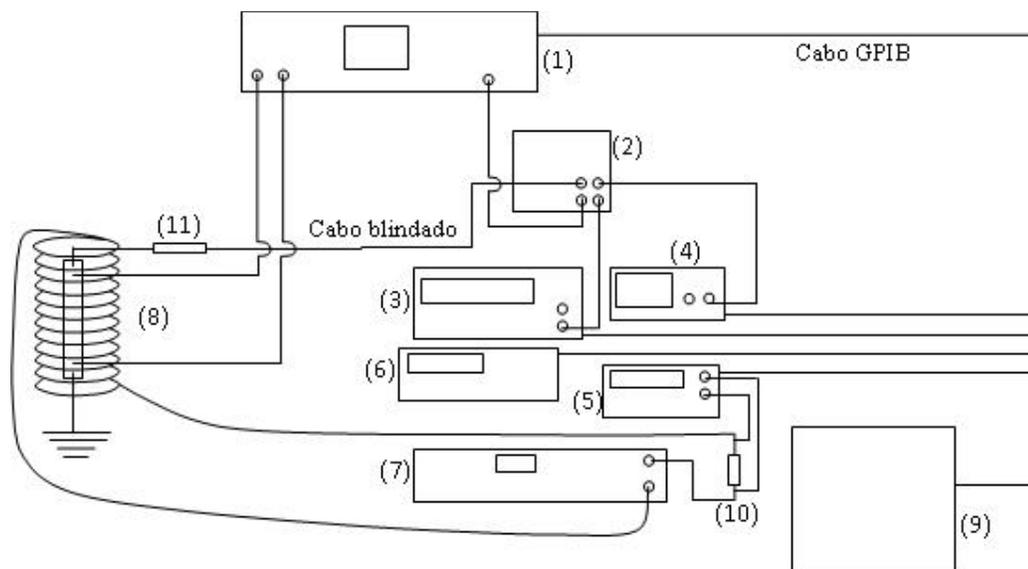


Figura 3.10: Montagem do aparato experimental para as medidas de impedância. (1) Lock-in; (2) Amplificador; (3) Gerador de sinal; (4) Osciloscópio; (5) Voltímetro Keithley; (6) Controlador de temperatura; (7) Fonte de corrente; (8) Bobina e amostra; (9) Computador; (10) Resistor de 1Ω ; (11) Resistor de 50Ω .

3.3 Experimentos Realizados

3.3.1 Magnetização

Os experimentos de magnetização em função da temperatura, $M \times T$, foram realizados aplicando-se campos fixos e observando-se os procedimentos ZFC e FC. Enquanto que, os experimentos de magnetização em função do campo magnético aplicado, $M \times H_a$, foram realizados observando-se as curvas de magnetização inicial para isotermas na região em torno da temperatura de transição crítica (T_C). Foram realizados ainda, ciclos de magnetização em três temperaturas distintas, uma abaixo da transição crítica reentrante, uma na região ordenada tipo ferromagnética e a terceira acima da transição crítica. A escolha dos tipos de experimentos é apresentada na tabela 3.3.

Tabela 3.3: Tipo de medidas de magnetização realizadas nos sistemas estudados.

Amostra	$M \times T$		$M \times H$		Ciclo de M	
	Intervalo	H fixos entre	Intervalo	Isotermas entre	Intervalo	Isotermas de
Cr46	4,0 K – 80,0 K	10 Oe e 130 Oe	0 Oe – 500 Oe	20 K e 35 K	-500 Oe – +500 Oe	8 K, 19 K e 35 K
Cr49	2,0 K – 50,0 K	10 Oe e 70 Oe	0 Oe – 300 Oe	2 K e 10 K	-300 Oe – +300 Oe	2 K, 4 K e 12 K
V48	6,0 K – 90,0 K	10 Oe e 160 Oe	0 Oe – 500 Oe	36 K e 50 K	-500 Oe – +500 Oe	34 K e 50 K
Fe13	4,0 K – 160,0 K	10 Oe e 100 Oe	0 Oe – 500 Oe	45 K e 100 K	-500 Oe – +500 Oe	20 K, 64 K e 105 K
Fe15	8,0 K – 200,0 K	20 Oe e 100 Oe	0 Oe – 500 Oe	81 K e 110 K	-500 Oe – +500 Oe	20 K, 80 K e 115 K
Fe18	8,0 K – 260,0 K	10 Oe e 200 Oe	0 Oe – 500 Oe	144 K e 170 K	-500 Oe – +500 Oe	20 K, 143 K e 166 K
Fe21	4,0 K – 270,0 K	10 Oe e 200 Oe	0 Oe – 500 Oe	184 K e 216 K	-500 Oe – +500 Oe	20 K, 190 K e 216 K

3.3.2 Impedanciometria

Os experimentos de impedância em função da temperatura ($Z \times T$) foram realizados observando-se campos magnéticos aplicados fixos e frequências fixas. Os experimentos de impedância em função do campo magnético aplicado, magnetoimpedância ($Z \times H$), foram realizados observando-se uma frequência fixa em diversas isothermas, desde a mínima permitida pelo equipamento até pouco acima da temperatura de transição crítica. A escolha dos experimentos é mostrada na tabela 3.4.

Tabela 3.4: Medidas realizadas para os sistemas estudados pela técnica de impedanciometria.

Amostra	$Z \times T$			$Z \times H$		
	Intervalo	H fixos de	Frequências entre	Intervalo	Isotermas entre	Frequência
<i>Fe13</i>	19,0 K – 140,0 K	0, 20, 70 e 120 Oe	80 Hz e 1,8 MHz	-140 Oe – +140 Oe	20 e 100 K	200 kHz
<i>Fe18</i>	19,0 K – 230,0 K	0, 20 e 50 Oe	80 Hz e 1,8 MHz	-150 Oe – +150 Oe	20 e 180 K	100 kHz
<i>Fe21</i>	19,0 K – 270,0 K	0, 20 e 120 Oe	80 Hz e 1,8 MHz	-150 Oe – +150 Oe	20 e 220 K	100 kHz
<i>Cr46</i>	19,0 K – 61,0 K	0, 50, 100 e 150 Oe	1 kHz e 1,8 MHz	-150 Oe – +150 Oe	18 e 36 K	400 kHz

4. FENOMENOLOGIA CRÍTICA NOS SISTEMAS σ -FeCr e σ -FeV

4.1 Introdução

Neste capítulo apresentam-se as medidas, as análises e as discussões pertinentes à fenomenologia crítica nas vizinhanças da transição para-ferromagnética dos sistemas σ -FeCr e σ -FeV. Os experimentos realizados são: magnetização em função da temperatura ($M \times T$) e magnetização em função do campo magnético aplicado ($M \times H$). Os métodos empregados nas análises são os de Kouvel-Fisher (K-F) para $M \times T$, e Arrot-Noakes (A-N), Isoterma crítica e Escala, para $M \times H$.

Primeiramente apresentamos uma rápida discussão sobre o campo desmagnetizante, que deve ser considerado nas medidas de magnetização. Os detalhes acerca do campo desmagnetizante são mostrados no apêndice A. Em seguida, são apresentados os resultados obtidos para as ligas dos sistemas reentrantes de fase σ : Cr46, Cr49 e V48, preparada conforme os procedimentos descritos no capítulo 3.

Ao final do capítulo, é apresentado o diagrama de fases magnéticas para cada uma das ligas estudadas e é feita uma comparação entre os expoentes críticos β , γ e δ determinados experimentalmente para a transição para-ferromagnética nestes sistemas.

4.2 O Campo Desmagnetizante

O campo desmagnetizante produz efeitos significativos nos resultados de magnetização de amostras ferromagnéticas de formato arbitrário. Este campo é dado por

$$H_d = -\eta M \quad , \quad (A.2)$$

onde M é a magnetização e η é o fator de desmagnetização da amostra.

Este campo atua no sentido de dificultar a orientação dos momentos magnéticos num material que está sujeito a um campo magnético externo. Assim sendo, o campo efetivo sentido pela amostra, que chamamos de campo interno H_i , é descrito por

$$H_i = H_a - H_d \quad , \quad (4.1)$$

onde H_a é o campo magnético aplicado externamente.

Maiores detalhes sobre o fator de desmagnetização são apresentados nos apêndices. Porém, em linhas gerais, tem-se que o fator de desmagnetização está relacionado à geometria da amostra. O cálculo deste fator é possível para amostras com geometria elipsóide [56, 57]. Em nossas medidas consideramos a determinação de η apresentada por Chikazumi [56]:

$$\eta = \frac{\pi c}{4a} \left[1 - \frac{a-b}{4a} - \frac{3}{16} \left(\frac{a-b}{a} \right)^2 \right]; \quad a > b \gg c \quad (A.5)$$

onde a , b e c são os semieixos do elipsóide. O formato real das amostras é, no caso do presente estudo, aproximadamente descrito como elipsoidal.

As amostras escolhidas para este estudo possuem formatos alongados e foram instaladas na configuração mais favorável para minimizar o fator de desmagnetização, de acordo com a equação A.5, e assim minimizar o efeito do campo desmagnetizante nas medidas de magnetização.

4.3 O Sistema $\sigma\text{-Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$

4.3.1 Resultados de Magnetização

i) Amostra Cr46:

A figura 4.1 apresenta as medidas de magnetização realizadas na liga Cr46. No painel (a), são apresentados alguns exemplos das medidas de magnetização em função da temperatura. Para essas medidas, foram adotados o procedimento ZFC, representado pelos pontos cheios, e o procedimento FC, representado pelos pontos vazados.

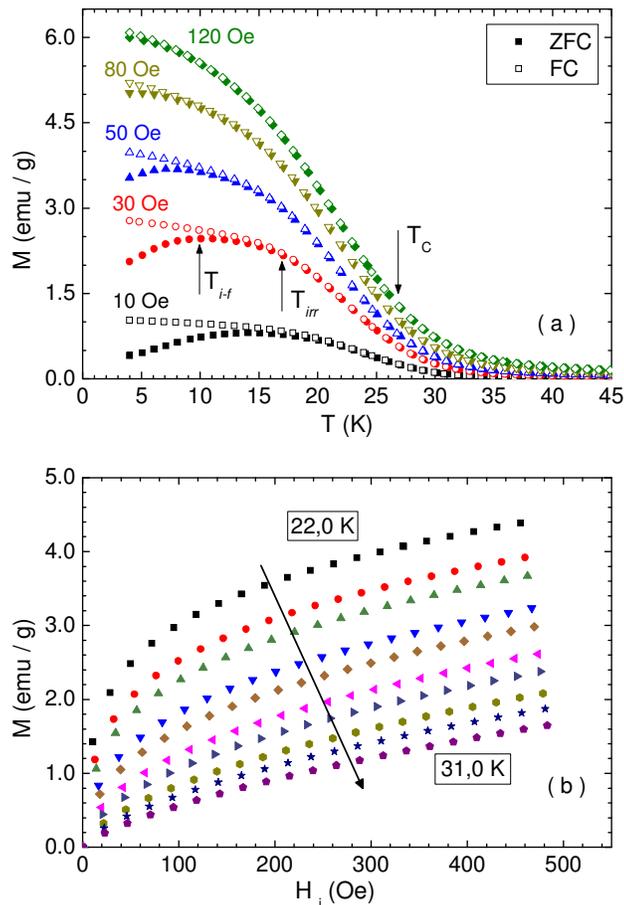


Figura 4.1: Medidas de magnetização para a amostra Cr46. (a) Curvas $M \times T$ para alguns campos magnéticos fixos. Os pontos cheios foram obtidos com o procedimento ZFC, enquanto que os vazados foram obtidos com o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ considerando isothermas entre 22,0 K e 31,0K, com intervalos de 1 K entre as isothermas.

Nota-se a redução da temperatura de irreversibilidade (T_{irr}), que denota o ponto de separação das curvas ZFC e FC, a tendência constante da temperatura crítica (T_C) e a diminuição do ponto de irreversibilidade forte (T_{i-f}), ponto de máximo na magnetização ZFC, com o aumento do campo magnético. Estes resultados são melhor explicados mais adiante. No painel (b) têm-se algumas medidas de magnetização em função do campo magnético interno para isotermas entre 22,0 K e 31,0 K, medidas a cada 1,0 K. À medida que se aumenta a temperatura, a magnetização se torna mais linear com o campo e possui menor intensidade até que, em $T > T_C$, a dependência entre M e H tende à linearidade em temperaturas muito acima de T_C . O campo interno H_i foi avaliado de acordo com a equação 4.1.

ii) Amostra Cr49:

A figura 4.2 apresenta as medidas de magnetização realizadas na liga Cr49. O painel (a) apresenta algumas das medidas de $M \times T$ em campos magnéticos aplicados fixos. Os pontos cheios representam o procedimento ZFC, enquanto que os vazados, o procedimento FC. De forma semelhante que para a liga Cr46, nota-se que o aumento do campo magnético aplicado provoca diminuição da temperatura de irreversibilidade (T_{irr}). A temperatura crítica (T_C) não varia e o ponto de irreversibilidade forte (T_{i-f}) apresenta a particularidade de se confundir com T_{irr} , sugerindo que, nesta situação, o comportamento magnético da amostra se aproxima de um vidro de spin puro. No painel (b) são apresentadas medidas de $M \times H$, considerando isotermas entre 3,0 K e 10,0 K, realizadas em intervalos de 1,0 K. O campo interno, H_i , representado no eixo horizontal da figura 4.2b, foi calculado com base na equação 4.1.

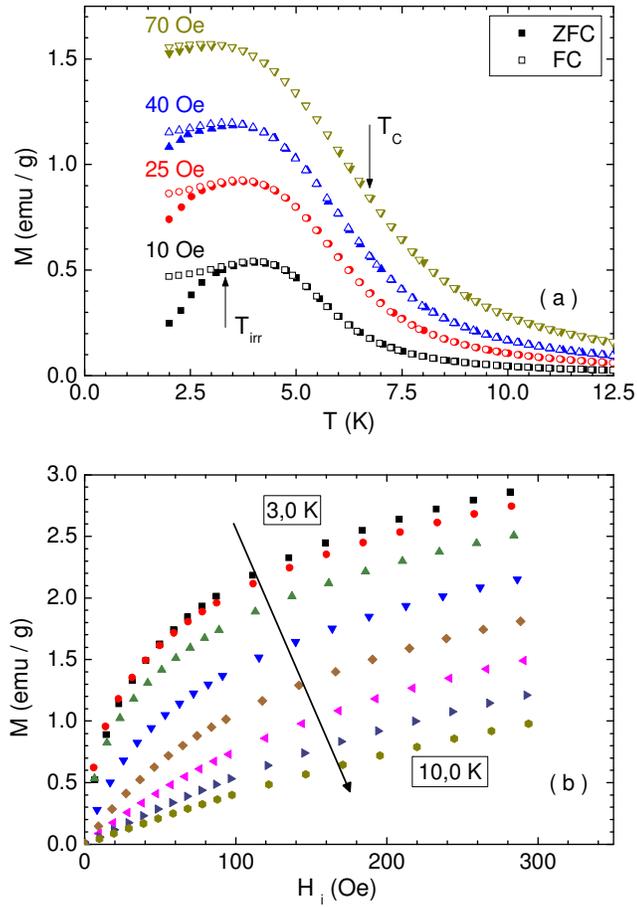


Figura 4.2: (a) Curvas de $M \times T$ para a liga Cr49 em alguns campos magnéticos aplicados. Os pontos cheios foram obtidos com o procedimento ZFC, enquanto que os vazados representam medidas com o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ medidas em temperaturas fixas entre 3,0 K e 10,0K, com intervalo de 1 K entre as isotermas.

4.3.2 Análises

4.3.2.1 Análises com o Método de Kouvel-Fisher

O método K-F [32] consiste na obtenção e análise das quantidades:

$$Y(T) = \frac{\chi^{-1}}{d\chi^{-1}/dT} = \frac{1}{\gamma}(T - T_c) \quad (2.14)$$

$$X(T) = -\frac{M}{dM/dT} = \frac{1}{\beta}(T - T_c) \quad (2.15)$$

As equações 2.14 e 2.15 supõem a validade do escalonamento convencional, o qual considera que as propriedades magnéticas escalam, nas vizinhanças de T_C , com a temperatura reduzida $t = (T - T_C)/T_C$ (conforme discutido no capítulo 2).

4.3.2.1.a Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional

Seguem-se as análises da susceptibilidade DC com base no escalonamento convencional para o sistema σ -FeCr.

i) Amostra Cr46:

As figuras 4.3 e 4.4 apresentam a quantidade $Y(T)$, que denominamos de susceptibilidade K-F, em função da temperatura para a liga Cr46 em diferentes valores de campo aplicado. A quantidade $Y(T)$ é determinada a partir das medidas de susceptibilidade conforme a definição dada pela equação 2.14.

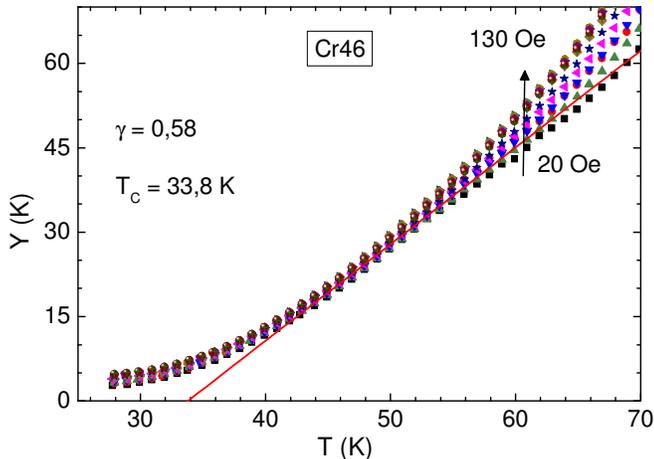


Figura 4.3: Susceptibilidade K-F em função da temperatura, obtida à partir da equação 2.11 para a liga Cr46 em vários campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 130 Oe. O intervalo de variação do campo é de 10 Oe. A linha cheia vermelha denota o ajuste linear global, de forma que os parâmetros críticos indicam $\gamma = 0,58$ e $T_C = 33,8$ K.

Na figura 4.3 são apresentadas as medidas da susceptibilidade K-F em vários campos magnéticos aplicados, entre 20 Oe e 130 Oe. Observa-se que a susceptibilidade K-F depende

fortemente e sistematicamente do campo aplicado em temperaturas superiores a 55 K. Isto significa que o regime linear da susceptibilidade, onde análises críticas confiáveis podem ser efetuadas, limita-se à região $T_C < T < 55$ K. Um ajuste global, realizado entre 44 K e 54 K é mostrado na figura 4.3. Obtém-se $T_C = 33,8$ K e $\gamma = 0,58$. A temperatura crítica estimada está muito acima do valor esperado com base na posição do mínimo de dM / dT , mostrado no detalhe da figura 4.4. O valor estimado para T_C é também alto se comparado com a estimativa obtida dos resultados de magnetização mostrados na figura 4.1. Por fim, o valor obtido para o expoente γ é anômalo e menor que a previsão da teoria de campo médio.

A figura 4.4 mostra uma análise individualizada para o campo magnético aplicado de 70 Oe. Neste caso, a análise foi limitada à região $T < 2T_C$. Observa-se que $Y(T)$ não mostra um comportamento genuinamente linear neste intervalo de temperaturas. Ainda assim, procurou-se realizar um ajuste linear, como mostrado na figura. Neste caso obtém-se $\gamma = 1,05$ e $T_C = 27,0$ K. A temperatura crítica está coerente com o esperado das curvas de magnetização (figura 4.1) e o expoente crítico remete à teoria de campo médio.

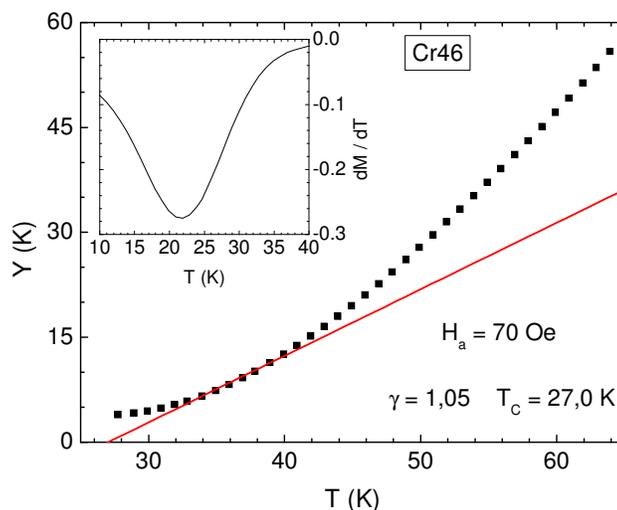


Figura 4.4: Análise de K-F com base no escalonamento convencional para a liga Cr46 no campo aplicado de 70 Oe. No detalhe, tem-se dM / dT . O ajuste foi realizado no regime de baixas temperaturas, porém introduz fortes incertezas (ver texto).

Este comportamento é aproximadamente reproduzido para qualquer valor de campo magnético aplicado no intervalo entre 20 Oe e 130 Oe. Desta forma, foi possível o cálculo de

valores médios, os quais são $\gamma = 1,06 \pm 0,02$ e $T_C = 26,7 (\pm 0,4)$ K. A pequena quantidade de pontos para ajuste, tornando a reta tangencial à curvatura de $Y(T)$, entretanto, levanta dúvidas quanto à relevância física da análise efetuada e aos parâmetros críticos por ela obtidos.

ii) Amostra Cr49:

As figuras 4.5 e 4.6 apresentam as análises da susceptibilidade em função da temperatura, utilizando-se o método de K-F e escalonamento convencional para a temperatura reduzida (equação 2.14), no caso da liga Cr49.

A figura 4.5 apresenta a susceptibilidade K-F, ou função $Y(T)$, obtida em diversos campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 70 Oe. Entre 10 Oe e 30 Oe, as medidas foram realizadas a cada 5 Oe e, entre 30 Oe e 70 Oe, as medidas foram feitas a cada 10 Oe. Nesta amostra, os resultados obtidos nos diferentes campos se sobrepõem razoavelmente, mostrando que os efeitos não lineares na susceptibilidade são pequenos. Nota-se, no entanto, a ocorrência de uma anomalia em todas as curvas em torno de 15,0 K. A origem desta anomalia não é conhecida. A análise dos resultados na figura 4.5 é feita apenas na região de baixas temperaturas. Tomando-se o conjunto dos resultados, um comportamento aproximadamente linear é identificado no intervalo de temperaturas entre 8 K e 12 K.

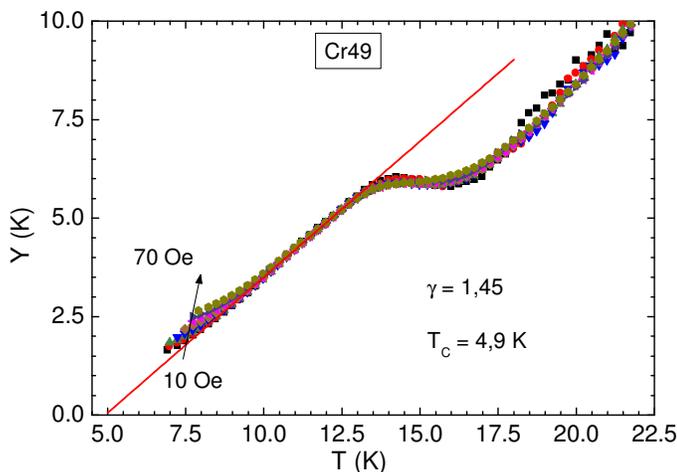


Figura 4.5: Susceptibilidade K-F para a liga Cr49 em campos magnéticos aplicados entre 10 e 70 Oe.

Na figura 4.6 este comportamento é individualizado para o campo aplicado de 25 Oe. Obtém-se, a partir das análises realizadas para os demais campos magnéticos aplicados, os valores médios $T_C = 4,8 (\pm 0,3)$ K e $\gamma = 1,48 \pm 0,05$. O valor de T_C está em razoável acordo com a expectativa baseada no mínimo de dM / dT , mostrado no detalhe da figura 4.6, assim como a expectativa do expoente crítico para a classe dos sistemas magnéticos reentrantes.

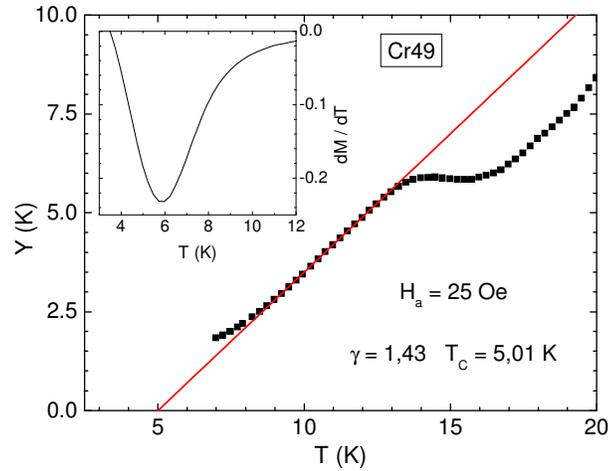


Figura 4.6: Análise de K-F usando o escalonamento convencional para a liga Cr49 no campo aplicado de 25 Oe. O ajuste indica $\gamma = 1,43$ e $T_C = 5,0$ K. No detalhe, tem-se $dM / dT \times T$.

4.3.2.1.b Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT

O escalonamento CHT supõe que a temperatura reduzida possa ser definida como sendo $\tau = (T - T_C)/T$. Assim, a susceptibilidade K-F será dada por

$$W(T) = \frac{1}{T} \frac{\chi^{-1}}{d\chi^{-1}/dT} = \frac{1}{\gamma T_C} (T - T_C) \quad . \quad (2.20)$$

i) Amostra Cr46:

A figura 4.7a apresenta a função $W(T)$ em diversos campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 130 Oe. Visualmente observam-se os mesmos efeitos reportados na figura 4.3, entretanto, os gráficos se sobrepõem razoavelmente na região de temperaturas entre 35 K e 55 K. O ajuste global é realizado no referido intervalo, que informa os parâmetros $T_C = 27$ K e $\gamma = 1,54$.

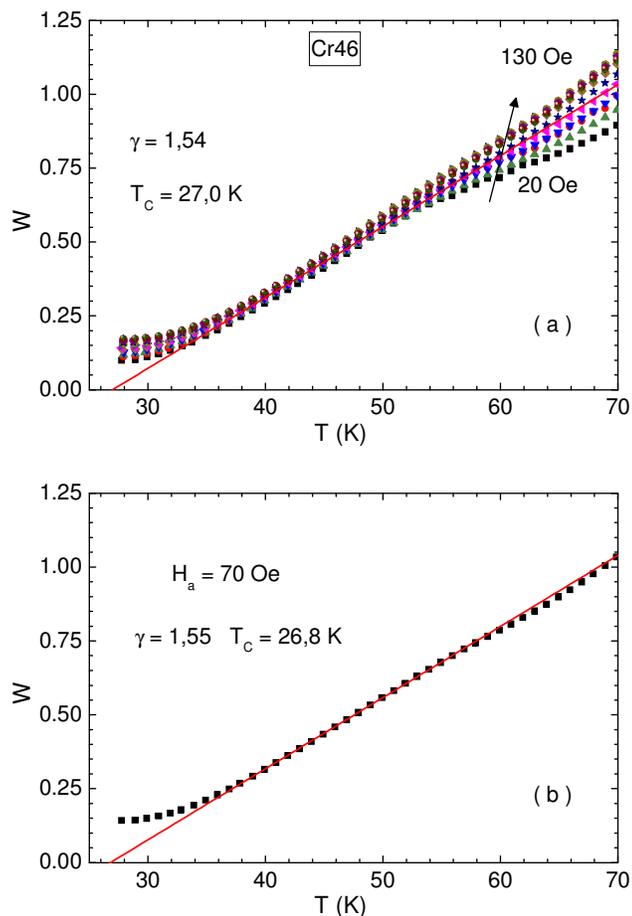


Figura 4.7: Análise de K-F usando o escalonamento CHT para a liga Cr46. (a) Pontos determinados com o uso da equação 2.17 em diversos campos magnéticos entre 20 Oe e 130 Oe. O espaçamento entre os campos é de 10 Oe. (b) Função $W(T)$ no regime de temperaturas entre 35 K e 58 K no campo magnético aplicado de 70 Oe. Neste caso o ajuste linear indica $\gamma = 1,55$ e $T_C = 26,8$ K.

No painel (b) da figura 4.7, é apresentado uma análise individualizada no campo magnético aplicado de $H = 70$ Oe. O ajuste é feito considerando-se a região linear que inicia pouco acima de T_C e se estende até cerca de 60 K. Neste caso, o expoente crítico tem valor de $\gamma = 1,55$ e a temperatura crítica de $T_C = 26,8$ K. Como nos demais campos investigados, $W(T)$ apresenta comportamento semelhante, foi possível estabelecer os valores médios dos parâmetros críticos, $\gamma = 1,54 \pm 0,04$ e $T_C = 26,8 (\pm 0,5)$ K. A linearidade do gráfico, a extensa região de ajuste, a temperatura crítica consistente com a derivada da magnetização (detalhe da

figura 4.4) e o expoente crítico compatível com o esperado para sistemas reentrantes [24], sugerem que esses valores são fidedignos e o escalonamento CHT é mais adequado para descrever a fenomenologia crítica na liga *Cr46*.

ii) Amostra *Cr49*:

A análise da transição para a amostra da liga *Cr49* com base no escalonamento CHT leva ao resultado ilustrado na medida representativa da figura 4.8.

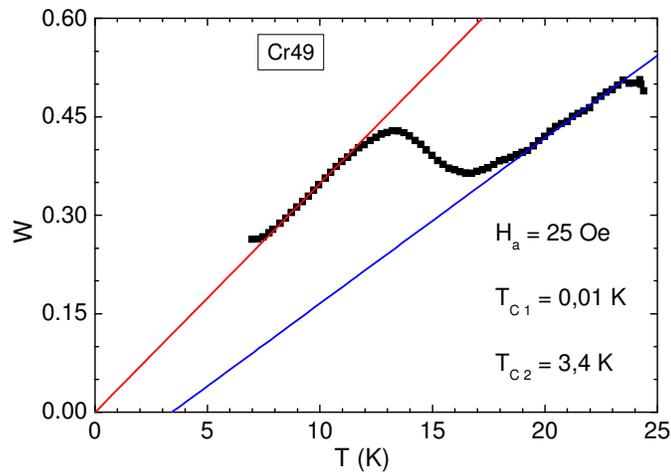


Figura 4.8: Análise de K-F usando o escalonamento CHT para a liga Cr49 no campo aplicado de 25 Oe. Em vermelho, o ajuste linear em baixas temperaturas sugere a ocorrência de uma transição quântica, enquanto que o ajuste em azul, em altas temperaturas, sugere o regime clássico.

A anomalia em torno de 15 K torna-se ainda mais marcante. A extrapolação linear do regime de altas temperaturas ($T > 18 \text{ K}$) leva à temperatura crítica $T_C \approx 3,5 \text{ K}$. Porém o regime de baixa temperatura indica $T_C \approx 0 \text{ K}$. Este resultado sugere a ocorrência de uma transição de fase quântica no caso da liga *Cr49*. Se esta interpretação estiver correta, a anomalia em $T \approx 15 \text{ K}$ poderia ser um *crossover* do regime de transição clássica, com temperatura crítica não nula, para um regime de baixa temperatura que revela uma transição quântica, com temperatura crítica nula. O método, porém, não permite a determinação do expoente crítico neste caso. A dificuldade resulta do termo que multiplica o fator $(T - T_C)$ na equação 2.20.

Este termo é inversamente proporcional a T_C e, no limite em que $T_C \rightarrow 0$, a determinação de γ torna-se muito imprecisa.

4.3.2.1.c Comparação entre os Escalonamentos

Para comparar a aplicabilidade dos escalonamentos convencional e CHT na liga *Cr46* e testar os valores obtidos para o expoente crítico γ , representamos as medidas de susceptibilidade na forma $\chi^{1/\gamma}$ em função de T , para o escalonamento convencional (apresentada no painel (a) da figura 4.9), ou $T\chi^{1/\gamma}$ em função de T , para o escalonamento CHT, apresentada no painel (b) da mesma figura.

Os resultados da figura 4.9a foram obtidos com o campo magnético aplicado de 50 Oe. Resultados semelhantes foram obtidos para outros valores do campo magnético. A reta de ajuste corresponde ao valor médio $\gamma = 1,06$, tal como obtido com a análise de Kouvel-Fisher supondo escalonamento convencional. A reta ajusta-se no intervalo de $32 \text{ K} < T < 44 \text{ K}$ e fornece $T_C \approx 27 \text{ K}$. No painel (b), correspondente ao escalonamento CHT, é obtido em ajuste linear num extenso intervalo de temperatura quando se considera $\gamma = 1,54$, tal como obtido da análise da figura 4.7, na seção 4.3.2.1.b. A temperatura crítica extrapolada é $T_C = 27,2 \text{ K}$. Os resultados da figura 4.9 indicam que o ajuste com o escalonamento CHT é de qualidade superior nesta liga e que o valor médio do expoente crítico a ser considerado é $\gamma = 1,54 \pm 0,04$. A observação de que o escalonamento CHT se mantém válido até temperaturas muito superiores a T_C é consistente com a expectativa teórica [2].

Na amostra da liga *Cr49*, a susceptibilidade apresenta uma anomalia em torno de 15 K na representação gráfica do tipo Kouvel-Fisher. O escalonamento CHT sugere que esta anomalia consiste num *crossover* para um comportamento de baixas temperaturas do tipo transição quântica, com $T_C = 0 \text{ K}$. Por outro lado, o escalonamento convencional também produz uma descrição razoável do comportamento crítico desta liga no regime de baixas temperaturas, fornecendo o expoente crítico médio $\gamma = 1,48 \pm 0,05$, cujo valor é consistente com aquele que caracteriza a transição ferromagnética na liga *Cr46*.

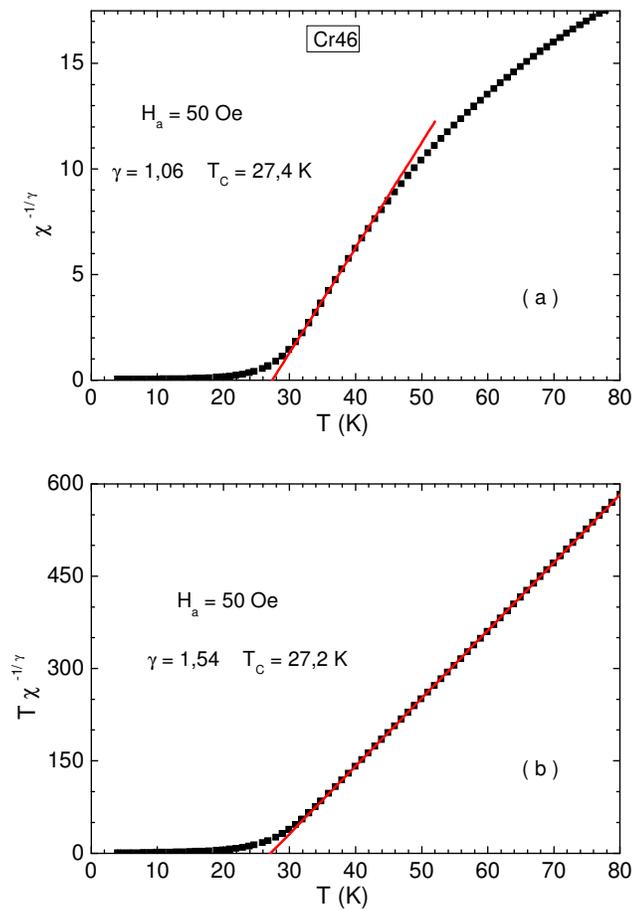


Figura 4.9: Comparação entre os escalonamentos convencional e CHT para a liga Cr46 no campo aplicado de 50 Oe. (a) Resultados com base no escalonamento convencional. (b) Resultados com base no escalonamento CHT. Detalhes no texto.

4.3.2.1.d Magnetização no Escalonamento Convencional

As figuras 4.10 e 4.11 apresentam análises da magnetização em função da temperatura para a liga Cr46, utilizando-se o método K-F, supondo o escalonamento convencional para a temperatura reduzida (equação 2.15).

Na figura 4.10 está representada a função $X(T)$, definida pela equação 2.15, obtida em campos magnéticos aplicados, entre 10 Oe e 130 Oe. Uma forte dependência da magnetização reduzida com o campo aplicado é observada abaixo de 80 Oe. Acima deste valor de campo aplicado, as curvas se sobrepõem, indicando que os efeitos não lineares são reduzidos em campos acima de 80 Oe. A determinação do expoente crítico β é discutida a seguir.

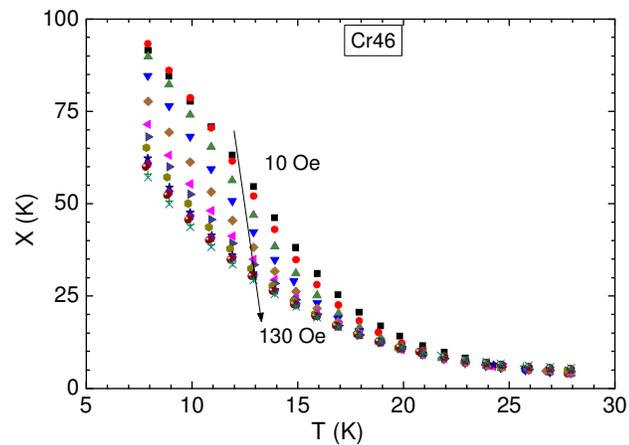


Figura 4.10: Aplicação da equação 2.12 para as medidas de magnetização na liga Cr46, considerando campos magnéticos aplicados entre 10 e 130 Oe. As curvas correspondem a valores de campo aplicado espaçados de 10 Oe, aumentando conforme indica a seta.

A figura 4.11 mostra a análise para a medida obtida no campo magnético aplicado de 80 Oe. Não se verifica claramente a ocorrência de uma região linearmente dependente da temperatura em $X(T)$. Na figura está representado o melhor ajuste linear obtido mediante a fixação da temperatura crítica no valor de 27 K, obtido da análise K-F efetuado nos resultados de susceptibilidade. O expoente crítico correspondente a esta reta é $\beta = 0,58$. Este resultado é reproduzido nos demais campos magnéticos considerados, de forma que valores médios puderam ser calculados. Assim, obteve-se $\beta = 0,57 \pm 0,02$ e $T_C = 26,3 (\pm 0,2)$ K. A pequena quantidade de pontos para ajuste das retas, entretanto, torna pouco convincente a análise da magnetização na amostra Cr46 com o método de Kouvel-Fisher. Assim, são necessários métodos auxiliares para se definir o valor do expoente crítico β nesta liga.

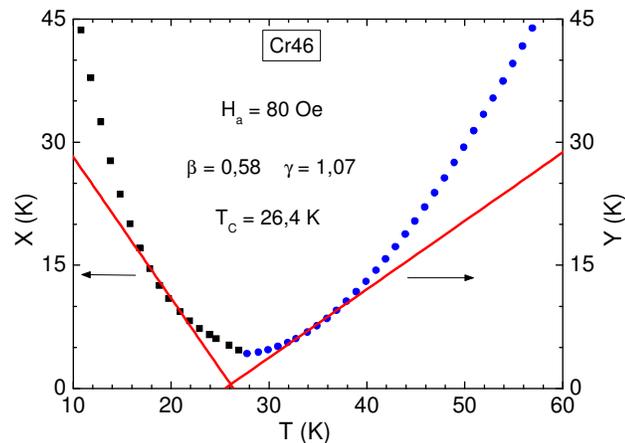


Figura 4.11: Análise da magnetização K-F usando o escalonamento convencional para a liga Cr46 no campo aplicado de 80 Oe. Detalhes no texto.

Para a liga Cr49 não foi possível analisar as medidas de magnetização K-F. O estudo da susceptibilidade mostra que esta liga está nas proximidades de um ponto crítico quântico, e uma genuína magnetização parece não ser estável em temperaturas não nulas.

4.3.2.2 Ciclos de Magnetização

No intuito de se estabelecer a região de aplicabilidade do método de Arrot-Noakes (A-N), ciclos de magnetização, como os mostrados nas figuras 4.12 e 4.13, foram realizados. O método somente é válido para a magnetização de equilíbrio. Isto significa que o método somente pode ser aplicado quando não há histerese, ou seja, o campo coercivo é nulo. Nesta situação o material não apresenta efeitos de irreversibilidades magnéticas e a magnetização medida corresponde ao equilíbrio termodinâmico.

i) Amostra Cr46:

As figuras 4.12a e 4.12b apresentam ciclos de magnetização para a liga Cr46, medidos nas temperaturas de 8,0 K, 19,0 K e 35,0 K, em campos aplicados entre -500 Oe e +500 Oe. As medidas realizadas em campos mais altos indicam que a magnetização cresce monotonicamente sem demonstrar tendência à saturação, comportamento característico dos sistemas magnéticos reentrantes. De acordo com a figura 4.1a, à temperatura de 8,0 K e em baixos campos aplicados, a liga encontra-se na fase reentrante. Na temperatura de 19,0 K

tem-se a fase ordenada tipo ferromagnética, enquanto que em 35,0 K, a liga encontra-se na fase paramagnética.

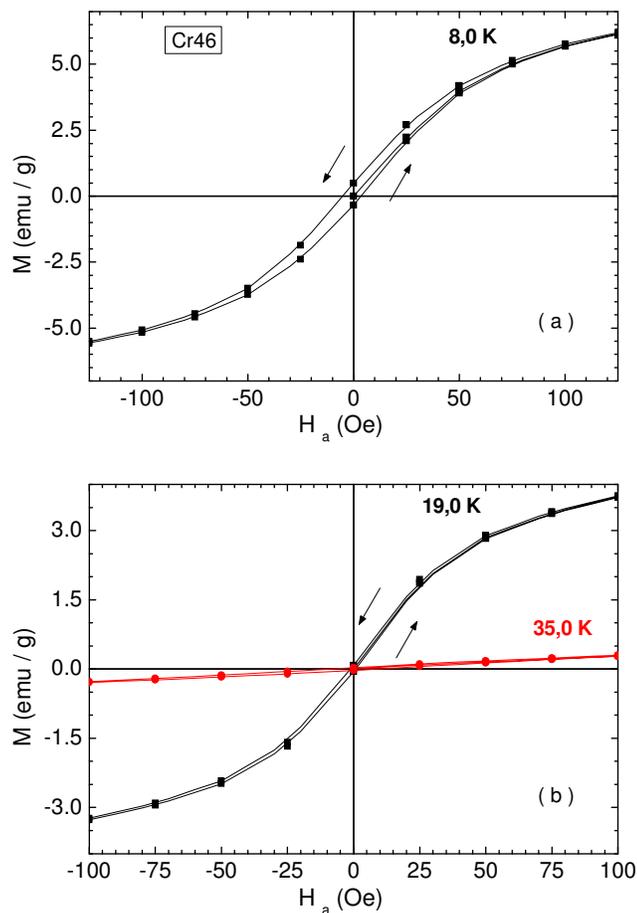


Figura 4.12: Ciclos de magnetização para a liga Cr46. (a) A isoterma de 8,0 K, encontra-se na fase reentrante. (b) A isoterma de 19,0 K, denota o ordenamento ferromagnético, e a isoterma de 35,0 K apresenta o comportamento da fase paramagnética.

O painel (a) da figura 4.12 mostra o ciclo de magnetização para a temperatura de 8,0 K. O campo coercivo é 4,4 Oe e a magnetização de saturação é 0,49 emu/g. Notam-se semelhanças no comportamento de $M \times H$ nas isotermas de 8,0 K e 19,0 K. Entretanto, o campo coercivo é aproximadamente nulo na isoterma de 19,0 K. No painel (b) são comparados os ciclos de magnetização obtidos em 19,0 K e 35,0 K. O resultado em $T = 35,0$ K mostra que, nesta temperatura, M é pequena e aumenta linearmente com o campo, tal como esperado para um sistema paramagnético em temperaturas afastadas de T_C .

ii) Amostra Cr49:

A figura 4.13 apresenta ciclos de magnetização para a liga Cr49, medidos para as temperaturas de 2,0 K, 4,0 K e 12,0 K, considerando campos aplicados entre -300 Oe e +300 Oe.

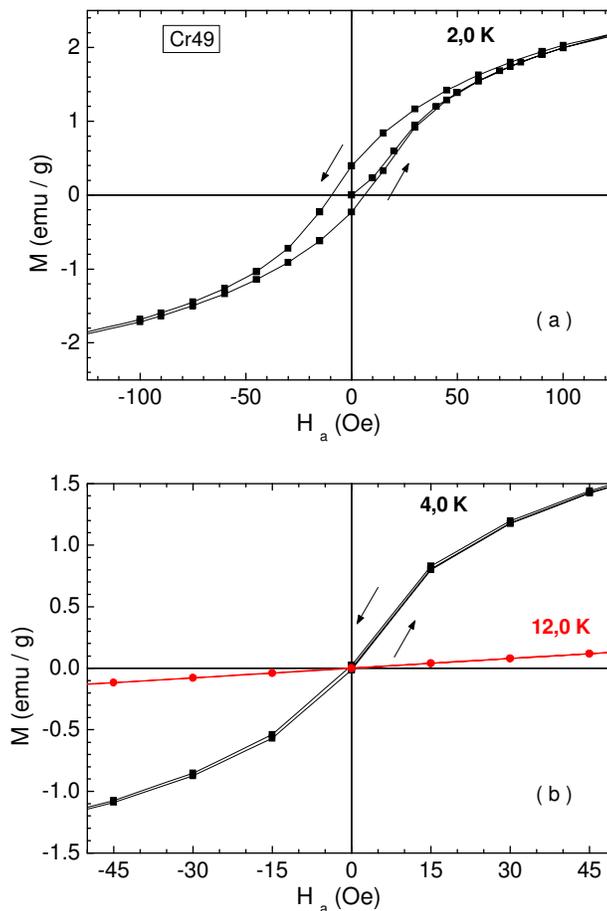


Figura 4.13: Ciclos para a liga Cr49. (a) Histerese na isoterma de 2,0 K, característico da fase reentrante. (b) Magnetização nas isotermas de 4,0 K, ordenamento ferromagnético, e de 12,0 K, fase paramagnética.

O painel (a) da figura 4.13 mostra a histerese em $T = 2,0$ K com magnetização remanente de 0,4 emu/g e campo coercivo de 7,9 Oe. No painel (b) são apresentados ciclos de magnetização em 4,0 K e 12,0 K. Nestas temperaturas, a liga encontra-se no regime de magnetização de equilíbrio, no qual o campo coercivo é aproximadamente nulo. Em 4,0 K o comportamento da magnetização não apresenta histerese e uma dependência típica de

materiais ferromagnéticos macios, enquanto que, no ciclo de 12,0 K, a magnetização é muito pequena e linear com H , conforme esperado para a fase paramagnética.

4.3.2.3 Análises com o Método de Arrot-Noakes

A equação de estado de Arrot-Noakes [33], considerando-se o escalonamento convencional, é escrita como

$$\left(\frac{H}{M}\right)^{1/\gamma} = \frac{T - T_C}{T_1} + \left(\frac{M}{M_1}\right)^{1/\beta}, \quad (2.16)$$

onde M_1 e T_1 são parâmetros fenomenológicos, característicos do sistema; T é a temperatura da isoterma; β e γ são os expoentes críticos para a magnetização e susceptibilidade, respectivamente, e T_C é a temperatura crítica.

Tomando-se os gráficos de $M^{1/\beta}$ em função de $(H/M)^{1/\gamma}$, com os expoentes adequadamente escolhidos, devem-se obter retas paralelas para as isotermas, de forma que a isoterma crítica, $T = T_C$, cruza a origem dos eixos.

A equação de estado de Arrot-Noakes supondo válido o escalonamento CHT nas proximidades da temperatura crítica, conforme é discutido na seção 2.2.4, do capítulo 2, deve ser escrita como

$$\left(\frac{H}{M}\right)^{1/\gamma} = a\tau + \frac{b}{T}M^{1/\beta}, \quad (2.21)$$

onde a e b são constantes características do material e $\tau = (T - T_C)/T$ é a temperatura reduzida CHT. As isotermas, neste caso, devem ser representadas na forma $(1/T)M^{1/\beta}$ em função de $(H/M)^{1/\gamma}$.

i) Amostra Cr46:

A figura 4.14 apresenta isotermas de A-N, considerando o escalonamento convencional, baseado na equação 2.16, no painel (a), e o escalonamento CHT, baseado na equação 2.21, no painel (b).

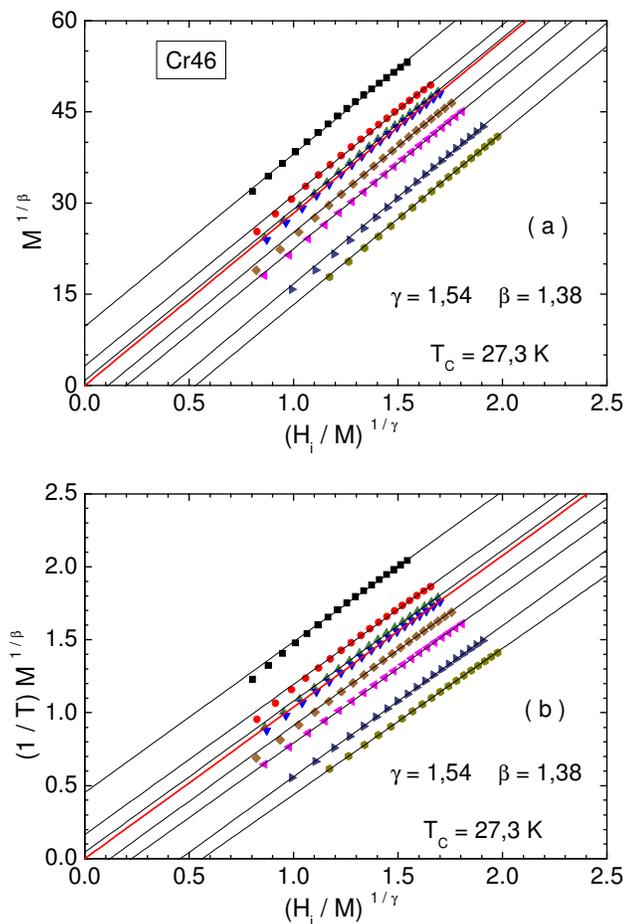


Figura 4.14: Análise de Arrot-Noakes para a liga Cr46. As temperaturas das isotermas estão entre 26,0 K e 29,0 K. (a) Análise baseada no escalonamento convencional, dado pela equação 2.16. (b) Análise baseada no escalonamento CHT, dado pela equação 2.21.

As temperaturas correspondentes às isotermas analisadas variaram de 26,0 K a 29,0 K, a cada 0,5 K. Em adição, foi medida uma isoterma em 27,3 K, que fornece T_c . O melhor valor encontrado para o expoente da magnetização, mantendo-se fixo $\gamma = 1,54$, obtido das análises K-F, foi $\beta = 1,38 \pm 0,04$. Trata-se de um valor relativamente alto, que reflete a natureza desordenada do estado tipo ferromagnético no Cr46.

Não se observa diferença significativa entre os gráficos A-N obtidos com base no escalonamento convencional (equação 2.16) ou com base no escalonamento CHT (equação 2.21).

ii) Amostra Cr49:

No caso da liga *Cr49*, foram realizadas as medidas de magnetização inicial em isotermas de 2,0 K a 12,0 K, espaçados a cada 0,5 K.

Como tentativa de análise A-N, foi realizado apenas o escalonamento convencional, pois, como visto na seção 4.3.2.1.b, o escalonamento CHT sugere que a transição é quântica neste sistema. Fixou-se então $\gamma = 1,50$ e $T_c = 5,0$ K tal como obtido no método K-F. O valor $\beta = 0,69 \pm 0,04$ mostrou melhor ajuste às isotermas no intervalo entre 4,0 K e 7,0 K. A figura 4.15 mostra as isotermas de A-N para as condições apresentadas. Devido a não linearidade das isotermas em baixos campos aplicados, foram considerados os campos de valor intermediário para a análise. O resultado desta análise deve ser encarado com cautela, uma vez que o valor de β destoa do observado para a liga *Cr46* e não há evidências sólidas de que uma transição termodinâmica ocorra nesta liga.

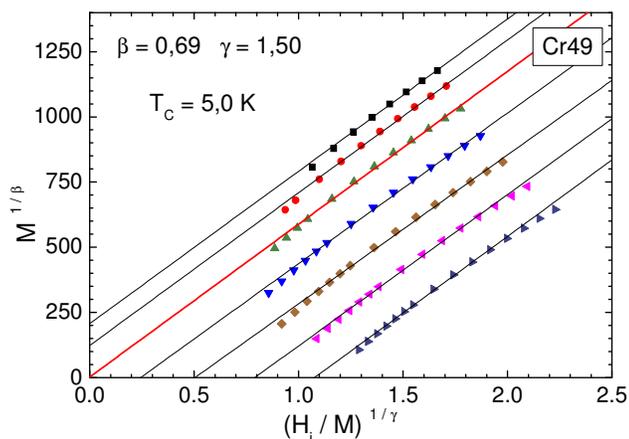


Figura 4.15: Análises de Arrot-Noakes para a liga *Cr49*, realizada com base no escalonamento convencional, dado pela equação 2.16. As temperaturas das isotermas estão entre 4,0 K e 7,0 K, espaçados de 0,5 K.

4.3.2.4 Isoterma Crítica

Conforme descrito no capítulo 2, o método da isoterma crítica permite a determinação do expoente δ e consiste unicamente na aplicação do logaritmo nos dois lados da equação 2.11, relativa à isoterma $T = T_c$.

$$M = aH^{1/\delta} \quad (\text{em } T = T_c), \quad (2.11)$$

onde a é uma constante característica do material e δ é um expoente crítico que se relaciona a β e γ segundo a relação de Widom, discutida no capítulo 2, e dada por:

$$\beta\delta = \gamma + \beta \quad (2.12a)$$

Utilizando os valores encontrados para β e γ por meio dos métodos antes apresentados e usando a relação de Widom (equação 2.12a) podemos estimar o expoente crítico δ , desde que a relação 2.12a seja aplicável aos sistemas estudados.

i) Amostra Cr46:

Aplicando-se o método à isoterma de 27,3 K para a liga Cr46, obtivemos um bom ajuste com uma reta. O ajuste linear dos pontos experimentais indica $\delta = 2,07 \pm 0,05$, conforme mostra a figura 4.16.

Conhecendo-se os valores $\beta = 1,38$ e $\gamma = 1,54$ e supondo válida a relação de Widom, estima-se $\delta = 2,12$. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente pelo método da isoterma crítica. Este resultado também indica que os valores de β e γ determinados de modo independente com os métodos K-F e A-N são fidedignos.

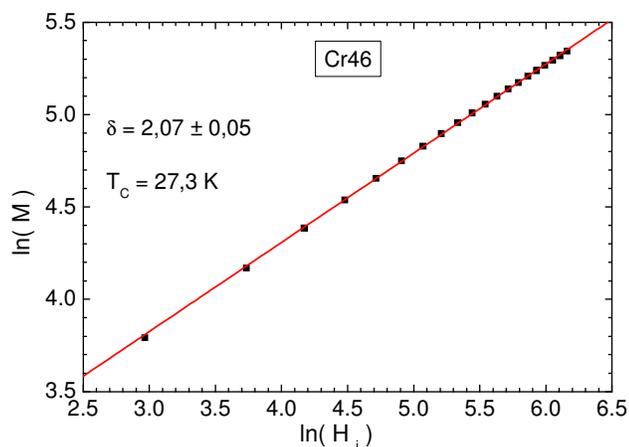


Figura 4.16: Aplicação do método da isoterma crítica para a liga Cr46. O ajuste linear indica $\delta = 2,07$ para a isoterma de 27,3 K.

ii) Amostra Cr49:

A figura 4.17 mostra o método da isoterma crítica para a liga Cr49 na isoterma de 5,0 K. O expoente crítico obtido a partir do ajuste linear nos pontos experimentais indica $\delta = 3,20 \pm 0,04$. Supondo válidos os valores $\beta = 0,69$ e $\gamma = 1,50$ e supondo que a relação de Widom (equação 2.12a) seja aplicável a estes resultados, estima-se $\delta = 3,17$. Novamente os resultados são consistentes. Entretanto a não linearidade em larga extensão da isoterma faz com que a descrição da fenomenologia crítica nesta liga seja sujeita a verificações suplementares.

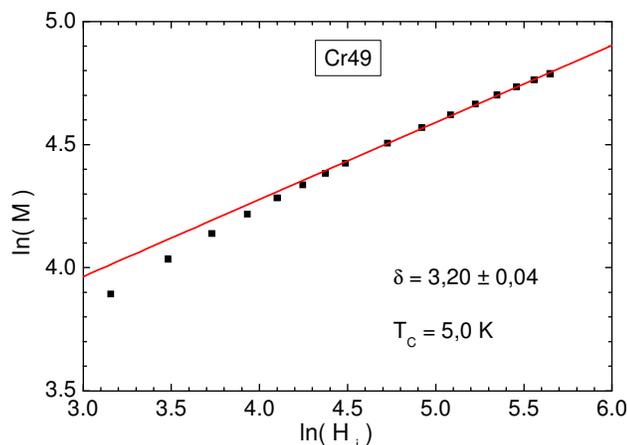


Figura 4.17: Método da isoterma crítica para a liga Cr49. O ajuste linear define $\delta = 3,20$ para a isoterma de 5,0 K.

4.3.2.5 Análises com o Método de Escala

O método de escala é fenomenológico, assim como o método A-N, e tem como base o fato de que a magnetização pode ser escrita em função da derivada da energia livre de Gibbs em relação ao campo magnético, conforme descrito no capítulo 2.

A análise se baseia na condição de que, escolhidos os parâmetros corretos, as isotermas abaixo de T_C colapsam em uma única curva e as isotermas acima de T_C colapsam em outra curva, com o encontro entre elas ocorrendo na isoterma crítica. A equação 4.2 mostra a relação de escala usada na aplicação do método [35], ou seja

$$\frac{M(H, t)}{t^\beta} = f\left(\frac{H}{|t|^{\beta\delta}}; \pm 1\right) , \quad (4.2)$$

onde $t = (T - T_C)/T_C$ é a temperatura reduzida; β e δ são os expoentes críticos e o termo $\pm l$ se refere ao limite de temperaturas acima e abaixo de T_C .

i) Amostra Cr46:

A figura 4.18 apresenta a aplicação do método para a liga Cr46. Os expoentes testados foram $\beta = 1,38$ e $\delta = 2,07$ e a temperatura crítica foi estabelecida em $T_C = 27,3$ K. As isotermas escolhidas estão entre 25,0 K e 29,0 K. O colapso dos dados em duas curvas que se encontram tangencialmente em $T = T_C$ é razoável.

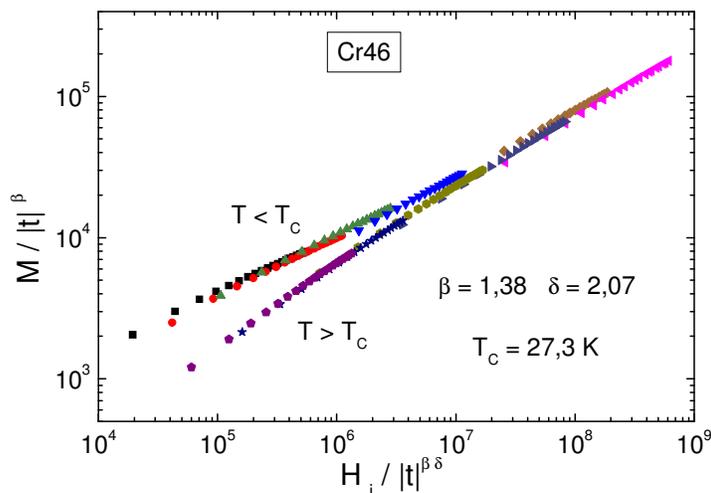


Figura 4.18: Método de Escala aplicado à liga Cr46 usando isotermas entre 25,0 K e 29,0 K e considerando os expoentes críticos $\beta = 1,38$ e $\delta = 2,07$ e a temperatura crítica $T_C = 27,3$ K.

O método de escala, tal como foi usado, tem a função de confirmar, ou não, os valores obtidos para os parâmetros críticos com as técnicas de análises empregadas anteriormente.

Dado o conjunto de análises, pode-se afirmar que, para a liga Cr46 estudada, os expoentes críticos estáticos são $\beta = 1,38 \pm 0,04$; $\gamma = 1,54 \pm 0,04$ e $\delta = 2,07 \pm 0,05$. A temperatura crítica desta liga é $T_C = 26,8 (\pm 0,5)$ K.

ii) Amostra Cr49:

A figura 4.19 apresenta as isotermas da liga Cr49 submetidas à análise pelo método de escala. O melhor resultado foi obtido quando os valores dos expoentes críticos foram considerados como $\beta = 0,69$ e $\delta = 3,17$ para a temperatura crítica de $T_C = 5,1$ K. As isotermas escolhidas estão entre 3,0 K e 8,0 K. Assim como no caso anterior, os pontos colapsam razoavelmente, corroborando os valores para os parâmetros críticos obtidos a partir da suposição de validade do escalonamento convencional. Neste caso, porém, resta alguma subjetividade em função da vizinhança, muito próxima, de um ponto crítico quântico.

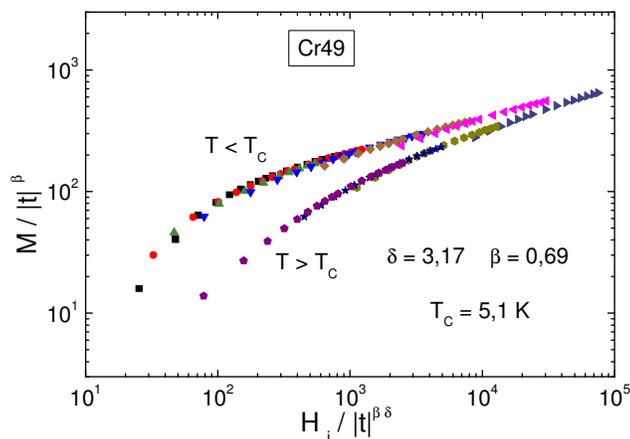


Figura 4.19: Método de Escala aplicado à liga Cr49 usando isotermas entre 3,0 K e 8,0 K e considerando os expoentes críticos $\beta = 0,69$ e $\delta = 3,17$ e a temperatura crítica $T_C = 5,1$ K.

Para a liga Cr49 estudada, os expoentes críticos estáticos são $\beta = 0,69 \pm 0,04$; $\gamma = 1,48 \pm 0,05$ e $\delta = 3,20 \pm 0,04$. A temperatura crítica desta liga é $T_C = 4,8 (\pm 0,3)$ K.

De modo geral, os valores encontrados para os expoentes críticos nas proximidades da transição ferromagnética das ligas estudadas colocam o sistema σ -FeCr na classe de universalidade dos materiais reentrantes [15].

4.4 O Sistema $\sigma\text{-Fe}_{0,52}\text{V}_{0,48}$

4.4.1 Medidas de Magnetização

Amostra V48:

A figura 4.20 apresenta as medidas de magnetização realizadas na liga V48. No painel (a), são apresentados alguns exemplos das medidas de magnetização em função da temperatura segundo os procedimentos ZFC e FC.

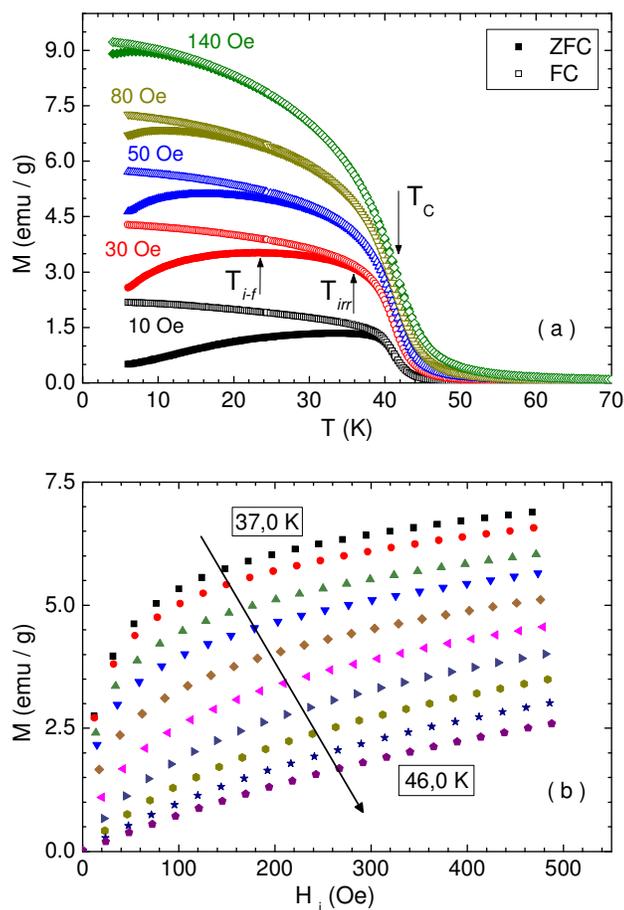


Figura 4.20: Medidas de magnetização para a amostra V48. (a) Curvas $M \times T$ para alguns campos magnéticos fixos. Os pontos cheios foram obtidos com o procedimento ZFC, enquanto que os vazados foram obtidos com o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ considerando isothermas entre 37,0 K e 46,0K, com intervalo de 1 K entre as isothermas.

Nota-se a redução da temperatura de irreversibilidade T_{irr} (ponto de separação das curvas ZFC e FC), e a diminuição do ponto de irreversibilidade forte $T_{i,f}$ com o aumento do campo magnético. Estes resultados são discutidos mais adiante. No painel (b) têm-se medidas de magnetização em função do campo magnético interno para isotermas entre 37,0 K e 46,0 K, medidas a cada 1,0 K. Tal como no sistema $\sigma\text{-FeCr}$, a magnetização em função do campo se torna mais linear, e de menor intensidade, à medida que se aumenta a temperatura. O campo interno H_i foi avaliado de acordo com a equação 4.1.

4.4.2 Análises

4.4.2.1 Análises com o Método de Kouvel-Fisher

Tal como discutido na seção 4.3.2.1, utilizamos o método K-F na obtenção do expoente crítico γ , com base na equação 2.14, para o escalonamento convencional e com base na equação 2.20, para o escalonamento CHT. Obteve-se ainda o expoente crítico β , com base na equação 2.15, que considera o escalonamento convencional.

4.4.2.1.a Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional

A figura 4.21 apresenta as medidas da susceptibilidade K-F, $Y(T)$, para os campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 160 Oe. Observa-se que $Y(T)$ depende fortemente e sistematicamente do campo aplicado. Somente na pequena região de temperatura entre 48 K e 51 K as medidas apresentam um padrão confiável para ajuste. Um ajuste global para esta região fornece $T_C = 41,9$ K e $\gamma = 1,26$. A temperatura crítica é consistente com o mínimo de $dM / dT \times T$, mostrado no detalhe da figura. Entretanto, a pequena região usada para ajuste não garante a confiabilidade dos parâmetros obtidos.

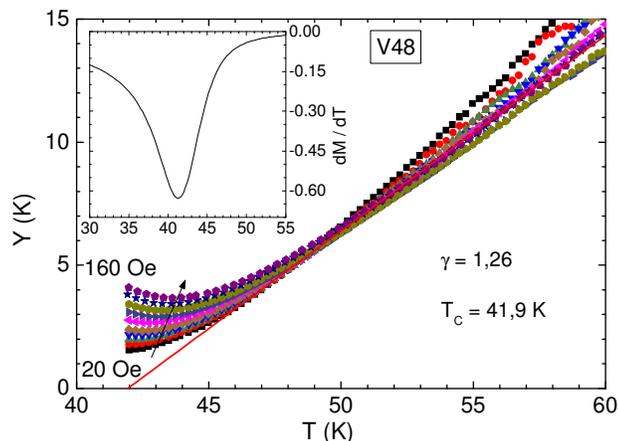


Figura 4.21: Susceptibilidade K - F em função da temperatura, obtida a partir da equação 2.14 para a liga V48 em vários campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 160 Oe. Os campos entre 20 Oe e 60 Oe estão espaçados de 10 Oe e, acima de 60 Oe, espaçados a cada 20 Oe. No detalhe é mostrado dM/dT em função de T para a medida de 80 Oe.

4.4.2.1.b Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT

A figura 4.22 apresenta a análise individualizada da função $W(T)$ (equação 2.20) para o campo magnético aplicado de 30 Oe. Os resultados permitem um ajuste linear entre $46 \text{ K} < T < 55 \text{ K}$. Este ajuste fornece os parâmetros $T_c = 41,3 \text{ K}$ e $\gamma = 1,62$. Fortes efeitos de não linearidade foram observados em campos aplicados acima de 50 Oe. Estes dados não foram considerados no cálculo dos valores médios, os quais são $\gamma = 1,61 \pm 0,05$ e $T_c = 41,9 (\pm 0,6) \text{ K}$. A extensão na região de ajuste, a temperatura crítica consistente com a derivada da magnetização, mostrada no detalhe da figura 4.21, e o expoente crítico compatível com o determinado para o sistema σ -FeCr e com o esperado para sistemas reentrantes [15], sugerem que estes valores são fidedignos e que o escalonamento CHT é mais adequado para descrever a fenomenologia crítica da liga V48.

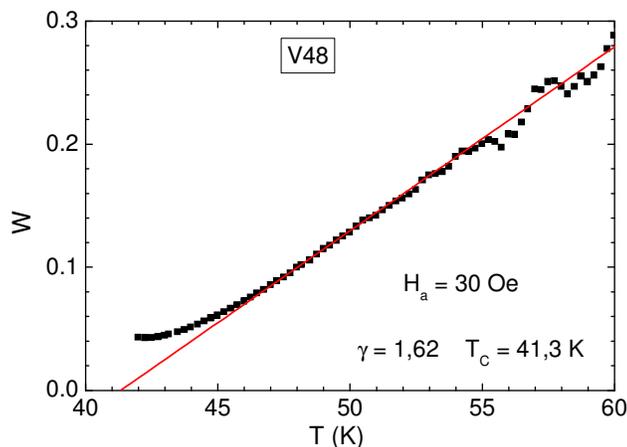


Figura 4.22: Análise de K-F usando o escalonamento CHT para a liga V48 no campo aplicado de 30 Oe. Os pontos foram determinados com o uso da equação 2.20. O comportamento linear da função $W(T)$ no regime de temperaturas entre 47 K e 54 K, indica $\gamma = 1,62$ e $T_C = 41,3$ K.

4.4.2.1.c Comparação entre os Escalonamentos

As análises apresentadas nas seções 4.4.2.1.a e 4.4.2.1.b indicam que tanto o escalonamento convencional quanto o CHT podem ser usados na determinação dos parâmetros críticos para a liga V48. Entretanto, o escalonamento CHT mostra-se mais confiável, sobretudo em razão da maior extensão da região de ajuste linear na função $W(T)$. Para comparar a aplicabilidade dos escalonamentos convencional e CHT na liga V48 e testar os valores obtidos para o expoente crítico γ , representamos as medidas de susceptibilidade na forma $\chi^{-1/\gamma}$ em função de T , para o escalonamento convencional (apresentada no painel (a) da figura 4.23), e $T\chi^{-1/\gamma}$ em função de T , para o escalonamento CHT, mostrada no painel (b) da mesma figura.

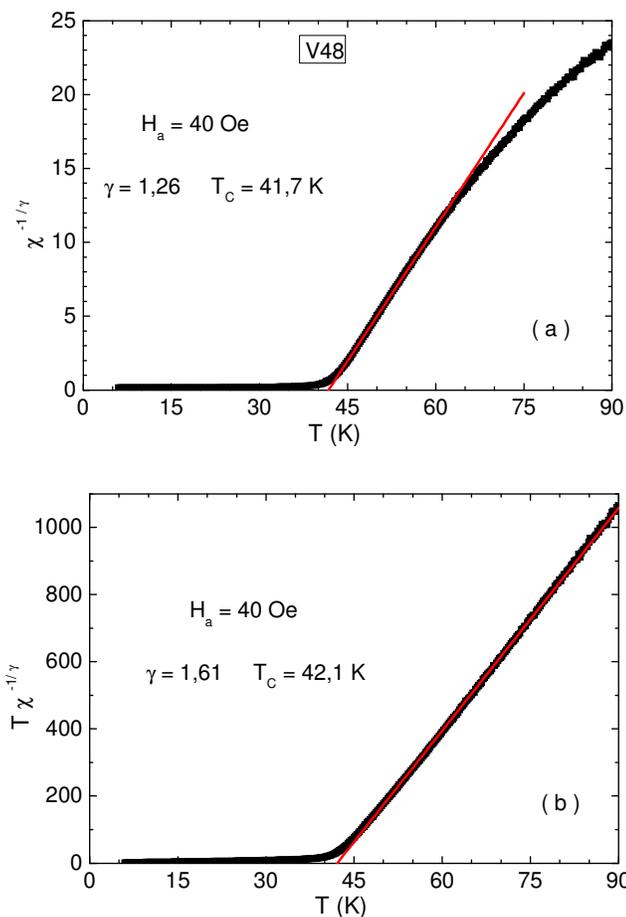


Figura 4.23: Comparação entre os escalonamentos convencional e CHT para a liga V48 no campo aplicado de 40 Oe. (a) Resultados com base no escalonamento convencional. (b) Resultados com base no escalonamento CHT.

O campo magnético aplicado, nas experiências mostradas na figura 4.23, é de 40 Oe. Os demais valores de campo (abaixo de $H = 50$ Oe) foram testados e, com exceção do caso $H = 10$ Oe, todos apresentaram resultados semelhantes. No painel (a) da figura 4.23, está mostrada a susceptibilidade com o escalonamento convencional, considerando $\gamma = 1,26$, tal como obtido com a análise K-F da seção 4.4.2.1.a. A reta ajusta-se no intervalo $45 \text{ K} < T < 60 \text{ K}$ e fornece $T_C \approx 42 \text{ K}$. No painel (b), correspondente ao escalonamento CHT, é obtido em ajuste linear num extenso intervalo de temperatura quando se considera $\gamma = 1,61$, tal como obtido da análise da figura 4.22, na seção 4.4.2.1.b. A temperatura crítica extrapolada é $T_C = 42,1 \text{ K}$. Os resultados da figura 4.23 indicam que o ajuste com o escalonamento CHT é de qualidade superior no V48, assim como ocorre para a liga Cr46. No

escalonamento CHT, a funcionalidade se mantém válida até temperaturas muito superiores a T_C , conforme a expectativa teórica [2]. Assim, o valor médio do expoente crítico a ser considerado é $\gamma = 1,61 \pm 0,05$.

4.4.2.1.d Magnetização no Escalonamento Convencional

A figura 4.24 apresenta resultados para a magnetização reduzida, $X(T)$, para a liga V48. Supõe-se o escalonamento convencional para a temperatura reduzida (equação 2.15). Os campos magnéticos aplicados variam entre 20 Oe e 160 Oe. Observa-se que $X(T)$ é fortemente dependente do campo aplicado em todo o intervalo de campos e temperaturas estudado. Este fato dificulta a realização de análises do tipo K-F, pois os parâmetros críticos tornam-se dependentes de H. Observa-se também que todas as curvas $X(T)$, determinados em todos os valores de H aplicados, interceptam-se na temperatura em torno de $T^* = 39$ K. Nesta temperatura específica, $X(T)$ é independente de H. A origem de tal comportamento não é conhecida. Um fenômeno semelhante, observado na magnetização dos cupratos supercondutores de alta temperatura crítica, é atribuído a um efeito de flutuações térmicas [58].

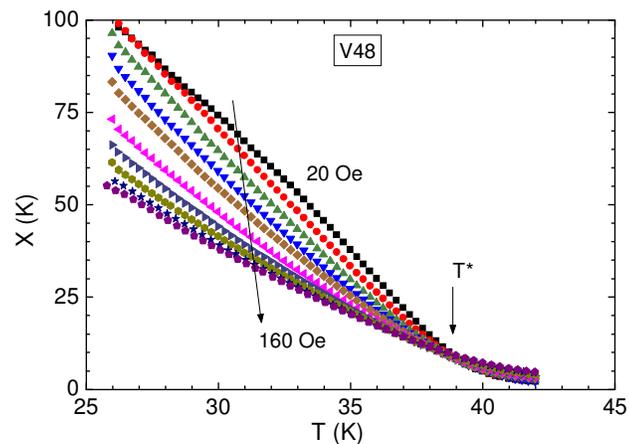


Figura 4.24: Análise da magnetização K-F com base na equação 2.12 para a liga V48. Considerando campos magnéticos aplicados entre 20 e 60 Oe, espaçados de 10 Oe, e entre 60 Oe e 160 Oe, espaçados de 20 Oe, aumentando conforme indica a seta. Todas as curvas $X(T)$ interceptam-se na temperatura $T^* = 38,7$ K.

4.4.2.2 Ciclos de Magnetização

De acordo com a figura 4.20a ($M \times T$), na temperatura de 34,0 K tem-se a fase ordenada, enquanto que em 50,0 K a liga encontra-se na fase paramagnética. Assim, ciclos de magnetização para a liga V48, foram medidos nas temperaturas mencionadas, em campos aplicados entre -500 Oe e +500 Oe. Os resultados são mostrados na figura 4.25. Medidas estendidas para campos mais altos indicam que a magnetização cresce monotonicamente sem demonstrar tendência à saturação. O resultado em $T = 50,0$ K mostra que M é pequeno e aumenta linearmente com o campo, tal como esperado para um sistema paramagnético em temperaturas afastadas de T_C . O resultado em $T = 34,0$ K mostra que M possui comportamento típico de um sistema ferromagnético.

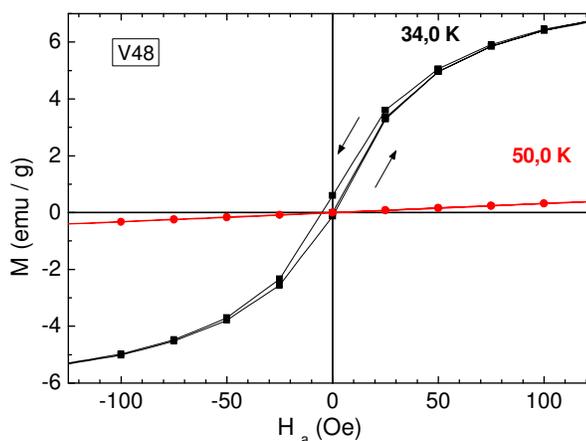


Figura 4.25: Ciclos de magnetização para a liga V48. Isotherma de 34,0 K, comportamento característico de ordenamento ferromagnético. Isotherma de 50,0 K mostrando os efeitos da fase paramagnética.

O ciclo medido em 34,0 K apresenta um campo coercivo de 3,0 Oe, com magnetização de saturação de 0,60 emu / g. A fraca irreversibilidade observada não invalida a análise de Arrot-Noakes realizada em temperaturas superiores a $T = 40$ K.

4.4.2.3 Análises com o Método de Arrot-Noakes

A figura 4.26 apresenta isothermas de A-N, supondo válido o escalonamento convencional. As temperaturas correspondentes às isothermas analisadas variaram de 40,5 K a

43,5 K, a cada 0,5 K. O melhor valor encontrado para o expoente da magnetização, mantendo-se fixo $\gamma = 1,56$ obtido das análises K-F, foi $\beta = 0,96 \pm 0,05$. Trata-se de um valor relativamente alto, que reflete a natureza desordenada do estado tipo ferromagnético na amostra V48. Este resultado é consistente com as observações na liga Cr46.

Não se observa diferença significativa entre os gráficos A-N obtidos com base no escalonamento convencional ou com base no escalonamento CHT, conforme mostram os painéis (a) e (b) da figura 4.26.

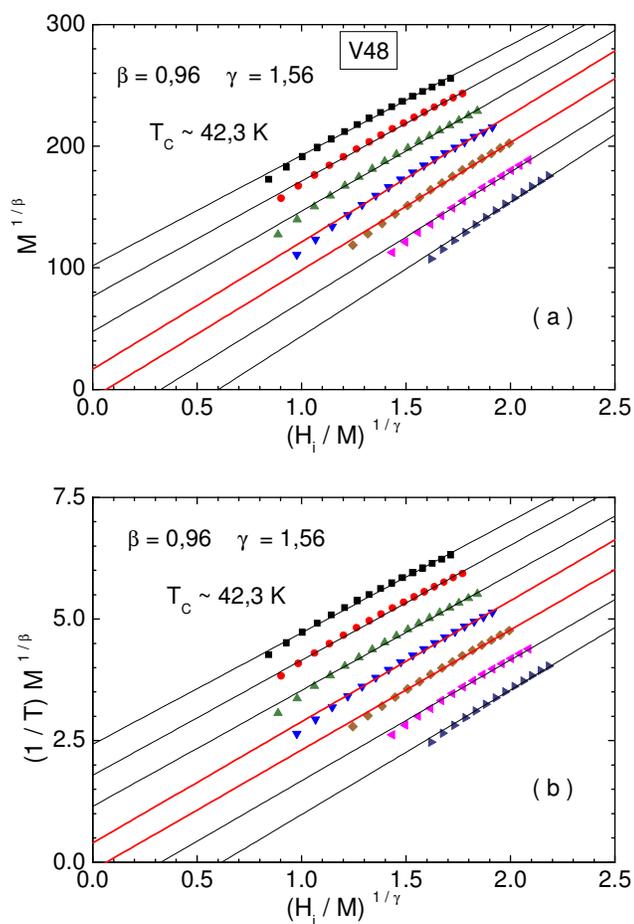


Figura 4.26: Análise de Arrot-Noakes para a liga V48. As temperaturas das isotermas variam entre 40,5 K e 43,5 K. A separação entre as isotermas é 0,5 K. (a) Análise baseada no escalonamento convencional, dado pela equação 2.16. (b) Análise baseada no escalonamento CHT, dado pela equação 2.21.

4.4.2.4 Isoterma Crítica

Aplicando-se o método da isoterma crítica na curva $M \times H$ medida em 42,0 K para a liga V48, obtivemos uma reta. O regime linear, no entanto, somente é válido para $H \geq 90$ Oe. O ajuste linear dos pontos experimentais fornece $\delta = 2,61 \pm 0,05$, conforme mostra a figura 4.27.

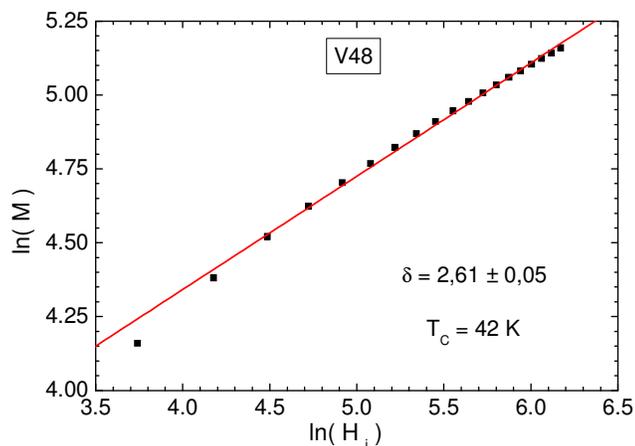


Figura 4.27: Aplicação do método da isoterma crítica para a liga V48. O ajuste linear indica $\delta = 2,61$ para a isoterma de 42,0 K.

Conhecendo-se os valores $\beta = 0,96$ e $\gamma = 1,56$ e supondo válida a relação de Widom, estima-se $\delta = 2,63$. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente pelo método da isoterma crítica. Este resultado também indica que os valores de β e γ determinados de modo independente com os métodos K-F e A-N são fidedignos.

4.4.2.5 Análises com o Método de Escala

A figura 4.28 apresenta a aplicação do método de escala para a liga V48. Os expoentes testados foram $\beta = 0,96$ e $\delta = 2,61$ e a temperatura crítica foi estabelecida em $T_C = 41,8$ K. As isotermas escolhidas estão entre 40,0 K e 44,0 K. O colapso dos dados em duas curvas que se encontram tangencialmente em $T = T_C$ é razoável.

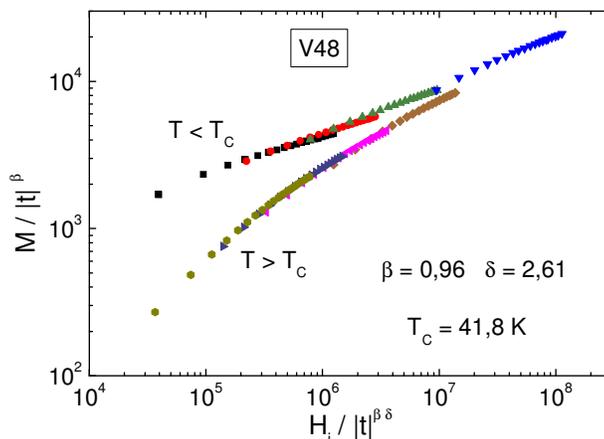


Figura 4.28: Método de Escala aplicado à liga V48 usando isotermas entre 40,0 K e 44,0 K e considerando os expoentes críticos $\beta = 0,96$ e $\delta = 2,61$ e a temperatura crítica $T_C = 41,8 \text{ K}$.

O método de escala, tal como foi usado, tem a função de verificar a consistência entre os valores obtidos para os parâmetros críticos com as técnicas de análises empregadas anteriormente.

Dado o conjunto de análises efetuado, pode-se afirmar que, para a liga V48 estudada, os expoentes críticos estáticos são $\beta = 0,96 \pm 0,05$; $\gamma = 1,61 \pm 0,05$ e $\delta = 2,61 \pm 0,05$. A temperatura crítica desta liga é $T_C = 41,9 (\pm 0,6) \text{ K}$. Desta forma, estes valores indicam que o sistema $\sigma\text{-FeV}$ encontra-se na classe de universalidade dos materiais reentrantes [15].

4.5 Diagrama de Fases H - T

Conhecidas as temperaturas características para cada liga estudada e, em especial as temperaturas da transição crítica para-ferromagnética, é pertinente apresentar o diagrama de fases magnético H – T para cada um destes sistemas. Os campos aplicados nas medidas de magnetização em função da temperatura permitem levantar as linhas que constroem o diagrama. As temperaturas de Curie ($T_C(H)$), foram obtidas pela análise de K-F, e assinalam a linha de transição para-ferromagnética. A linha de irreversibilidade ($T_{irr}(H)$) foi obtida a

partir dos pontos em que as curvas ZFC e FC se separam. Os máximos das curvas ZFC assinalam a linha de irreversibilidade forte, ($T_{i-f}(H)$). Na região de baixos campos, a linha de irreversibilidade pode ser ajustada à lei de potência

$$H \propto |T_{irr}(H) - T_{irr}(0)|^p, \quad (4.3)$$

que é comportamento característico dos sistemas vidro de spin.

i) Amostra Cr46:

Na figura 4.29 tem-se o diagrama de fases H - T para a liga Cr46. Um ajuste em baixos campos para $T_{irr}(H)$, com base na equação 4.3, obtém-se $T_{irr}(0) = 27,2$ K e o expoente $p = 0,5$. Este expoente é consistente com a previsão da teoria de campo médio para vidros de spin do tipo Heisenberg [23]. Enquanto que a temperatura $T_{irr}(0) \approx T_C(0)$.

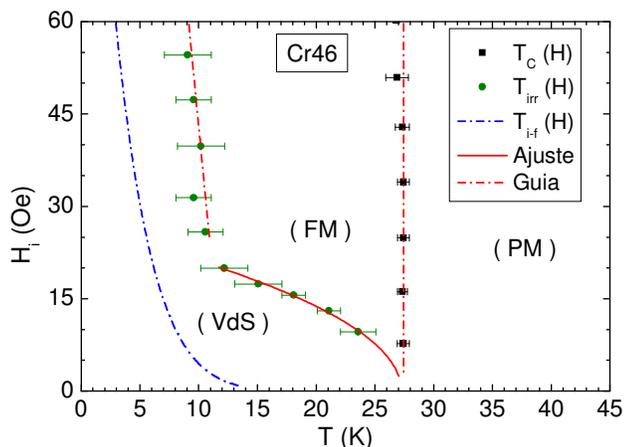
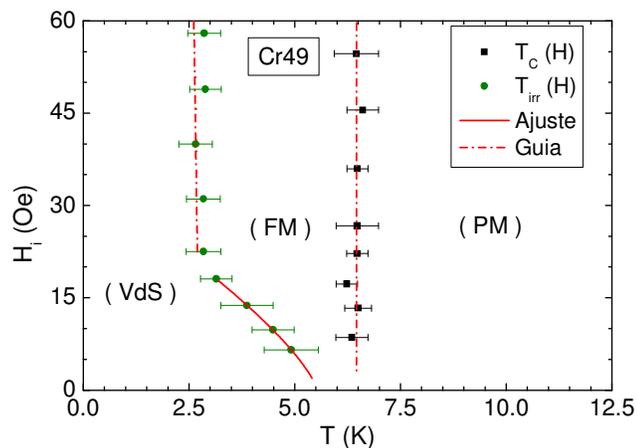


Figura 4.29: Diagrama H - T para a liga Cr46 mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de campos baixos da linha $T_{irr}(H)$ se ajusta à teoria de Gabay-Toulouse [23]. A linha de irreversibilidade forte indica um crossover para um comportamento na fase vidro de spin.

ii) Amostra Cr49:

A figura 4.30 apresenta o diagrama de fases H - T para a liga Cr49. O ajuste de $T_{irr}(H)$ com a equação 4.3, em baixos campos indica $T_{irr}(0) \approx T_C(0) = 5,5$ K e $p = 0,74$, que é um pouco superior à previsão de Gabay-Toulouse [23], $p = 0,5$, porém ainda qualitativamente

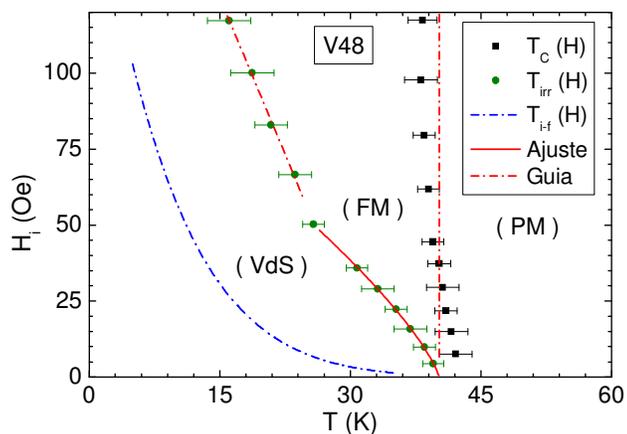
compatível com a teoria de campo médio para a transição dos sistemas vidro de spin. A linha de irreversibilidade forte se confunde com $T_{irr}(H)$ neste sistema.



Figuras 4.30: Diagrama $H - T$ para a liga Cr49 mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de baixos campos se ajusta à teoria de campo médio para a transição vidro de spin num sistema reentrante (ver texto).

iii) Amostra V48:

A figura 4.31 apresenta o diagrama de fases $H - T$ para a liga V48.



Figuras 4.31: Diagrama $H - T$ para a liga V48 mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de baixos campos se ajusta à teoria de campo médio para a transição vidro de spin num sistema reentrante (ver texto).

O ajuste de $T_{irr}(H)$ com a equação 4.3, em baixos campos, indica $T_{irr}(0) = 40,1$ K e $p = 0,76$, que é qualitativamente compatível com a previsão da teoria de campo médio para a transição vidro de spin dos sistemas reentrantes. Novamente nota-se que $T_{irr}(0) \approx T_C(0)$.

4.6 Comparação entre os parâmetros críticos nos sistemas σ -FeCr e σ -FeV

O estudo da fenomenologia crítica nas proximidades da transição para-ferromagnética nos sistemas reentrantes σ -FeCr e σ -FeV, por meio das análises K-F, A-N, Isoterma Crítica e Método de Escala, levaram à obtenção dos expoentes críticos estáticos β , γ e δ e das temperaturas críticas. Estes resultados estão ordenados na tabela 4.1.

Tabela 4.1: Parâmetros críticos para os sistemas reentrantes σ -FeCr e σ -FeV, com respectivas incertezas experimentais.

Liga	β	γ	δ	$T_C (K)$
σ -Fe _{0,54} Cr _{0,46}	$1,38 \pm 0,04$	$1,54 \pm 0,04$	$2,07 \pm 0,05$	$26,8 \pm 0,5$
σ -Fe _{0,51} Cr _{0,49}	$0,69 \pm 0,04$	$1,48 \pm 0,05$	$3,20 \pm 0,04$	$4,8 \pm 0,3$
σ -Fe _{0,52} V _{0,48}	$0,96 \pm 0,05$	$1,61 \pm 0,05$	$2,61 \pm 0,05$	$41,9 \pm 0,6$

Os valores do expoente crítico γ foram definidos por meio da análise K-F e são consistentes para as três ligas estudadas. A análise que se mostrou mais adequada para descrever o comportamento crítico da susceptibilidade na fase paramagnética foi aquela baseada no escalonamento CHT, no caso das ligas Cr46 e V48. A aplicação do escalonamento CHT para os resultados obtidos na liga Cr49, indica que a transição para-ferromagnética está no limite quântico neste caso.

Os valores obtidos para o expoente crítico β nas ligas Cr46 e V48 são próximos a aqueles que caracterizam uma transição vidro de spin. Na liga Cr49, β tem valor próximo, porém superior, à previsão da teoria de campo médio. A proximidade de uma transição

quântica pode ter influência no valor deste expoente. Em todas as ligas estudadas, a análise A-N mostrou-se bem sucedida para a determinação deste expoente.

Os valores do expoente crítico δ , determinado com base na isoterma crítica e na relação de Widom (equação 2.12a), e confirmado pelo método de escala, indicam que os sistemas σ -FeCr e σ -FeV pertencem à classe de universalidade dos materiais reentrantes [24]. Nas ligas Cr46 e V48, o comportamento crítico observado está mais próximo daquele que caracteriza uma transição vidro de spin canônica, do que o caso dos sistemas Au-Fe e Ni-Mn estudados por C. Haetinger e col. [15]. Os resultados aqui estudados, portanto, indicam que não há uma rigorosa universalidade na fenomenologia crítica da transição ferromagnética nos sistemas reentrantes.

5. FENOMENOLOGIA CRÍTICA NO SISTEMA Au-Fe

5.1 Introdução

Neste capítulo são apresentadas as medidas, as análises e as discussões pertinentes à fenomenologia crítica nas vizinhanças da transição para-ferromagnética do sistema Au-Fe. Os experimentos realizados são: magnetização em função da temperatura ($M \times T$) e magnetização em função do campo magnético aplicado ($M \times H$). Os métodos empregados nas análises são: Kouvel-Fisher (K-F), para $M \times T$, Arrot-Noakes (A-N) e Escala, para $M \times H$.

Inicialmente, são apresentados os difratogramas de Raios-X como validação da formação de fase única do sistema estudado. Na sequência, são apresentados os resultados obtidos para as ligas do sistema reentrante Au-Fe: *Fe13*, *Fe15*, *Fe18* e *Fe21*.

Ao final do capítulo, é apresentado o diagrama de fases magnéticas para cada uma das ligas estudadas e é feita uma comparação entre os expoentes críticos β , γ e δ determinados experimentalmente para a transição para-ferromagnética nestes sistemas.

5.2 O Sistema Au-Fe

5.2.1 Difractometria de Raios-X

As amostras, com concentrações de ferro distintas foram caracterizadas com a técnica de difração de Raios-X, no intuito de confirmar a formação estrutural desejada. A figura 5.1 mostra os difratogramas para as amostras estudadas. As linhas observadas são compatíveis com a estrutura cristalina cúbica de face centrada do ouro. A diluição de ferro provoca pequenas variações no parâmetro de rede, e assim observa-se o deslocamento dos picos para a direita com o aumento da concentração de Fe. O difratograma da liga *Fe15* foi deslocado verticalmente em 25 unidades, enquanto que os difratogramas para as ligas *Fe18* e *Fe21*, em 50 e 75 unidades, respectivamente, com o intuito de se obter melhor visualização dos picos. A indexação dos picos observados está explícita na figura. A tabela 5.1 lista o parâmetro de rede para as ligas estudadas, determinados pelo método de Rietveld, a partir dos difratogramas da figura 5.1.

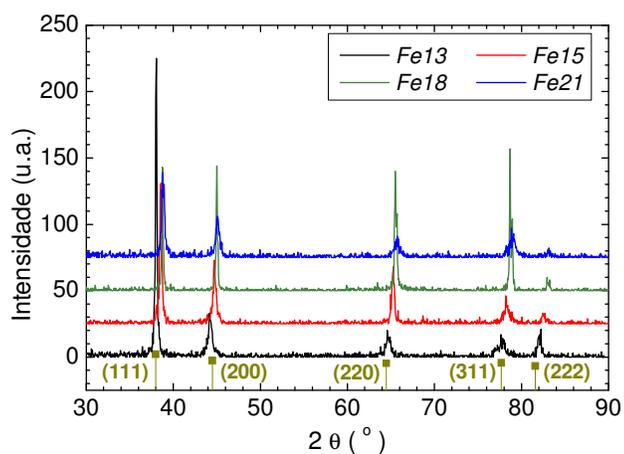


Figura 5.1: Difractograma de Raios-X nas amostras estudadas no sistema Au-Fe, confirmando a formação de fase única cúbica de face centrada. As ligas *Fe15*, *Fe18* e *Fe21* tiveram suas intensidades somadas em 25, 50 e 75 unidades, respectivamente, para fins de melhor visualização.

Tabela 5.1: Parâmetro de rede cúbica de face centrada das ligas Au-Fe estudadas.

Concentração at% Fe	0	13,5	15	18	21
Parâmetro $a = b = c$ (Å)	4,0786	4,0540	4,0489	4,0312	4,0201

5.2.2 Resultados de Magnetização

i) Amostra Fe13:

A figura 5.2 mostra alguns dos resultados experimentais obtidos para a liga *Fe13*. No painel (a) têm-se resultados de $M \times T$ seguindo-se os procedimentos ZFC e FC. O forte decréscimo da magnetização ZFC, para os vários campos aplicados, na região de baixas temperaturas, indica o comportamento vidro de spin. O fato das curvas de magnetização ZFC possuírem valores negativos, em baixas temperaturas, está associado ao campo remanente da bobina supercondutora do magnetômetro, não possuindo nenhum tipo de relação com o comportamento intrínseco da amostra. A temperatura de irreversibilidade (T_{irr}), que denota o ponto de separação das curvas ZFC e FC, apresenta diminuição significativa com o aumento do campo, enquanto que a temperatura crítica (T_C) permanece constante. Assim como ocorre na liga *Cr49*, o ponto de irreversibilidade forte ($T_{i,f}$) não é observado, sugerindo que o comportamento magnético da amostra, em baixas temperaturas, aproxima-se de um vidro de spin puro. No painel (b) estão mostradas medidas de $M \times H_i$, segundo isotermas entre 65,0 K e 90,0 K, espaçadas a cada 3,0 K. À medida que se aumenta a temperatura, a magnetização se torna mais linear com o campo e possui menor intensidade. O campo interno H_i , nesta e nas demais medidas, foi avaliado de acordo com a equação 4.1.

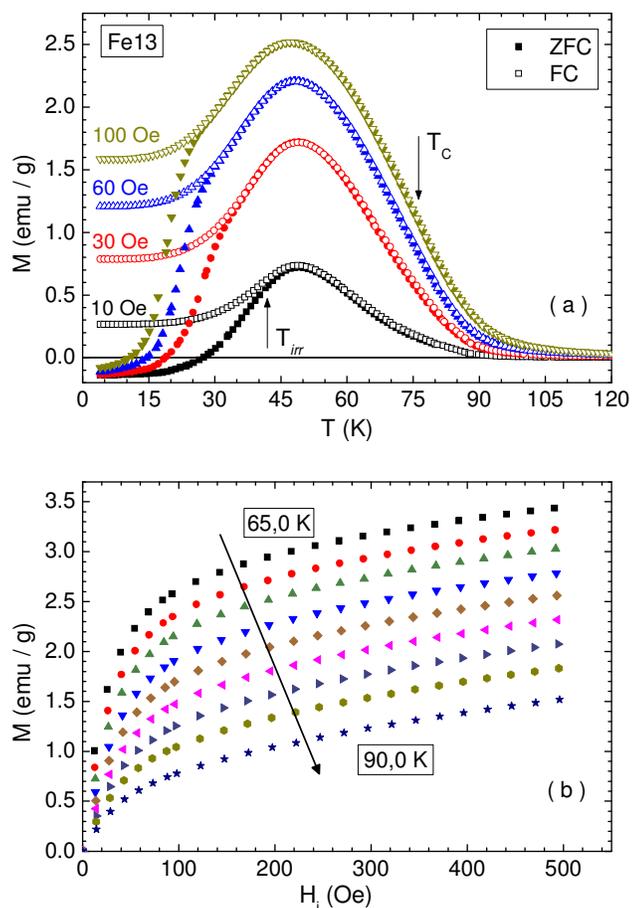


Figura 5.2: (a) Curvas $M \times T$ para a liga Fe13 em alguns campos magnéticos fixos. Os pontos cheios foram obtidos com o procedimento ZFC, enquanto que os vazados foram obtidos com o procedimento FC. Os valores negativos da magnetização ZFC em baixas temperaturas devem-se ao campo remanente da bobina supercondutora do magnetômetro. (b) Curvas de $M \times H$ para a liga Fe13, considerando isotermas entre 65,0 K e 90,0 K, com intervalos de 3 K entre as isotermas.

ii) Amostra Fe15:

A figura 5.3 apresenta os resultados de magnetização para a liga Fe15. O painel (a) apresenta alguns dos resultados de $M \times T$ medidos em campos magnéticos aplicados fixos. Os pontos cheios representam o procedimento ZFC, enquanto que os vazados, o procedimento FC. De forma semelhante que para a liga Fe13, nota-se a forte diminuição da magnetização ZFC em baixas temperaturas. O aumento do campo magnético aplicado provoca forte diminuição da temperatura de irreversibilidade (T_{irr}). A temperatura crítica (T_c) não varia com

o campo e o ponto de irreversibilidade forte (T_{i-f}) não é observado. No painel (b) são apresentadas algumas medidas de $M \times H_i$, considerando isothermas entre 85,0 K e 110,0 K, realizadas em intervalos de 2,0 K ou 3,0 K.

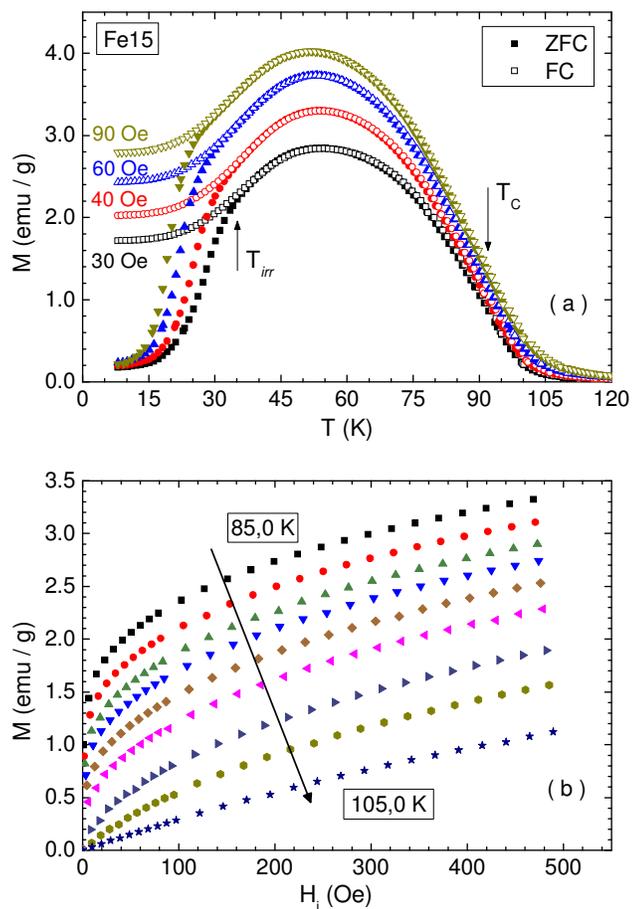


Figura 5.3: (a) Curvas de $M \times T$ para a liga Fe15 em alguns campos magnéticos aplicados. Os pontos cheios denotam o procedimento ZFC, enquanto que os vazados, o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ para a liga Fe15. As medidas são realizadas em temperaturas fixas entre 85,0 K e 105,0 K, com intervalos variados de 2 K ou 3 K entre as isothermas.

iii) Amostra Fe18:

A figura 5.4 apresenta as medidas de magnetização para a liga Fe18. O painel (a) apresenta medidas representativas de $M \times T$ em campos magnéticos aplicados fixos. O

aumento do campo aplicado provoca a diminuição da temperatura de irreversibilidade, T_{irr} . A temperatura de Curie, T_C , não varia com H . No painel (b) são apresentadas algumas medidas de $M \times H_i$, segundo isothermas entre 145 K e 161 K, realizadas em intervalos de 2 K.

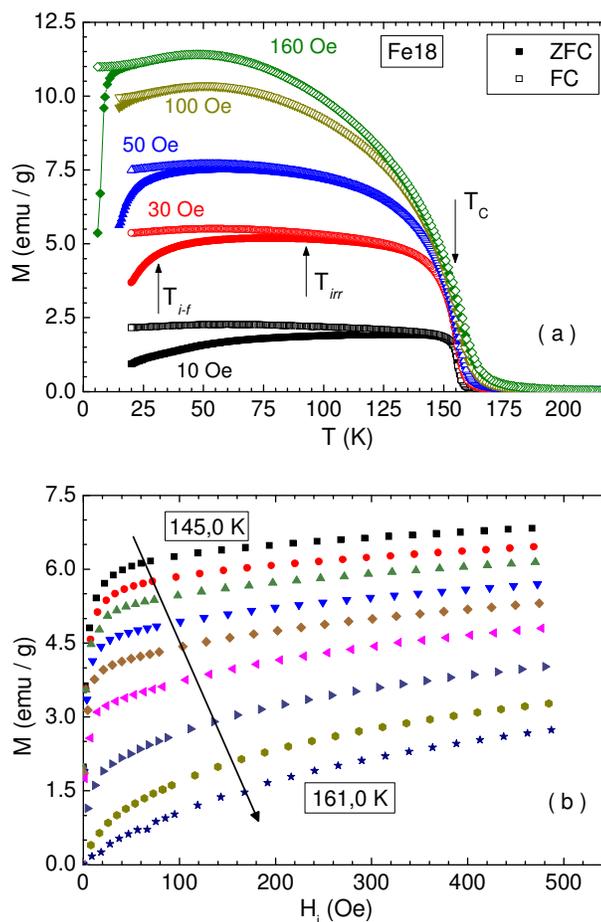


Figura 5.4: (a) Curvas de $M \times T$ para a liga Fe18 em alguns campos magnéticos aplicados. Os pontos cheios denotam o procedimento ZFC, enquanto que os vazados, o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ para a liga Fe18, medidas em temperaturas fixas entre 145,0 K e 161,0 K, com intervalo de 2 K entre as isothermas.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.5 apresenta as medidas de magnetização para a liga Fe21. O painel (a) da figura 5.5 apresenta algumas das medidas de $M \times T$ em campos magnéticos aplicados fixos. A sistemática na redução das temperaturas de irreversibilidade (T_{irr}) e irreversibilidade forte

(T_{i-f}) , com o aumento do campo aplicado é observada. A temperatura crítica (T_C) não varia significativamente com a intensidade do campo aplicado. No painel (b) são apresentadas algumas medidas de $M \times H_i$, considerando isotermas entre 192,0 K e 208,0 K, realizadas em intervalos de 2,0 K.

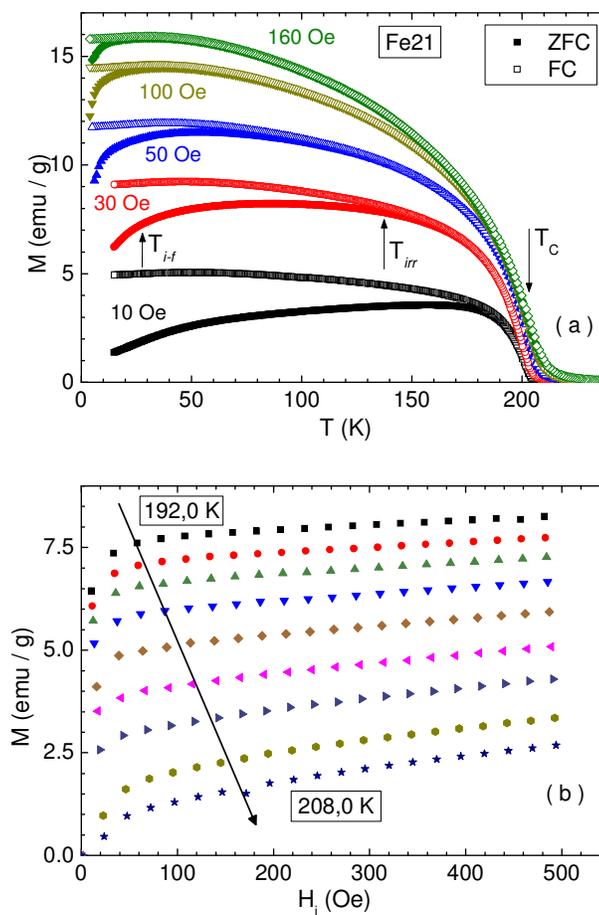


Figura 5.5: (a) Curvas de $M \times T$ para a liga Fe21 em alguns campos magnéticos aplicados. Os pontos cheios mostram o procedimento ZFC, enquanto que os vazados representam o procedimento FC. (b) Curvas de $M \times H$ para a liga Fe21, medidas em temperaturas fixas entre 192,0 K e 208,0 K, com intervalo de 2 K entre as isotermas.

5.2.2 Análises

5.2.2.1 Análises com o Método de Kouvel-Fisher

Conforme discutido no capítulo 2 e aplicado nas seções 4.3.2.1 e 4.4.2.1, o método K-F é utilizado na obtenção do expoente crítico γ por meio da equação 2.14, no escalonamento convencional, e por meio da equação 2.20, no escalonamento CHT. O método é utilizado, ainda, na obtenção do expoente crítico β de acordo com a equação 2.15, considerando-se apenas o escalonamento convencional.

5.2.2.1.a Susceptibilidade DC no Escalonamento Convencional

Seguem-se as análises da susceptibilidade DC com base no escalonamento convencional para o sistema Au-Fe.

i) Amostra Fe13:

A figura 5.6 apresenta a susceptibilidade K-F em função da temperatura para campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 100 Oe.

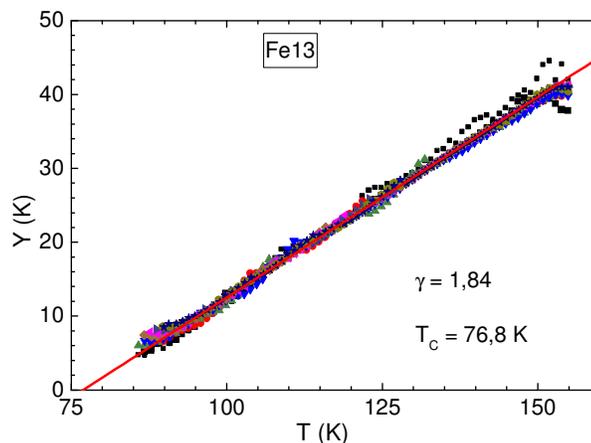


Figura 5.6: Susceptibilidade K-F em função da temperatura, obtida a partir da equação 2.14 para a liga Fe13 em vários campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 100 Oe. O intervalo de variação do campo é de 10 Oe.

Um ajuste global pode ser realizado na extensa região de temperatura entre 95 K e 150 K, tal como mostrado na figura 5.6. Obtém-se $T_C = 76,8 (\pm 0,9)$ K e $\gamma = 1,84 \pm 0,05$ para os parâmetros críticos médios no escalonamento convencional. Diferentemente do observado nos sistemas σ -FeCr e σ -FeV, o escalonamento convencional permite boa descrição da fenomenologia crítica nesta liga.

ii) Amostra Fe15:

A figura 5.7 apresenta a susceptibilidade K-F obtida em diversos campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 90 Oe. Os resultados obtidos nos diferentes campos se sobrepõem razoavelmente, mostrando que os efeitos não lineares na susceptibilidade são pequenos.

As curvas $Y(T)$ mostram extensa linearidade em função da temperatura, com boa sobreposição entre os vários campos aplicados. Análises individualizadas dos campos aplicados foram realizadas e, conforme mostra o comportamento apresentado na figura 5.7, foi possível estabelecer os valores médios $T_C = 92,1 (\pm 0,4)$ K e $\gamma = 1,81 \pm 0,02$. A reta correspondente a este ajuste está mostrada na figura 5.7. O valor de T_C está em razoável acordo com a expectativa baseada nos resultados de magnetização mostrados na figura 5.3a.

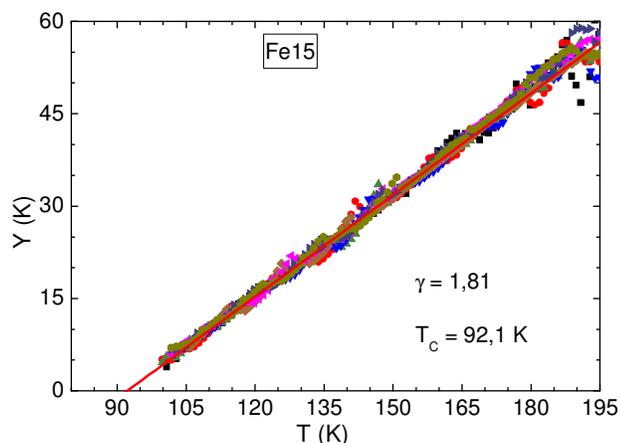


Figura 5.7: Susceptibilidade K-F para a liga Fe15 em campos magnéticos aplicados entre 20 Oe e 90 Oe. Os parâmetros críticos estão denotados na figura.

iii) Amostra Fe18:

A figura 5.8 apresenta a susceptibilidade K-F obtida em diversos campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 200 Oe. Ocorre notável sobreposição dos vários campos aplicados, mostrando que os efeitos não lineares na susceptibilidade são desprezíveis neste caso.

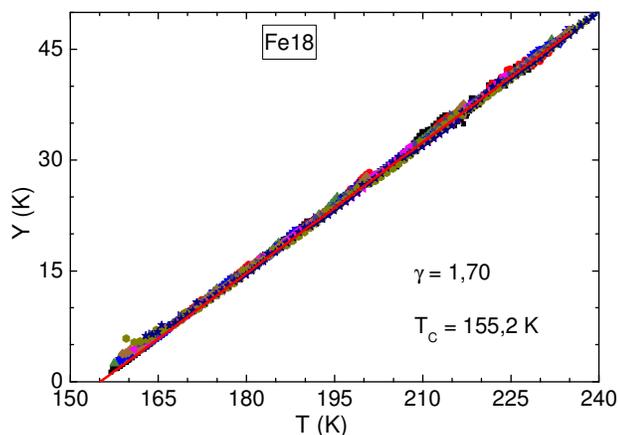


Figura 5.8: Susceptibilidade K-F para a liga Fe18 em campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 200 Oe. Os parâmetros críticos obtidos estão assinalados.

A extensa linearidade em $Y(T)$ permite uma análise global satisfatória dos resultados. Análises individualizadas nos campos aplicados considerados permitem a estimativa dos valores médios dos parâmetros críticos $T_C = 155,2 (\pm 0,7)$ K e $\gamma = 1,70 \pm 0,03$. A temperatura crítica está em acordo com o observado nas curvas de magnetização da figura 5.4a, assim como o expoente crítico está em acordo com valores anteriormente obtidos para os sistemas reentrantes [24].

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.9 mostra a susceptibilidade K-F obtida em diversos campos magnéticos aplicados entre 80 Oe e 200 Oe. Nesta liga também ocorre razoável sobreposição das medidas efetuadas em diferentes campos aplicados. Entretanto, o intervalo de temperaturas que possui boa linearidade para ajuste é consideravelmente menor, sendo que efeitos não lineares são observados nas vizinhanças de T_C e na região de altas temperaturas. Para a região de temperaturas entre 220 K e 255 K, os ajustes individualizados dos campos aplicados

considerados, permitiram determinar os valores médios dos parâmetros críticos $T_C = 203,6 (\pm 0,4)$ K e $\gamma = 1,50 \pm 0,03$. O expoente crítico possui valor abaixo do esperado para os sistemas reentrantes [15], o que pode indicar que o comportamento magnético deste sistema se aproxima daquele de um ferromagneto clássico.

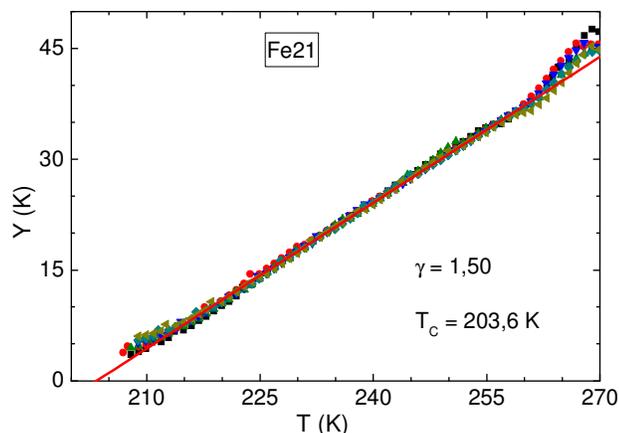


Figura 5.9: Susceptibilidade K-F para a liga Fe21 em campos magnéticos aplicados entre 80 Oe e 200 Oe.

5.2.2.1.b Susceptibilidade DC e o Escalonamento CHT

A figura 5.10 apresenta a função $W(T)$ que supõe o escalonamento CHT (equação 2.20) em diversos campos magnéticos aplicados, para todas as ligas do sistema $Au-Fe$ investigadas. Nota-se claramente nos diversos painéis da figura, que a descrição da susceptibilidade com o escalonamento CHT não tem a qualidade e reprodutibilidade propiciada pelo escalonamento convencional. A extensão dos regimes lineares é muito menor e os valores obtidos para os parâmetros críticos, e ainda, expoente crítico e temperatura de Curie, não apresentam sistemática. Os ajustes realizados e os parâmetros obtidos estão indicados nas figuras. A análise mostra que o escalonamento convencional é superior ao escalonamento CHT no caso das ligas Fe13, Fe15 e Fe18. Apenas no caso da liga Fe21, o escalonamento CHT reproduz resultados de qualidade similar aos obtidos com o escalonamento convencional. Neste último caso, o expoente crítico γ obtido tem valor consistente com a expectativa para os sistemas reentrantes, porém a região de linearidade para a função W é inferior àquele observado para a função Y na figura 5.9.

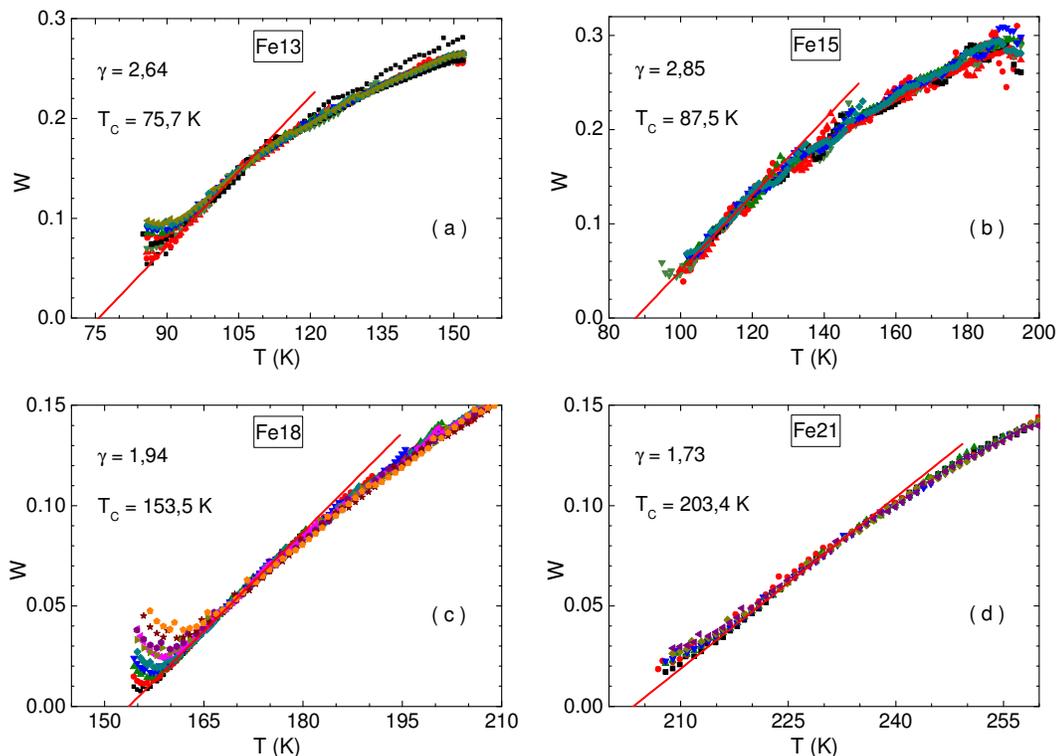


Figura 5.10: Análise K-F com base no escalonamento CHT. (a) Liga Fe13 nos campos magnéticos aplicados entre 10 Oe e 100 Oe. O ajuste global para a função $W(T)$ no regime de temperaturas entre 95 K e 110 K indica $\gamma = 2,64$ e $T_C = 75,7$ K. (b) Liga Fe15 nos campos aplicados entre 20 Oe e 90 Oe. O ajuste linear indica $\gamma = 2,85$ e $T_C = 87,5$ K. (c) Liga Fe18 para campos aplicados entre 10 Oe e 200 Oe. O ajuste linear global indica $\gamma = 1,94$ e $T_C = 153,5$ K. (d) Liga Fe21 nos campos aplicados entre 50 Oe e 200 Oe. O ajuste linear global indica $\gamma = 1,73$ e $T_C = 203,4$ K.

Os resultados da figura 5.10 contrastam com os casos dos sistemas σ -FeCr e σ -FeV, discutidos no capítulo anterior, para os quais o escalonamento CHT produz uma melhor descrição do comportamento crítico em T_C .

5.2.2.1.c Magnetização no Escalonamento Convencional

As análises da magnetização reduzida, $X(T)$, são baseadas na equação 2.15, supondo-se válido o escalonamento convencional para a temperatura reduzida. Para a realização desta

análise optou-se por fixar o valor de T_C segundo as determinações feitas com as análises do comportamento crítico na fase paramagnética, apresentados na seção 5.2.2.1.a.

i) Amostras Fe13, Fe15 e Fe18:

As figuras 5.11, 5.12 e 5.13 apresentam os resultados de magnetização reduzida, $X(T)$, para as ligas Fe13, Fe15 e Fe18, respectivamente.

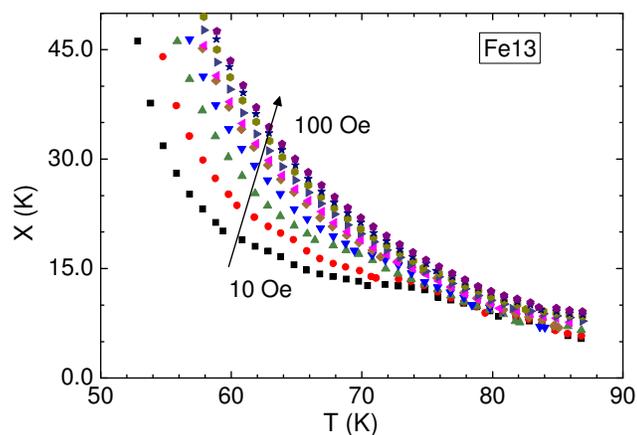


Figura 5.11: Magnetização K-F com base na equação 2.15 para a liga Fe13, considerando campos magnéticos aplicados entre 10 e 100 Oe, espaçados de 10 Oe, com aumento do campo indicado pela seta.

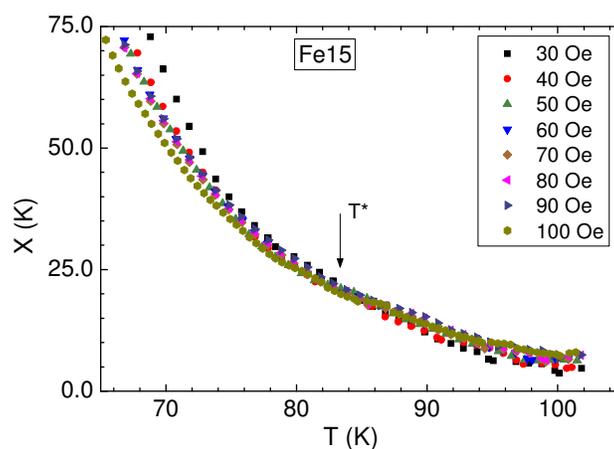


Figura 5.12: Aplicação da equação 2.15 para as medidas de magnetização na liga Fe15, considerando os campos aplicados entre 30 Oe e 100 Oe. As curvas interceptam-se na temperatura $T^* = 83,3$ K.

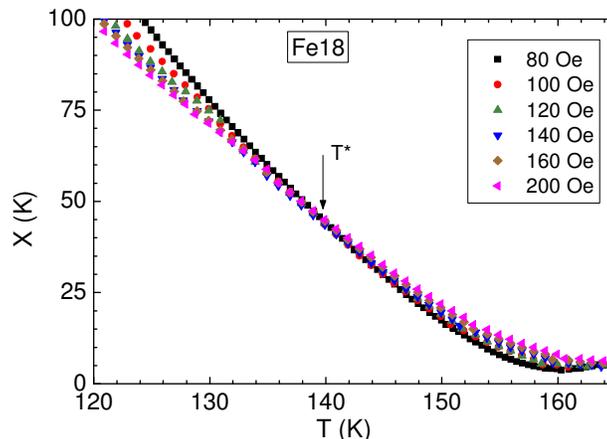


Figura 5.13: Análise da magnetização K-F usando o escalonamento convencional para a liga Fe18 nos campos aplicados entre 80 Oe e 200 Oe. As curvas interceptam-se na temperatura $T^* = 140$ K.

As medidas são feitas em diferentes campos magnéticos aplicados e revelam a presença de fortes efeitos não lineares em toda a região de temperaturas inferiores a T_C . Portanto, a análise K-F somente seria possível se um método confiável de obtenção da magnetização de saturação no limite $H \rightarrow 0$ puder ser aplicado aos resultados obtidos em campo finito. No caso das ligas Fe15 e Fe18, observa-se o cruzamento de todas as curvas de magnetização numa única temperatura T^* . A origem deste efeito não é conhecida.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.14 mostra a magnetização K-F para a liga Fe21, nos campos aplicados entre 80 Oe e 200 Oe. Na figura, as curvas $X(T)$ apresentam sobreposição apenas em temperaturas acima de 174 K. Assim, apesar da linearidade observada abaixo de 170 K, a variação sistemática das curvas, impossibilita uma análise confiável nesta região.

Na figura 5.15 tem-se a análise individualizada para o campo aplicado de 100 Oe. A linearidade observada na susceptibilidade e na magnetização K-F, permite ajustes que extrapolam para a temperatura crítica $T_C = 204,1$ K. O expoente crítico da magnetização é $\beta = 0,45$. Este resultado é aproximadamente reproduzido nas medidas obtidas nos demais campos magnéticos considerados, de modo que os valores médios calculados são $\beta = 0,47 \pm 0,03$ e $T_C = 204,5 (\pm 0,7)$ K. Este resultado parece satisfatório para a definição do expoente crítico β para esta liga. Entretanto, utilizamos métodos auxiliares, mostrados a

seguir, no intuito de confirmar os parâmetros críticos obtidos da análise K-F aplicado a este sistema.

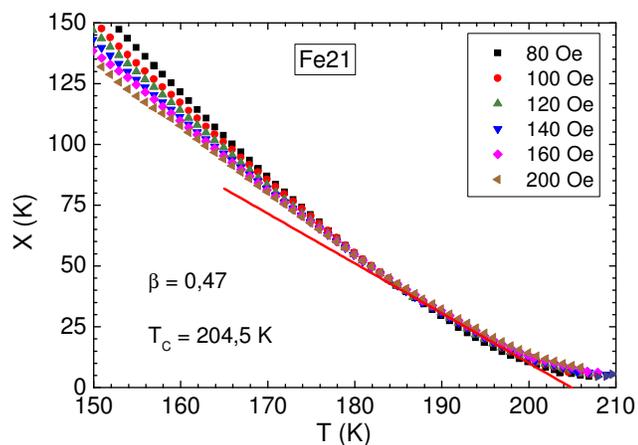


Figura 5.14: Aplicação da equação 2.12 para as medidas de magnetização na liga Fe21, considerando os campos aplicados entre 80 Oe e 200 Oe. O ajuste global indica $\beta = 0,47 \pm 0,03$ e $T_c = 204,5 (\pm 0,7)$ K.

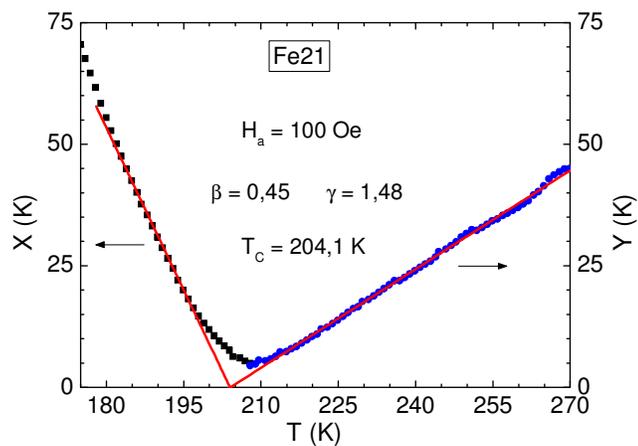


Figura 5.15: Análise da magnetização K-F usando o escalonamento convencional para a liga Fe21 no campo aplicado de 100 Oe. Detalhes no texto.

5.2.2.2 Ciclos de Magnetização

i) Amostra Fe13:

A figura 5.2a ($M \times T$) sugere que esta amostra se encontra na fase vidro de spin na temperatura de 20 K, e na fase tipo ferromagnética em 64 K. Em 105 K, a liga se encontra na fase paramagnética. Assim, ciclos de magnetização para a liga Fe13 foram realizados nas temperaturas mencionadas, em campos aplicados entre -500 Oe e +500 Oe. Os resultados são mostrados na figura 5.16.

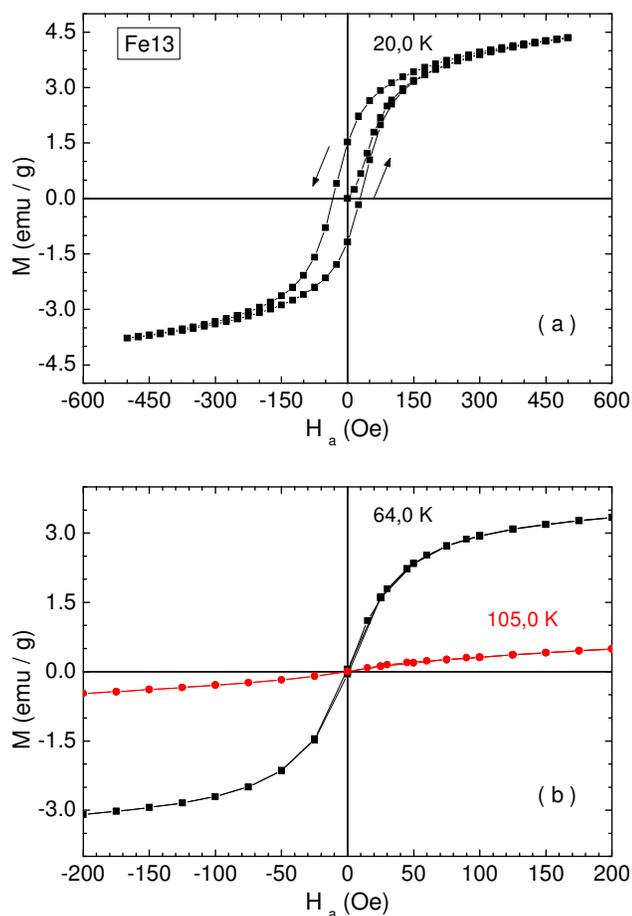


Figura 5.16: Liga Fe13. (a) Ciclo de histerese na temperatura de 20 K característico da fase reentrante tipo vidro de spin. (b) Ciclos de magnetização na temperatura de 64 K, sugerindo ordenamento ferromagnético e em 105 K típico da fase paramagnética.

Nesta faixa de campos aplicados a magnetização cresce monotonicamente sem demonstrar tendência à saturação. Este efeito é característico dos sistemas reentrantes. O resultado na temperatura de 105 K mostra que a magnetização é pequena e aumenta linearmente com o campo, tal como o esperado para a fase paramagnética, em temperaturas afastadas de T_C . O resultado em 64 K apresenta a magnetização típica da fase ferromagnética, porém, não se observa histerese devido a proximidade com a temperatura de transição crítica. Na temperatura de 20 K (mostrada no painel (a)), a amostra apresenta um ciclo de histerese com campo coercivo de $H_C = 31$ Oe e magnetização remanente de $M_R = 1,53$ emu/g.

O comportamento totalmente reversível da magnetização em temperaturas próximas a $T_C \approx 77$ K valida a análise de Arrot-Noakes, apresentada mais adiante.

ii) Amostra Fe15:

A figura 5.17 apresenta ciclos de magnetização para a liga Fe15, medidos nas temperaturas de 20 K, 80 K e 115 K. O painel (a) da figura mostra a histerese em $T = 20,0$ K com $M_R = 2,26$ emu/g e $H_C = 60,3$ Oe. No painel (b) são apresentados os ciclos de magnetização em 80 K e 115 K. Nestas temperaturas, a liga encontra-se no regime de magnetização de equilíbrio, tornando o campo coercivo aproximadamente nulo. A magnetização de 80 K apresenta o comportamento típico da fase intermediária ferromagnética, enquanto que, em $T = 115$ K, a magnetização é muito pequena e aproximadamente linear com H , conforme esperado para a fase paramagnética.

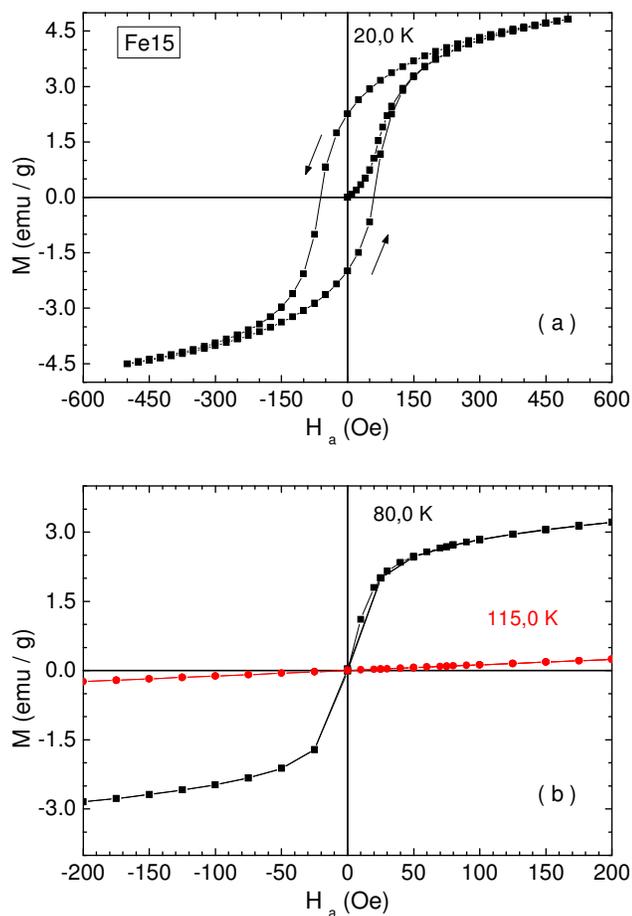


Figura 5.17: Ciclos de magnetização para a liga Fe15. (a) Isotherma de 20,0 K, característica da fase reentrante. (b) Isotherma de 80,0 K, característica da fase ferromagnética intermediária, e isoterma de 115,0 K característica da fase paramagnética.

iii) Amostra Fe18:

A figura 5.18 apresenta ciclos de magnetização para a liga Fe18, medidos para as temperaturas de 20 K, 143 K e 166 K. O painel (a) da figura mostra a histerese em $T = 20,0$ K com $M_R = 2,27$ emu/g e $H_C = 12$ Oe. Nota-se ainda que, apesar de a magnetização possuir leve tendência à saturação, esta não foi observada, mesmo em campos superiores a 500 Oe.

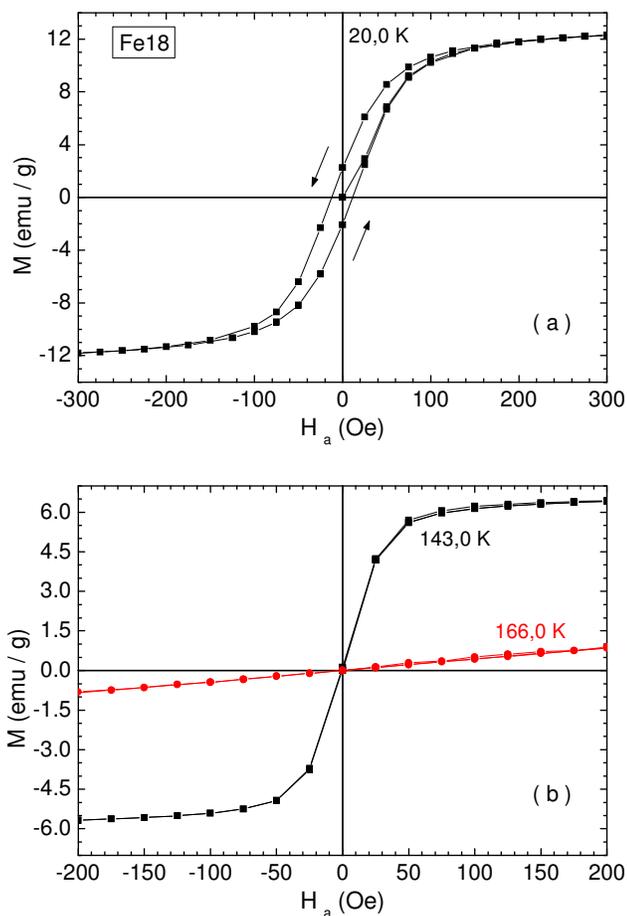


Figura 5.18: Ciclos de magnetização para a liga Fe18. (a) Histerese na isoterma de 20,0 K, característico da fase reentrante. (b) Magnetização nas isotermas de 143,0 K, característico da fase ferromagnética intermediária, e de 166,0 K indicando a fase paramagnética.

No painel (b) da figura 5.18 são apresentados resultados em 143 K e 166 K. Nestas temperaturas, a liga encontra-se no regime de magnetização de equilíbrio, tornando o campo coercivo aproximadamente nulo. A magnetização em 143 K apresenta o comportamento típico da fase intermediária ferromagnética, enquanto que, em 166 K a magnetização possui comportamento compatível com a fase paramagnética.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.19 apresenta resultados de magnetização em função do campo magnético aplicado para a liga Fe21, medidos em temperaturas de 20 K, 190 K e 216 K.

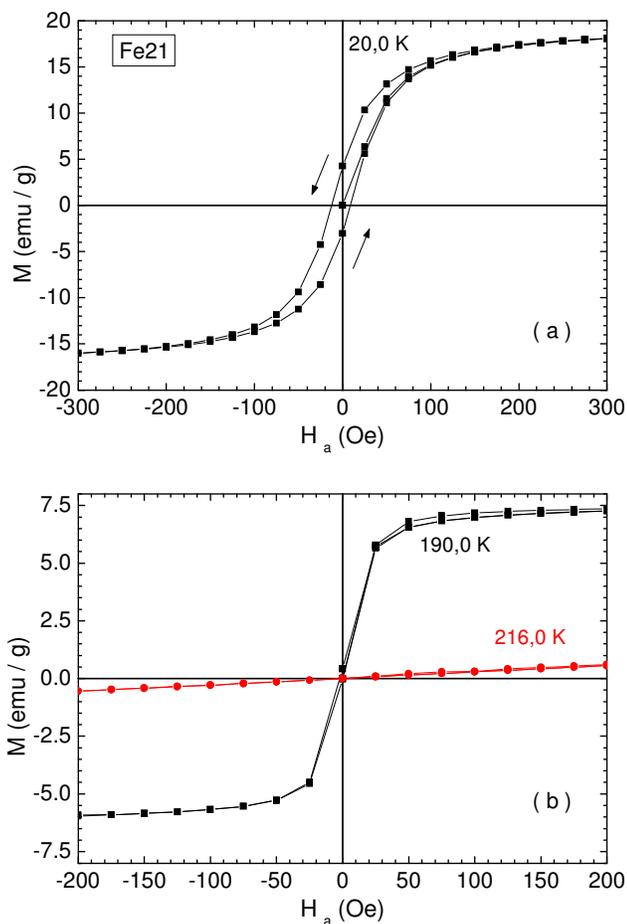


Figura 5.19: Liga Fe21. (a) Ciclo de histerese na isoterma de 20,0 K, na fase reentrante. (b) Ciclos de magnetização nas temperaturas de 190 K e 216K, característicos das fases ferromagnética intermediária e paramagnética, respectivamente.

O painel (a) da figura 5.19 mostra a histerese em $T = 20,0$ K com $M_R = 4,26$ emu/g e $H_C = 10,7$ Oe. A tendência da magnetização à saturação, em campos superiores a 500 Oe, indica que o comportamento magnético desta liga se aproxima de um ferromagneto clássico. No painel (b) são apresentados ciclos de magnetização em 190 K e 216 K.

A tabela 5.2 mostra um resumo dos resultados da magnetização remanente e do campo coercivo para a temperatura de 20 K de acordo com as ligas estudadas no sistema Au-Fe.

Nota-se que, à medida que a concentração de ferro é aumentada, a magnetização remanente é mais intensa, marcando a influência do alinhamento ferromagnético dos átomos de Fe. O campo coercivo sofre forte aumento de intensidade na liga Fe15.

Tabela 5.2: Comparação entre os valores da magnetização remanente e do campo coercivo para as ligas do sistema Au-Fe estudadas nesta Tese, na temperatura de 20 K.

Liga	M_R (emu/g)	H_C (Oe)
Fe13	1,53	31,3
Fe15	2,26	60,3
Fe18	2,27	11,8
Fe21	4,26	10,7

A figura 5.20 representa a magnetização remanente e o campo coercivo em $T = 20$ K para a série de ligas estudadas. Nesta figura, fica clara a anomalia em H_C na concentração de 15 at% de Fe.

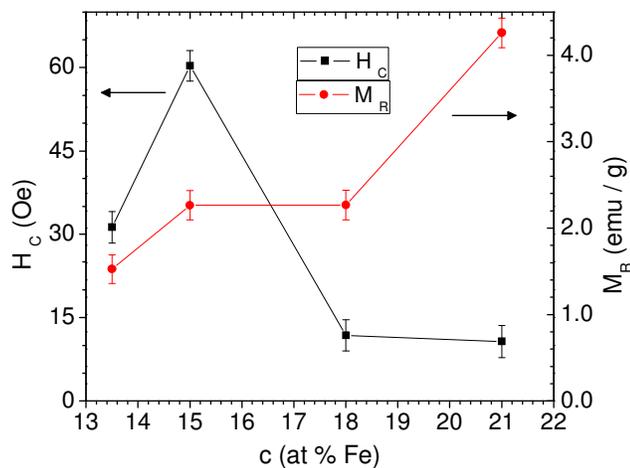


Figura 5.20: Magnetização remanente e campo coercivo em função da concentração de Fe no sistema Au-Fe, para a temperatura de 20 K.

5.2.2.3 Análises com o Método de Arrot-Noakes

As análises A-N foram realizadas apenas com base no escalonamento convencional da temperatura reduzida (equação 2.16), uma vez que, conforme observado na seção 5.2.2.1.b, o escalonamento CHT não descreve adequadamente o comportamento crítico no sistema Au-Fe.

i) Amostra Fe13:

A figura 5.21 apresenta isotermas de A-N, considerando o escalonamento convencional, baseado na equação 2.16. As temperaturas correspondentes às isotermas analisadas variaram de 73,0 K a 79,0 K, a cada 1 K. O melhor valor encontrado para o expoente da magnetização, mantendo-se fixo $\gamma = 1,84$, obtido das análises K-F, foi $\beta = 0,60 \pm 0,03$. Trata-se de um valor compatível com o esperado em sistemas reentrantes, conforme observado por C. Haetinger [24], e próximo ao determinado para a liga Cr49. A dificuldade de ajuste dos resultados de magnetização de baixos campos para esta liga provavelmente se deve à proximidade do sistema com um comportamento vidro de spin canônico.

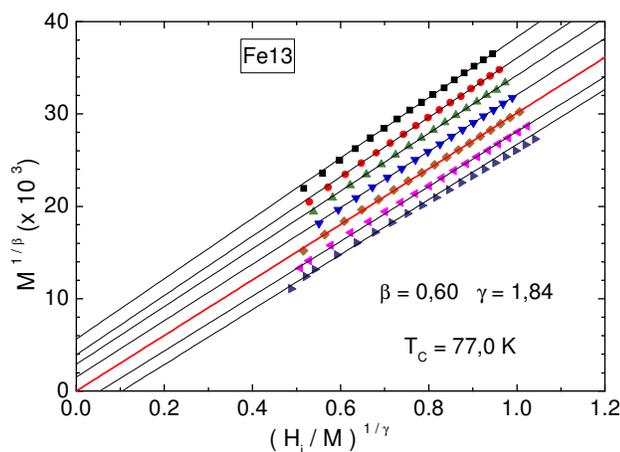


Figura 5.21: Análise de Arrot-Noakes para a liga Fe13. As temperaturas das isotermas estão entre 73,0 K e 79,0 K. Análise baseada no escalonamento convencional, dado pela equação 2.16.

ii) Amostra Fe15:

Para a análise A-N, foram consideradas isotermas entre 88 K e 95 K, espaçadas a cada 1 K. Fixou-se então $\gamma = 1,80$ e $T_c = 92,0$ K tal como obtido no método K-F. O valor $\beta = 0,94 \pm 0,04$ mostrou o melhor ajuste às isotermas consideradas. A figura 5.22 mostra as isotermas A-N para a amostra Fe15. O resultado desta análise assemelha-se ao obtido na liga V48 e é compatível com a natureza desordenada do estado tipo ferromagnético da liga Fe15.

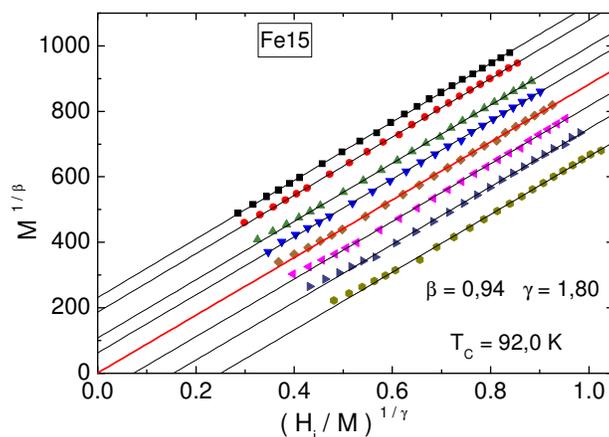


Figura 5.22: Análise de Arrot-Noakes para a liga Fe15, realizada com base no escalonamento convencional. As temperaturas das isotermas estão entre 88,0 K e 95,0 K, espaçadas de 1 K. Os expoentes críticos obtidos estão indicados.

iii) Amostra Fe18:

Para a análise A-N na liga Fe18, foram consideradas isotermas entre 152 K e 160 K, espaçadas a cada 1 K. A partir dos valores determinados pela susceptibilidade K-F, para γ e T_C ($\gamma = 1,73$ e $T_C = 156,0$ K), o melhor valor para o expoente é $\beta = 0,46 \pm 0,04$. A figura 5.23 mostra as isotermas A-N para a liga Fe18.

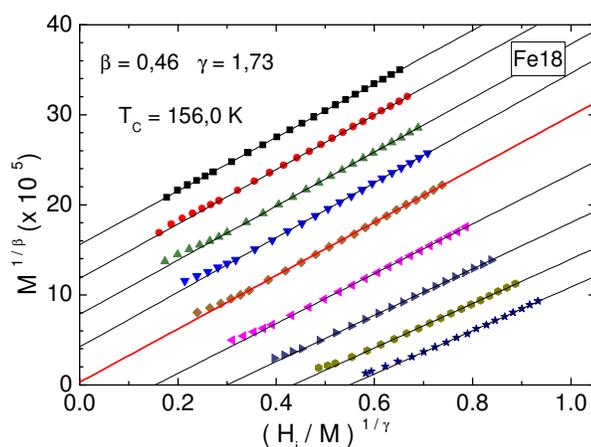


Figura 5.23: Análise de Arrot-Noakes para a liga Fe18, realizada com base no escalonamento convencional. As temperaturas das isotermas variam entre 152,0 K e 160,0 K, espaçadas de 1 K. Os parâmetros críticos estão indicados.

iv) Amostra Fe21:

A análise A-N, na liga Fe21, apresentada na figura 5.24, foi realizada com base em isotermas entre 200 K e 207 K, espaçados a cada 1 K. Nesta análise, manteve-se a temperatura crítica $T_C = 204,0$ K, determinada com auxílio do método K-F, e procurou-se ajustar γ e β . O melhor valor para o expoente da magnetização é $\beta = 0,47 \pm 0,03$ e o melhor valor para o expoente da susceptibilidade é $\gamma = 1,77 \pm 0,04$. O valor de β está em acordo ao obtido na seção 5.2.2.1.c, enquanto que o valor de γ é próximo daquele determinado com base na análise feita com o escalonamento CHT, mostrado na seção 5.2.2.1.b.

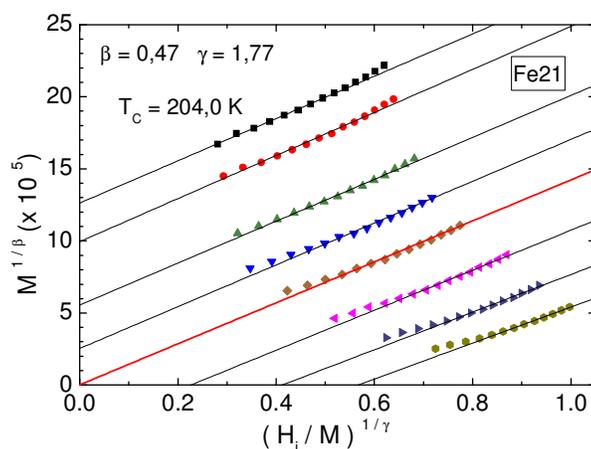


Figura 5.24: Análises de Arrot-Noakes para a liga Fe21, realizada com base no escalonamento convencional. As temperaturas das isotermas estão entre 200,0 K e 207,0 K, espaçados de 1 K.

5.2.2.4 Isoterma Crítica

O método da isoterma crítica foi aplicado em todas as ligas estudadas no sistema Au-Fe. A temperatura crítica foi determinada com os métodos anteriores.

i) Amostra Fe13:

Aplicando-se o método à isoterma de 77 K para a liga Fe13, não se obteve a linearização total dos pontos. Assim, foram considerados campos aplicados acima de 90 Oe para definir o expoente crítico δ . O ajuste linear dos pontos experimentais leva ao valor médio $\delta = 3,92 \pm 0,05$, conforme mostra a figura 5.25.

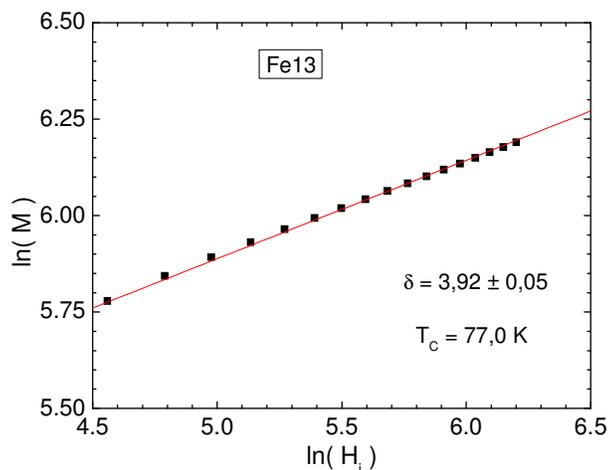


Figura 5.25: Aplicação do método da isoterma crítica para a liga Fe13. O ajuste linear indica $\delta = 3,92$ para a isoterma de 77 K.

Conhecendo-se os valores $\beta = 0,60$ e $\gamma = 1,84$ e supondo válida a relação de Widom, estima-se $\delta = 4,07$. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente pelo método da isoterma crítica e indica que os valores de γ e β , determinados de modo independente com os métodos K-F e A-N, são fidedignos.

ii) Amostra Fe15:

Para a liga Fe15, o método foi aplicado à isoterma de 92 K. Os pontos ajustam-se bem em uma reta, cujo coeficiente permite definir o expoente crítico. Obtém-se $\delta = 2,91 \pm 0,08$, conforme mostra a figura 5.26.

A partir dos valores $\gamma = 1,81$ e $\beta = 0,94$, determinados com os métodos K-F e A-N, e supondo válida a relação de Widom, estima-se $\delta = 2,93$. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente pelo método da isoterma crítica.

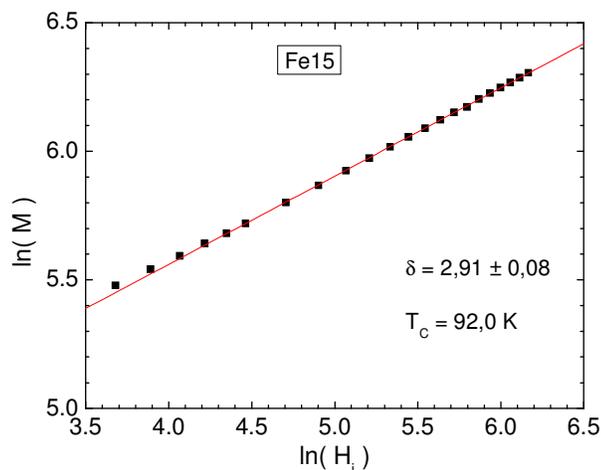


Figura 5.26: Isoterma crítica para a liga Fe15. O ajuste linear define $\delta = 2,93$ para a isoterma de 92 K.

iii) Amostra Fe18:

O método da isoterma crítica, para a liga Fe18, foi aplicado à magnetização medida em 156 K e é mostrado na figura 5.27. Os pontos ajustam-se bem a uma reta considerando-se campos aplicados acima 60 Oe. O ajuste linear nesta região informa $\delta = 4,89 \pm 0,07$.

A partir dos valores $\beta = 0,46$ e $\gamma = 1,73$, estima-se $\delta = 4,76$ com a relação de Widom. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente.

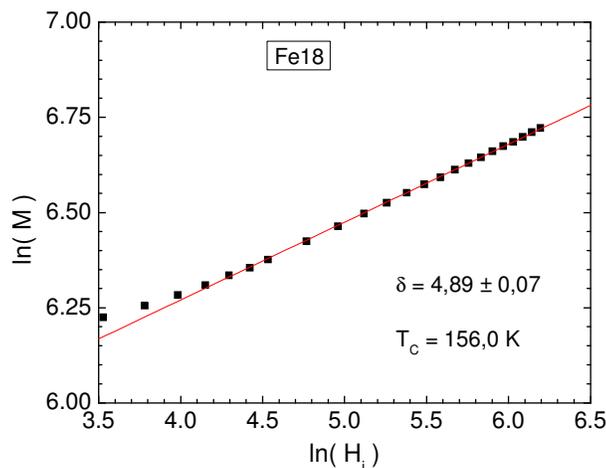


Figura 5.27: Isoterma crítica para a liga Fe18. Obtém-se $\delta = 4,89$ para a isoterma de 156 K.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.28 mostra a aplicação do método da isoterma crítica para a liga Fe21. Os pontos não apresentam um comportamento genuinamente linear. Entretanto, observa-se certa linearidade para a magnetização medida em campos superiores a 150 Oe. Um ajuste linear nesta região fornece $\delta = 4,83 \pm 0,07$.

Usando $\beta = 0,47$ e $\gamma = 1,77$ e a relação de Widom, estima-se $\delta = 4,77$. Este valor é consistente com o obtido experimentalmente pelo método da isoterma crítica. Nota-se que, no caso da liga Fe21, o valor de γ que melhor se ajusta às análises com o método A-N e com a relação de Widom é justamente $\gamma = 1,77$, que foi obtido pelo método K-F com base no escalonamento CHT. O valor de β obtido pelo método K-F também é confirmado com os métodos A-N e da isoterma crítica para a liga Fe21. Curiosamente, esta liga, pelo comportamento de sua magnetização, é mais próxima de um ferromagneto clássico dentre as ligas estudadas.

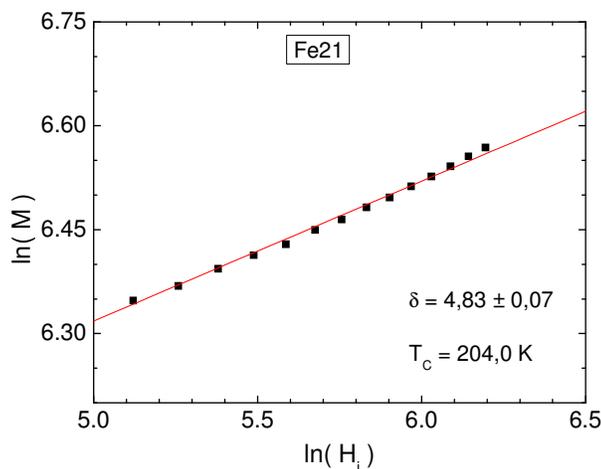


Figura 5.28: Isoterma crítica para a liga Fe21. O ajuste linear define $\delta = 4,83$ para a isoterma de 204 K.

5.2.2.5 Análises com o Método de Escala

i) Amostra Fe13:

A figura 5.29 apresenta a aplicação do método de escala para a liga *Fe13*, supondo o escalonamento convencional. Os expoentes testados foram $\beta = 0,60$ e $\delta = 3,92$, a temperatura crítica foi estabelecida em $T_C = 76,8$ K. As isotermas escolhidas estão entre 70,0 K e 84,0 K. O colapso dos dados em duas curvas que se encontram tangencialmente em $T = T_C$ é razoável.

O método de escala, tal como foi usado, tem a função de confirmar, ou não, os valores obtidos para os parâmetros críticos com as técnicas de análise empregadas anteriormente.

Dado o conjunto de análises, pode-se afirmar que, para a liga *Fe13* estudada, os expoentes críticos estáticos são $\beta = 0,60 \pm 0,02$; $\gamma = 1,84 \pm 0,05$ e $\delta = 3,92 \pm 0,05$. A temperatura crítica desta liga é $T_C = 76,8 (\pm 0,9)$ K.

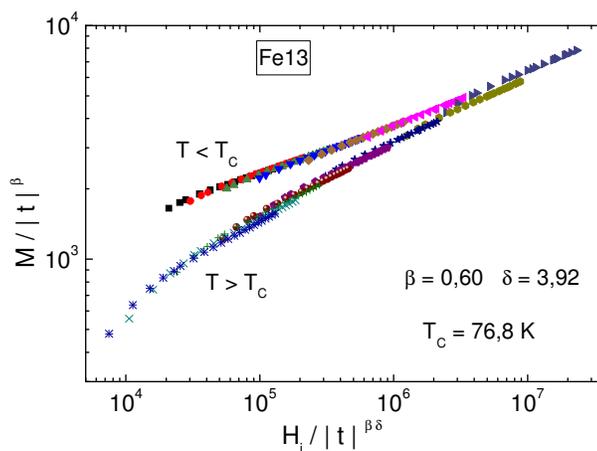


Figura 5.29: Método de Escala aplicado à liga *Fe13* para isotermas entre 70 K e 84 K, considerando os expoentes críticos $\beta = 0,60$ e $\delta = 3,92$ e a temperatura crítica $T_C = 76,8$ K.

ii) Amostra Fe15:

A figura 5.30 apresenta as isotermas da liga *Fe15* submetidas à análise pelo método de escala. O melhor resultado foi obtido quando os valores dos expoentes críticos foram considerados como $\beta = 0,94$ e $\delta = 2,91$, para a temperatura crítica $T_C = 92,0$ K. As isotermas escolhidas estão entre 83 K e 105 K. O colapso dos pontos experimentais em duas curvas é

bastante bom, validando os parâmetros críticos obtidos a partir da suposição de validade do escalonamento convencional.

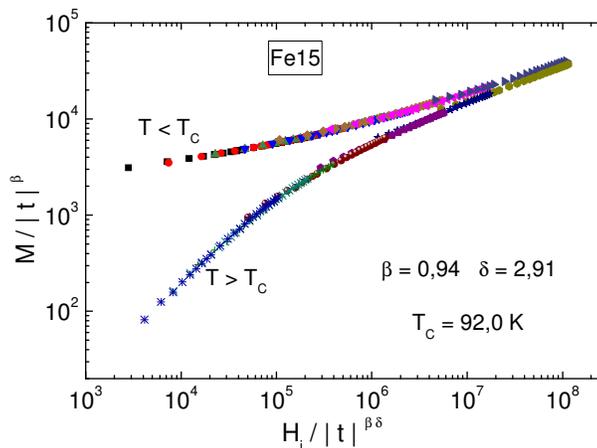


Figura 5.30: Método de Escala aplicado à liga Fe15 usando isotermas entre 83,0 K e 105,0 K e considerando os expoentes críticos $\beta = 0,94$ e $\delta = 2,92$ e a temperatura crítica $T_C = 92,0 \text{ K}$.

Para a liga Fe15, os expoentes críticos estáticos médios são $\beta = 0,94 \pm 0,04$; $\gamma = 1,81 \pm 0,02$ e $\delta = 2,91 \pm 0,08$. A temperatura crítica é $T_C = 92,1 (\pm 0,4) \text{ K}$.

iii) Amostra Fe18:

A figura 5.31 mostra a aplicação do método de escala para as isotermas entre 149 K e 163 K, para a amostra Fe18, supondo válido o escalonamento convencional. O melhor resultado foi obtido quando os valores dos expoentes críticos são $\beta = 0,46$ e $\delta = 4,89$ e a temperatura crítica é $T_C = 156 \text{ K}$. Os pontos colapsam razoavelmente bem, validando os parâmetros críticos obtidos. Assim, os expoentes críticos estáticos médios são $\beta = 0,46 \pm 0,04$; $\gamma = 1,70 \pm 0,03$ e $\delta = 4,89 \pm 0,07$. A temperatura crítica é $T_C = 155,6 (\pm 0,7) \text{ K}$.

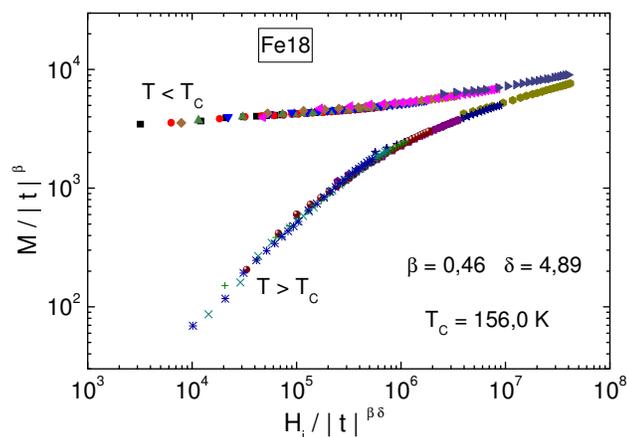


Figura 5.31: Método de Escala aplicado à liga Fe18 para isothermas medidas entre 149,0 K e 163,0 K, considerando os expoentes críticos, $\beta = 0,46$ e $\delta = 4,89$, e a temperatura crítica, $T_c = 156,0$ K.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.32 mostra a análise de escala para a liga Fe21, em isothermas entre 196 K e 211 K. O melhor resultado foi obtido para $\beta = 0,47$ e $\delta = 4,83$ e $T_c = 204,5$ K. Assim como nos casos anteriores, os pontos colapsam razoavelmente bem, validando os parâmetros críticos obtidos.

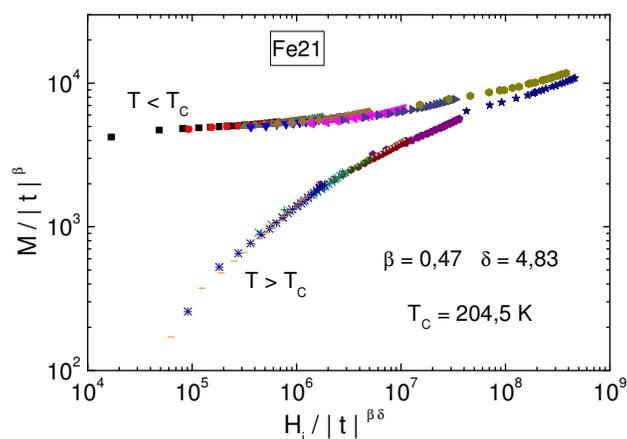


Figura 5.32: Método de Escala aplicado à liga Fe21 em isothermas entre 196 K e 211 K e considerando os expoentes críticos $\beta = 0,47$ e $\delta = 4,83$ e a temperatura crítica $T_c = 204,5$ K.

Os expoentes críticos estáticos médios são estabelecidos como sendo $\beta = 0,47 \pm 0,03$; $\gamma = 1,77 \pm 0,04$ e $\delta = 4,83 \pm 0,07$. A temperatura crítica é $T_C = 204,5 (\pm 0,7)$ K.

As ligas *Fe13* e *Fe15* possuem expoentes críticos semelhantes aos observados para os sistemas σ -*FeCr* e σ -*FeV*. As ligas *Fe18* e *Fe21* possuem expoentes críticos com valores próximos aos observados por C. Haetinger nos sistemas reentrantes *Au-Fe* e *Ni-Mn* [24]. De modo geral, de acordo com o diagrama de fases da figura 2.6 [14] e as análises efetuadas, para concentrações entre 13,5 e 16 at% de Fe, o estado vidro de spin influencia fortemente os valores dos expoentes críticos nas vizinhanças da transição para-ferromagnética. Em concentrações entre 16 e 24 at% de Fe, a influência da desordem em baixas temperaturas é menos marcante. De modo geral, os expoentes críticos encontrados neste estudo indicam que, para as concentrações estudadas, o sistema *Au-Fe* pertence à classe dos materiais magnéticos reentrantes [15].

5.3 Diagrama de Fases H - T

Conhecidos os parâmetros críticos para cada liga estudada, é pertinente apresentar os diagramas de fase magnéticos para estas ligas. Os campos aplicados nas medidas de magnetização em função da temperatura permitem levantar as linhas que formam o diagrama. As temperaturas de Curie ($T_C(H)$), foram obtidas pela análise de K-F, e assinalam a linha de transição para-ferromagnética. A linha de irreversibilidades ($T_{irr}(H)$) foi obtida a partir dos pontos em que as curvas ZFC e FC se separam. Os máximos das curvas ZFC, ($T_{if}(H)$), assinalam a linha de irreversibilidade forte. Na região de baixos campos, a linha de irreversibilidades pode ser ajustada à lei de potência dada pela equação 4.3.

$$H \propto |T_{irr}(H) - T_{irr}(0)|^p, \quad (4.3)$$

que é comportamento característico dos sistemas vidro de spin.

i) Amostra Fe13:

Na figura 5.33 tem-se o diagrama de fases H - T para a liga Fe13. A curvatura positiva da linha $T_{irr}(H)$, leva a supor que a transição entre a fase intermediária, tipo ferromagnética, e a fase vidro de spin em baixas temperaturas, é do tipo de Almeida-Thouless [13], embora uma análise detalhada não seja possível em razão de o expoente divergir das expectativas teóricas. Este fato permite estimar que a liga Fe13 esteja no estado vidro de spin puro em baixas temperaturas. As linhas traço-ponto são guias para os olhos.

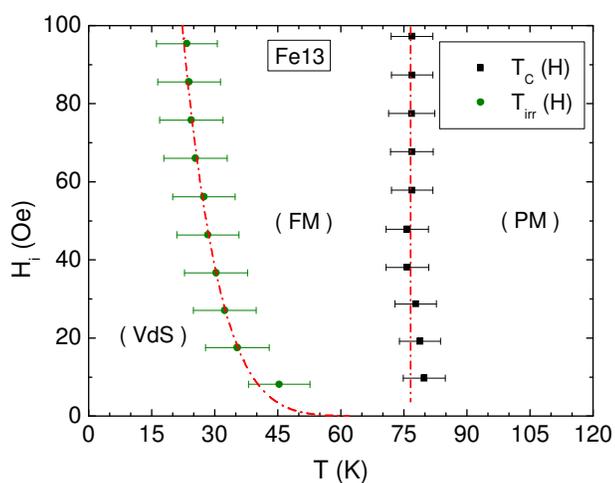
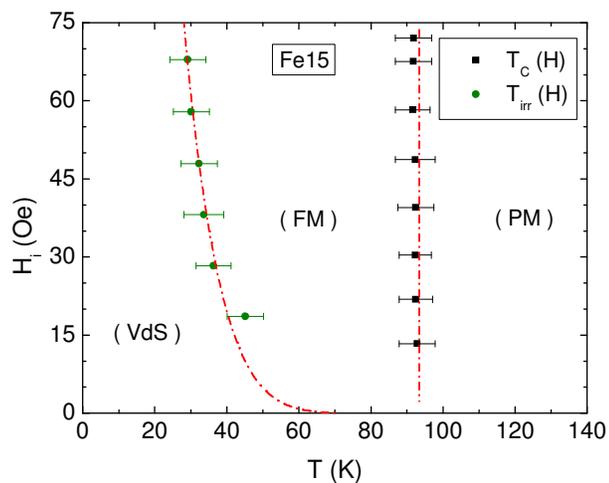


Figura 5.33: Diagrama H - T para a liga Fe13 mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de campos baixos da linha $T_{irr}(H)$ se ajusta qualitativamente à teoria de Almeida-Thouless [13]. As linhas traço-ponto servem como guias para os olhos.

ii) Amostra Fe15:

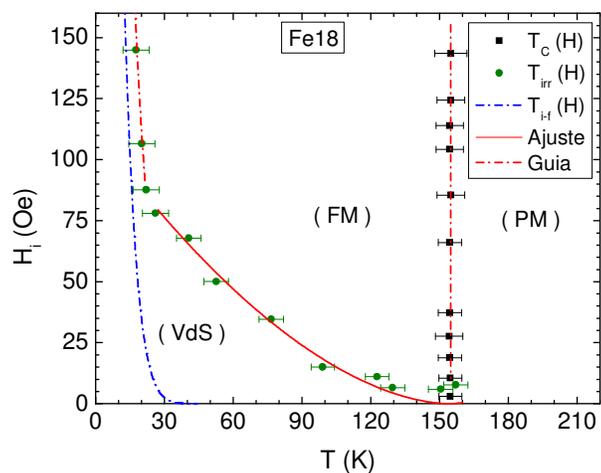
A figura 5.34 mostra o diagrama de fases H - T para a liga Fe15. A situação é similar à observada na liga Fe13. A curvatura positiva da linha $T_{irr}(H)$, sugere que a transição entre a fase ferromagnética e a vidro de spin é do tipo de Almeida-Thouless [13].



Figuras 5.34: Diagrama $H - T$ para a liga $Fe15$ mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS).

iii) Amostra $Fe18$:

Na figura 5.35 está mostrado o diagrama de fases $H - T$ para a liga $Fe18$. Realizando-se ajuste em baixos campos, para $T_{irr}(H)$, com base na equação 4.3, obtém-se $T_{irr}(0) = 153,8$ K e o expoente $p = 1,75$. Este valor para a temperatura de irreversibilidade em campo nulo leva a concluir que $T_{irr}(0) \approx T_C(0)$.

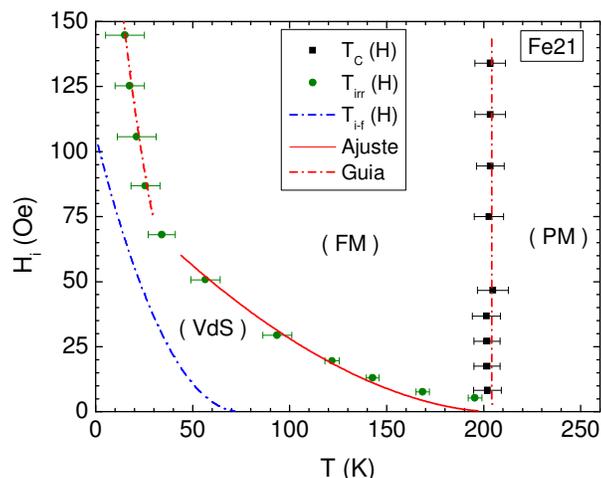


Figuras 5.35: Diagrama $H - T$ para a liga $Fe18$ mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de baixos campos se ajusta à teoria de campo médio para a transição vidro de spin num sistema reentrante. A linha traço ponto, em azul, corresponde à linha de irreversibilidade forte.

Este expoente é consistente com a previsão de Almeida-Thouless para os sistemas vidro de spin do tipo Ising [13]. Nesta liga, a linha de irreversibilidade forte, $T_{i-f}(H)$, é apresentada na linha traço ponto, em azul, e observa-se que, em campos altos, $T_{i-f}(H)$ tende a se confundir com $T_{irr}(H)$.

iv) Amostra Fe21:

A figura 5.36 mostra o diagrama de fases H - T para a liga Fe21. Um ajuste em campos intermediários para $T_{irr}(H)$, com base na equação 4.3, obtém-se $T_{irr}(0) \approx T_C(0) = 205,5$ K e o expoente $p = 1,8$. Este expoente também é consistente com a previsão de Almeida-Thouless para os sistemas vidro de spin do tipo Ising [13]. Nesta liga, a linha de irreversibilidade forte, $T_{i-f}(H)$, corresponde à linha traço ponto, em azul. Em campos acima de 100 Oe, não se observa o máximo na curva ZFC.



Figuras 5.36: Diagrama H - T para a liga Fe21 mostrando as fases: paramagnética (PM), tipo ferromagnética (FM) e vidro de spin (VdS). O limite de baixos campos se ajusta à teoria de campo médio para a transição vidro de spin num sistema reentrante. A linha de irreversibilidade forte está indicada pela linha traço ponto, em azul.

5.4 Comparação entre os parâmetros críticos no sistema Au-Fe

O estudo da fenomenologia crítica nas proximidades da transição para-ferromagnética no sistema reentrantes Au-Fe, por meio das análises K-F, A-N, Isoterma Crítica e Método de Escala, levaram à obtenção dos expoentes críticos estáticos β , γ e δ e das temperaturas críticas. Estes resultados estão listados na tabela 5.3.

Tabela 5.3: Parâmetros críticos para o sistema reentrante Au-Fe, com as respectivas incertezas experimentais.

Liga	β	γ	δ	$T_c (K)$
<i>Fe13</i>	$0,60 \pm 0,03$	$1,84 \pm 0,05$	$3,92 \pm 0,05$	$76,8 \pm 0,9$
<i>Fe15</i>	$0,94 \pm 0,04$	$1,81 \pm 0,02$	$2,91 \pm 0,08$	$92,1 \pm 0,4$
<i>Fe18</i>	$0,46 \pm 0,04$	$1,70 \pm 0,03$	$4,89 \pm 0,07$	$155,6 \pm 0,7$
<i>Fe21</i>	$0,47 \pm 0,03$	$1,77 \pm 0,04$	$4,83 \pm 0,07$	$204,5 \pm 0,7$

Os valores do expoente crítico γ foram definidos por meio da análise K-F e são consistentes para a série de ligas estudadas. Com a possível exceção da liga *Fe21*, a análise que se mostrou mais adequada para descrever o comportamento crítico da susceptibilidade na fase paramagnética foi aquela baseada no escalonamento convencional. A aplicação do escalonamento CHT para os resultados obtidos na liga *Fe21*, mostra que a linearidade da curva $W(T)$ ocorre em uma região de temperatura menor que no escalonamento convencional. Isto significa que a lei de potência que descreve a divergência da susceptibilidade é aplicável num regime de temperaturas mais estreito do que no caso do escalonamento convencional. Entretanto, os outros métodos empregados mostram melhor concordância com o valor do expoente crítico γ quando definido pelo escalonamento CHT.

A liga *Fe15* apresenta anomalias. Os valores obtidos para β e δ desviam fortemente daqueles obtidos nas outras ligas da série, e se aproximam dos valores típicos encontrados em transição vidro de spin puro. Nas ligas *Fe18* e *Fe21* o valor de β é próximo do valor esperado para os sistemas reentrantes. Em todas as ligas estudadas, a análise A-N mostrou-se bem sucedida para a determinação deste expoente.

De modo geral, pode-se dizer que os valores encontrados para os expoentes críticos estáticos β , γ e δ indicam que as ligas estudadas no sistema Au-Fe são ferromagnetos

reentrantes [24]. Nas ligas *Fe13* e *Fe15*, o comportamento crítico observado está mais próximo daquele que caracteriza uma transição vidro de spin, enquanto os expoentes obtidos para as ligas *Fe18* e *Fe21* se aproximam daqueles que caracterizam os sistemas estudados por C. Haetinger e col. [15]. Os resultados aqui estudados, portanto, indicam que não há uma rigorosa classe de universalidade a caracterizar a fenomenologia crítica na transição ferromagnética nos sistemas reentrantes. Em outros termos, a variabilidade dos expoentes encontrados sugere que a transição ferromagnética nos sistemas reentrantes se enquadra numa classe de universalidade fraca, sem rigorosa definição dos valores para os expoentes críticos estáticos.

6. IMPEDANCIOMETRIA

6.1 Introdução

Neste capítulo, são apresentados os estudos relativos à impedância e permeabilidade magnética nas ligas *Fe13*, *Fe18*, *Fe21* e *Cr46*. Foram realizadas medidas de impedância em função da temperatura ($Z \times T$) e do campo magnético aplicado ($Z \times H$). A partir dos resultados de $Z \times T$ foi extraída a permeabilidade magnética circunferencial, μ , (ou permeabilidade magnética transversa) com a qual se estudou a transição magnética nos sistemas mencionados. Utilizou-se o método de Kouvel-Fisher (análise K-F) para a obtenção dos parâmetros críticos.

A partir das medidas de $Z \times H$, em temperaturas variadas, foi possível obter o campo de anisotropia em função da temperatura, o qual mostra a transição crítica para-ferromagnética e a transição para a fase reentrante, tipo vidro de spin, em baixas temperaturas.

A corrente de sonda aplicada nos resultados de impedanciometria foi de 20 mA, para as ligas do sistema *Au-Fe*, e de 10 mA para a liga *Cr46*.

Uma breve discussão sobre as condições necessárias para se obter a permeabilidade magnética a partir dos dados de impedância é apresentada a seguir. Após, são apresentados os resultados, e as respectivas discussões, relativos às ligas estudadas por meio desta técnica. As amostras foram confeccionadas de acordo com os procedimentos descritos no capítulo 3, e possuíam formato de paralelepípedo. Ao final do capítulo é apresentado um resumo comparativo dos resultados obtidos com as técnicas de magnetização e de impedância.

6.2 A Permeabilidade Magnética

6.2.1 Determinação da Permeabilidade Magnética a partir da Impedância

Quando medimos a impedância de uma amostra metálica, o resultado experimental obtido carrega, na parte imaginária da medida (reatância indutiva), uma contribuição externa. Para obter corretamente a permeabilidade magnética inicial da amostra é necessário observar duas etapas:

(1) Corrigir a parte imaginária da impedância medida (reatância), X_{am} , extraíndo-se a contribuição externa, X_{ex} , de acordo com a equação *B.1*

$$X^* = X_{am} - X_{ex} \quad . \quad (B.1)$$

O procedimento utilizado nesta correção está descrito no apêndice *B*.

(2) A partir dos resultados experimentais da resistência e reatância corrigida, é possível obter as componentes real e imaginária da permeabilidade magnética inicial complexa ($\mu = \mu' + i\mu''$). A permeabilidade magnética é obtida a partir das medidas de impedância, resolvendo-se as equações de campo elétrico e campo magnético em meios condutores, assim como está descrito no capítulo 2.

As formas analíticas da impedância para as geometrias cilíndrica e lâmina infinita foram deduzidas pela primeira vez por Landau e Lifshitz [40]. As amostras estudadas nesta Tese possuem geometria de seção reta quadrada e, portanto, não se enquadram nas previsões teóricas. Entretanto, detalhados estudos desenvolvidos por L. A. Borba [59], mostram que a impedância de amostras com seção reta quadrada se aproxima da impedância de amostras cilíndricas, quando se considera a aresta da amostra de seção reta quadrada igual ao diâmetro da seção circular da amostra cilíndrica na equação de Landau (equação 2.28), de forma que

$$Z = \frac{1}{2} R_{DC} k a \frac{Y_0(ka)}{Y_1(ka)} \quad , \quad (2.28)$$

onde $R_{DC} = \rho_{DC} l / a^2 \pi$ é a resistência para frequência nula, a é o raio da seção reta circular da amostra cilíndrica, $Y_0(ka)$ e $Y_1(ka)$ são funções de Bessel e $k = (1 + i) / \delta$. O comprimento de penetração é $\delta = \sqrt{\rho / \pi \mu f}$.

Separando as partes real e imaginária da equação 2.28 e substituindo k e δ por suas definições, temos

$$\frac{R}{R_{DC}} = \operatorname{Re} \left[(1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \frac{Y_0 \left((1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)}{2Y_1 \left((1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)} \right], \quad (C.2a)$$

$$\frac{X^*}{R_{DC}} = \operatorname{Im} \left[(1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \frac{Y_0 \left((1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)}{2Y_1 \left((1+i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)} \right], \quad (C.2b)$$

onde ρ_{DC} é a resistividade elétrica da amostra em frequência nula.

No caso de uma amostra em forma de paralelepípedo, de seção reta quadrada, deve-se supor que a é a medida da metade da aresta da seção reta.

Com o auxílio das constantes R_{DC} , a , f , e σ , e dos resultados experimentais para R e X^* , as equações C.2a e C.2b tornam-se um sistema de duas equações com duas incógnitas, μ' e μ'' . Entretanto, por seu caráter transcendental, estas equações não podem ser resolvidas analiticamente. Assim, é necessário utilizar um método numérico iterativo para se extrair a permeabilidade complexa a partir dos resultados experimentais. A rotina do programa utilizado resolve o sistema de equações a partir de uma solução tentativa inicial, de forma que μ' e μ'' satisfaçam tanto a parte real quanto a parte imaginária dos resultados experimentais simultaneamente.

6.2.2 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura nas Proximidades de uma Transição Crítica

Nas vizinhanças de uma transição crítica magnética, a permeabilidade magnética possui uma dependência implícita com a temperatura reduzida que diverge segundo a lei de potência

$$\mu' = At^{-n}, \quad (6.1)$$

onde $t = |T - T_C|/T_C$ é a temperatura reduzida no escalonamento convencional, n é um expoente crítico e A é uma constante dependente do material [48].

No intuito de se estudar o comportamento crítico da permeabilidade nas vizinhanças da temperatura de Curie dos sistemas reentrantes $\underline{Au-Fe}$ e $\sigma-FeCr$, determinou-se o expoente crítico n e a temperatura crítica T_C com o método K-F, discutido no capítulo 2, para várias frequências de sonda. A determinação experimental da quantidade

$$S(T) = -\frac{\mu'}{d\mu'/dT} = \frac{1}{n}|T - T_C| \quad (6.2)$$

permite a obtenção dos parâmetros críticos nas regiões $T < T_C$ e $T > T_C$.

A vantagem desta técnica reside no fato de que a permeabilidade K-F, dada pela função $S(T)$, pode ser determinada sem aplicação de campo externo. Portanto, não há necessidade de se obter a susceptibilidade inicial e a magnetização de saturação por métodos de extrapolação, como ocorre no caso do estudo de fenômenos críticos por meio de medidas de magnetização. Ademais, efeitos do campo desmagnetizante estão ausentes.

6.3 O Sistema $\underline{Au-Fe}$

6.3.1 Resultados de Impedanciometria em Temperatura Variável

Medidas de impedância em função da temperatura ($Z \times T$), em frequências fixas, com e sem campo magnético externo aplicado, foram realizadas num primeiro momento para a caracterização e posterior estudo da transição ferromagnética. Em algumas medidas, executou-se o ciclo subida-descida de temperatura. Os resultados se mostraram totalmente reversíveis. Em seguida, foram realizados ciclos isotérmicos de magnetoimpedância ($Z \times H$), para uma frequência fixa definida.

i) Amostra Fe13:

A figura 6.1 mostra as partes real (resistência, R) e imaginária (reatância indutiva, X) da impedância em função da temperatura para a liga $Fe13$ em diversas frequências. Nos painéis (a) e (b) são apresentadas medidas para algumas frequências fixas, sem campo magnético aplicado. O máximo observado em torno de 60 K está relacionado com o aumento da permeabilidade magnética em T_C . Este máximo é resultado da polarização de spins gerada

pelo autocampo circunferencial da corrente de sonda e indica a transição para-ferromagnética. O decréscimo acentuado de R e X em baixas temperaturas mostra que, no estado fundamental, o sistema encontra-se em um estado globalmente desordenado, como é o caso dos reentrantes. O efeito da contribuição externa é observado nas curvas de reatância em diferentes frequências, uma vez que, na ausência desta, as curvas na região paramagnética deveriam estar quase sobrepostas, como ocorre nas curvas de resistência.

Os painéis (c) e (d) da figura 6.1, mostram o resultado da aplicação de campos magnéticos externos de 0, 20, 70 e 120 Oe, mantendo-se a frequência fixa em 200 kHz. Nota-se que, à medida que o campo é aumentado, ocorre uma redução na magnitude da magnetoimpedância espontânea. Este efeito é compatível com o fato de que um campo externo tende a remover a singularidade da transição e, conseqüentemente, produz um arredondamento na variação da permeabilidade magnética na região $T \approx T_c$, tornando a transição menos marcante nas medidas de impedância, de modo análogo ao que ocorre numa medida direta de susceptibilidade AC.

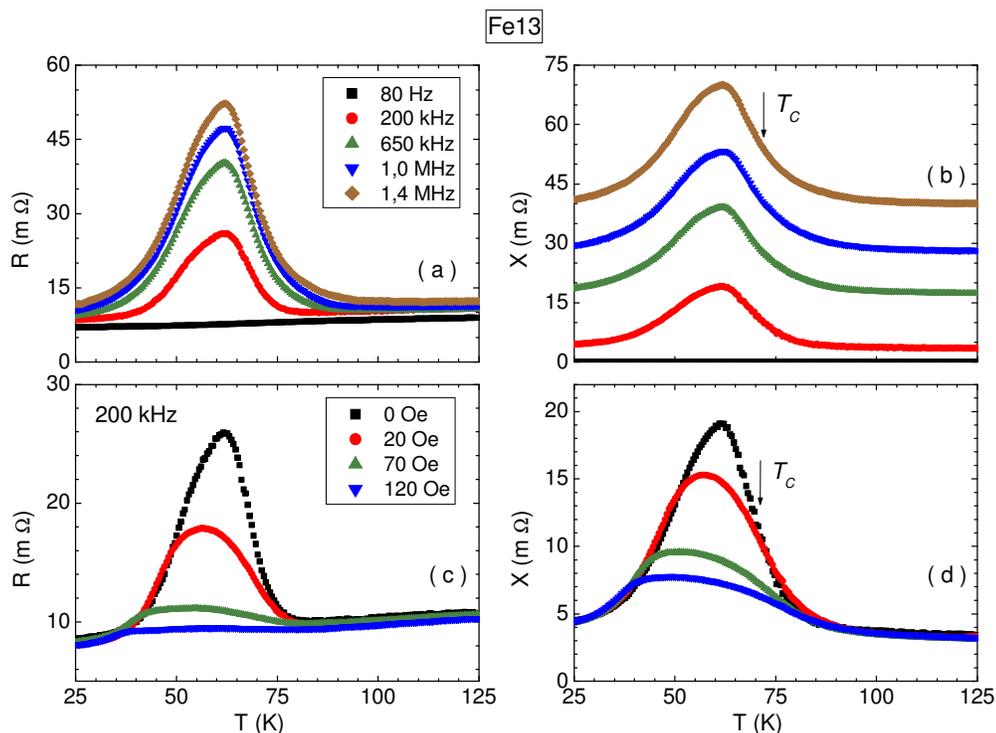


Figura 6.1: Liga Fe13. (a) Parte real e (b) parte imaginária da impedância em função da temperatura para algumas frequências fixas sem campo magnético aplicado. (c) Parte real e (d) parte imaginária da impedância para a frequência de 200 kHz em campos magnéticos aplicados de 0 Oe, 20 Oe, 70 Oe e 120 Oe.

A figura 6.2 mostra os resultados de magnetoimpedância para a liga *Fe13* na frequência fixa de 200 kHz, para algumas isothermas entre 20 K e 100 K. Foram realizados ciclos de magnetoimpedância partindo de $H = 0$ Oe, aumentando o campo até +140 Oe, posteriormente o campo foi diminuído até -140 Oe e, completando o ciclo, o campo foi novamente aumentado até +140 Oe. O campo magnético foi aplicado paralelamente à corrente, de forma a assegurar que campo externo e autocampo gerado pela corrente se sonda fossem perpendiculares entre si. Em $T = 19,2$ K, a isoterma é visualmente constante em função de H . A partir da isoterma em $T = 40,7$ K e até a isoterma em $T = 62,3$ K, a impedância apresenta um leve aumento em baixos campos, passa por um máximo de magnitude e, logo após, tende a decrescer com o aumento subsequente do campo magnético. Este comportamento se traduz na característica de duplo máximo, revelando a competição entre o campo magnético externo, aplicado paralelamente à corrente de sonda, o autocampo circunferencial produzido pela corrente e o campo de anisotropia. O máximo em baixos campos na magnitude de Z está relacionado diretamente ao campo de anisotropia [48] e será analisado mais adiante. À medida que se aumenta a temperatura em direção à T_C , a magnitude de Z é aumentada enquanto a posição do máximo tende para $H = 0$, o que ocorre no limite $T = T_C \approx 69$ K. Em $T > T_C$, a impedância tende a um valor constante em função de H , que é um comportamento típico da fase paramagnética.

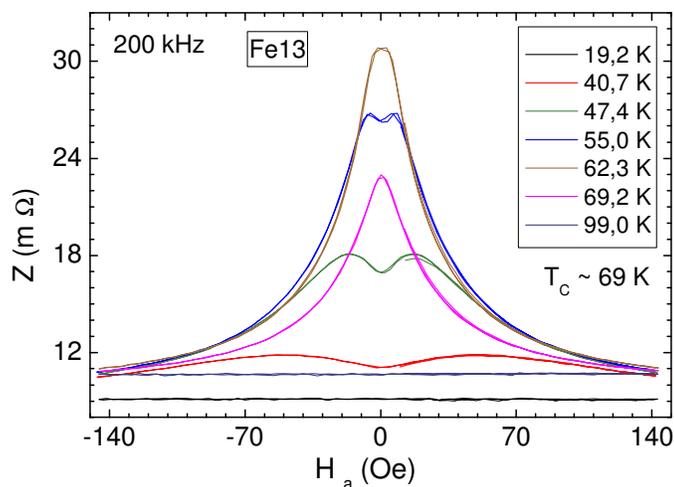


Figura 6.2: Ciclos de magnetoimpedância para a amostra *Fe13* na frequência de 200 kHz, em algumas isothermas entre 20 K e 100 K.

ii) Amostra Fe18:

A figura 6.3 mostra R e X em função da temperatura para a liga $Fe18$. Nos painéis (a) e (b) são apresentadas medidas para as frequências fixas de 80 Hz, 200 kHz, 650 kHz, 1,0 MHz e 1,4 MHz, sem campo magnético aplicado. As curvas apresentam aumento na magnitude de R e X com o aumento da frequência. Nota-se, sobretudo, o aumento do valor da reatância na região paramagnética, decorrente da contribuição externa. O comportamento em função da temperatura das partes real e imaginária da impedância da liga $Fe18$ revela claramente a ocorrência de magnetoimpedância espontânea e a natureza reentrante do estado magnético interagente neste sistema.

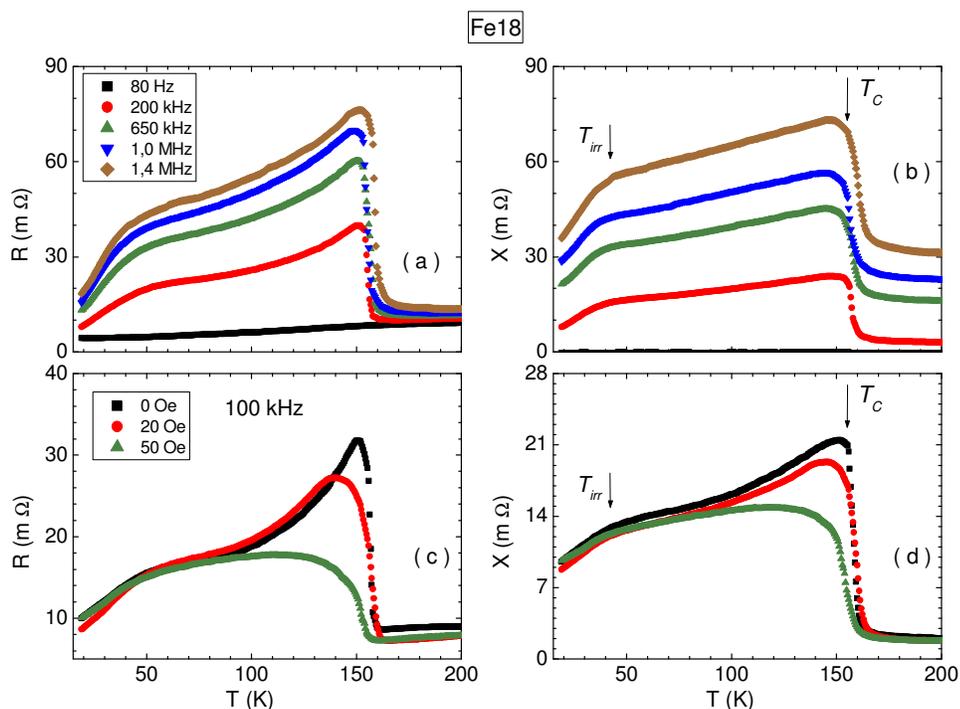


Figura 6.3: Liga $Fe18$. Parte real (a) e parte imaginária (b) da impedância em função da temperatura para algumas frequências fixas sem campo magnético aplicado. Parte real (c) e parte imaginária (d) da impedância para a frequência de 100 kHz nos campos magnéticos de 0 Oe, 20 Oe e 50 Oe.

A transição ao estado tipo vidro de spin é observada em torno de 40 K, assim como observado pela temperatura de irreversibilidade ZFC-FC, desta forma, usamos a mesma notação, ou seja, a temperatura de transição reentrante está denotada por T_{irr} . Abaixo desta

temperatura, ambas as componentes de Z decrescem fortemente com o decréscimo de T , de modo análogo ao que se observa em medidas de magnetização ZFC [15, 60 - 62] e susceptibilidade AC [18]. Acima de T_{irr} , a impedância também aumenta com a temperatura, porém a uma taxa menor que na região vidro de spin, até que, em $T = 155$ K, ambas componentes da impedância decrescem abruptamente, demonstrando a ocorrência de transição do estado ferromagnético para a fase paramagnética. A extensa faixa entre $T_{irr} = 40$ K e $T_C = 155$ K indica a região intermediária com ordenamento tipo ferromagnético.

Nos painéis (c) e (d) da figura 6.3, tem-se o resultado da aplicação dos campos magnéticos externos de 0, 20 e 50 Oe, mantendo-se fixa a frequência de 100 kHz. De forma similar ao caso da liga *Fe13*, nota-se a redução na magnitude da magnetoimpedância espontânea com o aumento do campo magnético.

A figura 6.4 mostra os resultados de magnetoimpedância para a liga *Fe18* na frequência fixa de 100 kHz, em algumas isothermas entre 20 K e 160 K. Foram realizados ciclos de $Z \times H$ assim como na liga *Fe13*. Qualitativamente, o mesmo comportamento de Z em relação a H é observado.

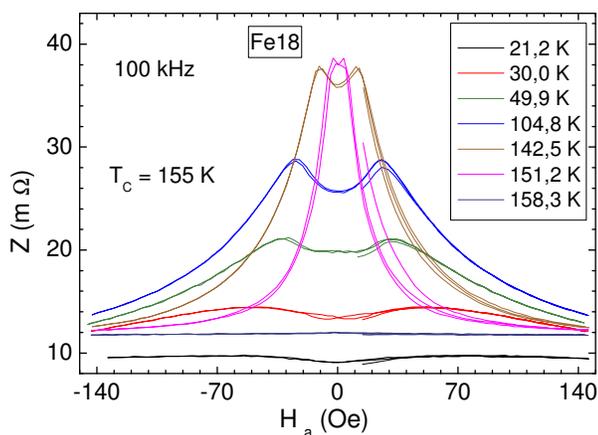


Figura 6.4: Magnetoimpedância para a amostra *Fe18* na frequência de 100 kHz, em isothermas entre 20 K e 160 K.

iii) Amostra *Fe21*:

A figura 6.5 mostra R e X em função da temperatura para a liga *Fe21*. Nos painéis (a) e (b) são apresentados resultados para as frequências fixas de 80 Hz, 100 kHz, 400 kHz,

1,0 MHz e 1,8 MHz, sem campo magnético aplicado. O aumento na magnitude de Z com o aumento da frequência é observado, assim como o deslocamento, na região paramagnética, nas medidas de reatância decorrente da contribuição externa. Uma fraca mudança de regime ocorre em torno de 25 K, indicando que, abaixo desta temperatura, a liga encontra-se no estado reentrante. Nova mudança de regime ocorre de forma bastante acentuada em torno de $T_C = 210$ K, indicando a transição de fase para-ferromagnética. Nota-se que a transição reentrante é menos perceptível nesta liga, conforme mostra o diagrama de fases da figura 2.6.

Nos painéis (c) e (d) da figura 6.5, tem-se o resultado da aplicação de campos magnéticos externos fixos de 0, 20 e 120 Oe na frequência de 100 kHz. Novamente, nota-se a redução na magnitude da magnetoimpedância espontânea com o aumento do campo magnético externo, tornando a transição menos marcante, enquanto que a transição reentrante parece ser suprimida no campo de 120 Oe.

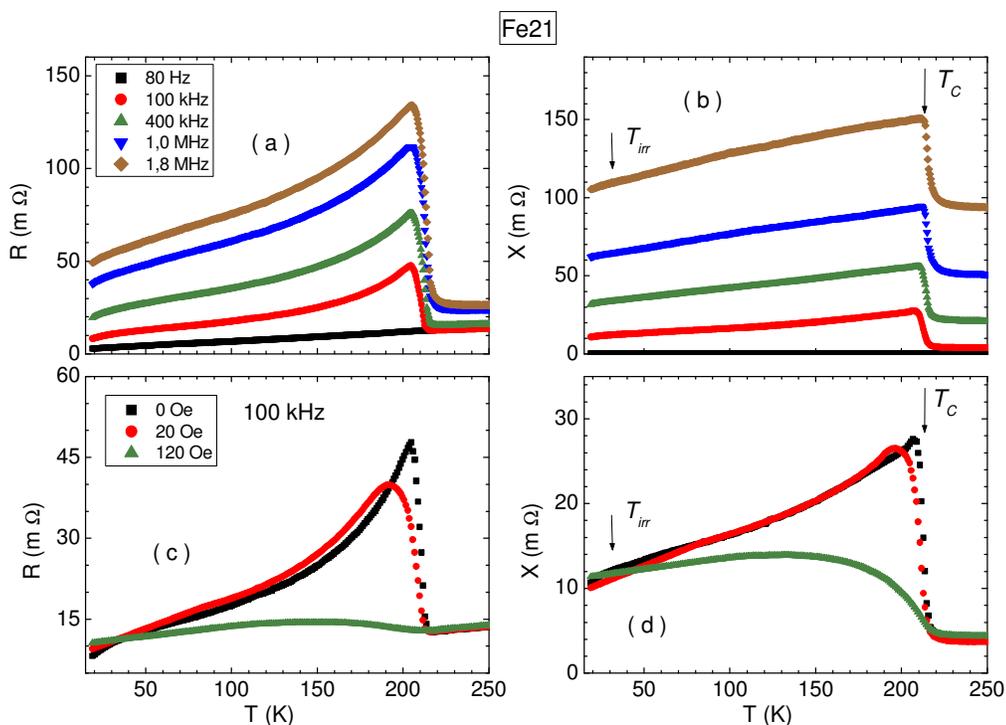


Figura 6.5: Liga Fe21. Parte real (a) e parte imaginária (b) da impedância em função da temperatura para algumas frequências fixas sem campo magnético aplicado. Parte real (c) e parte imaginária (d) da impedância para a frequência de 100 kHz considerando os campos de 0 Oe, 20 Oe e 120 Oe.

A figura 6.6 mostra os resultados de magnetoimpedância para a liga *Fe21* na frequência fixa de 100 kHz, para algumas isothermas entre 20 K e 220 K. Foram realizados ciclos de magnetoimpedância assim como nas ligas apresentadas anteriormente. A semelhança dos resultados com aqueles obtidos para a liga *Fe18* é significativa. O campo de anisotropia tende a zero para temperaturas acima da isoterma crítica de 204,8 K, onde a impedância tem sua magnitude máxima. Em $T = 219,7$ K, Z é constante em função de H , tal como esperado para a fase paramagnética.

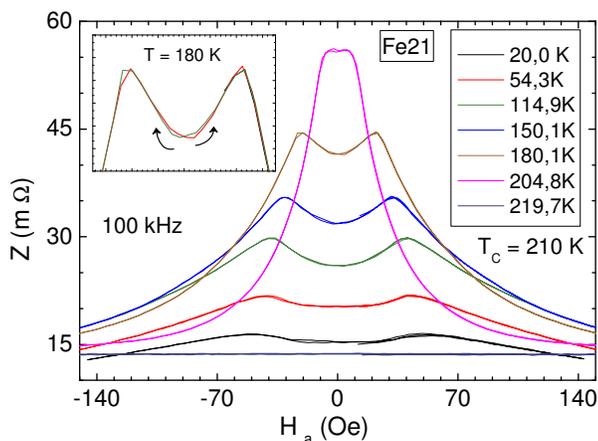


Figura 6.6: Resultados de magnetoimpedância para a amostra *Fe21* na frequência de 100 kHz, em algumas isothermas entre 20 K e 220 K.

6.3.2 Análises da Permeabilidade Magnética no Sistema Au-Fe

6.3.2.1 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura

A partir das medidas de $Z \times T$, com base na equação 2.28 e com o auxílio do programa computacional descrito no apêndice C, foram obtidas as partes real, μ' , e imaginária, μ'' , da permeabilidade magnética inicial das ligas estudadas no sistema Au-Fe.

i) Amostra *Fe13*:

A figura 6.7 mostra μ' e μ'' em função da temperatura para a liga *Fe13* nas frequências de 200 kHz, 650 kHz, 1,0 MHz e 1,8 MHz sem a aplicação de campo magnético externo. Estas curvas possuem dependência com a temperatura similar às curvas de impedância, mostrada na figura 6.1. Nota-se as transições para-ferromagnética, marcada na figura como

T_C , e o caráter desordenado reentrante em baixas temperaturas, marcado na figura como T_{irr} . Observa-se também que a permeabilidade diminui com o aumento da frequência, enquanto que a impedância aumenta com a frequência (figura 6.1). Tal efeito é devido à impedância possuir dependência explícita com a frequência através do comprimento de penetração, $\delta = \sqrt{1/\pi\mu\sigma f}$, e dependência implícita da temperatura através de $\mu(f, T)$.

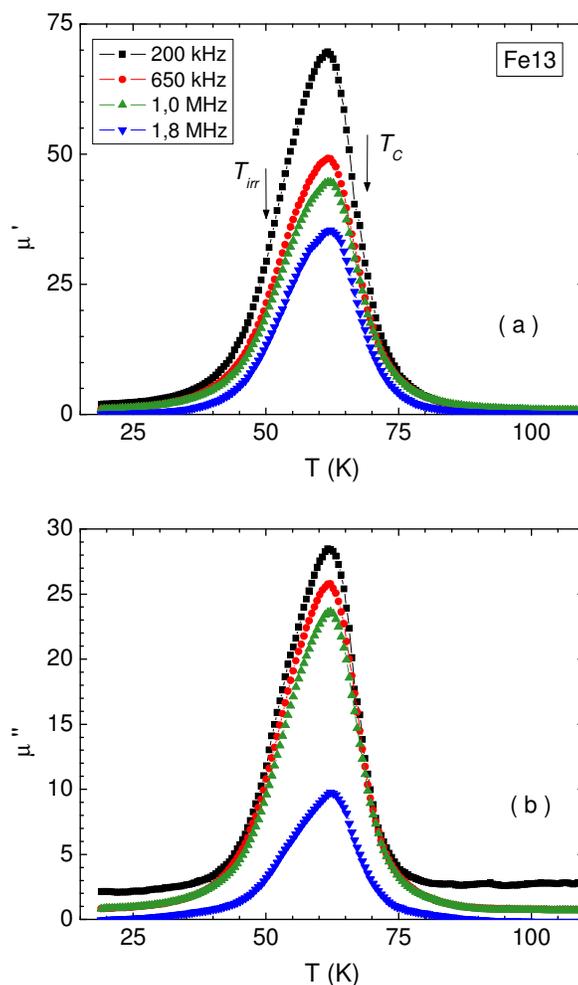


Figura 6.7: Permeabilidade magnética estabelecida a partir das equações C.2 para a liga Fe13 nas frequências de 200 kHz, 650 kHz, 1,0 MHz e 1,8 MHz sem campo magnético aplicado. (a) μ' em função da temperatura. (b) μ'' em função da temperatura.

O painel (a) da figura 6.7 mostra $\mu' \times T$. Nota-se uma transição em torno de $T = T_{irr} \approx 50$ K e outra em torno de $T = T_C \approx 70$ K. A região intermediária ($T_{irr} < T < T_C$) corresponde a uma fase tipo ferromagnética. Abaixo de 50 K, observa-se uma redução na magnitude da permeabilidade, caracterizando a transição para o estado desordenado vidro de

spin. Acima de 70 K a liga encontra-se na fase paramagnética e a permeabilidade tende a zero em $T > T_C$. No painel (b) da figura 6.7 é mostrado $\mu'' \times T$. Os mesmos efeitos da temperatura são observados. Entretanto, a magnitude do sinal é menor que no painel (a). Este efeito é decorrente da natureza das componentes μ' e μ'' . A primeira está associada à contribuição indutiva da impedância, enquanto que μ'' está associada à parte dissipativa.

ii) Amostra Fe18:

A figura 6.8 mostra μ' e μ'' em função da temperatura para a liga Fe18 nas frequências de 100 kHz, 400 kHz, 800 kHz e 1,8 MHz sem a presença de campo magnético externo.

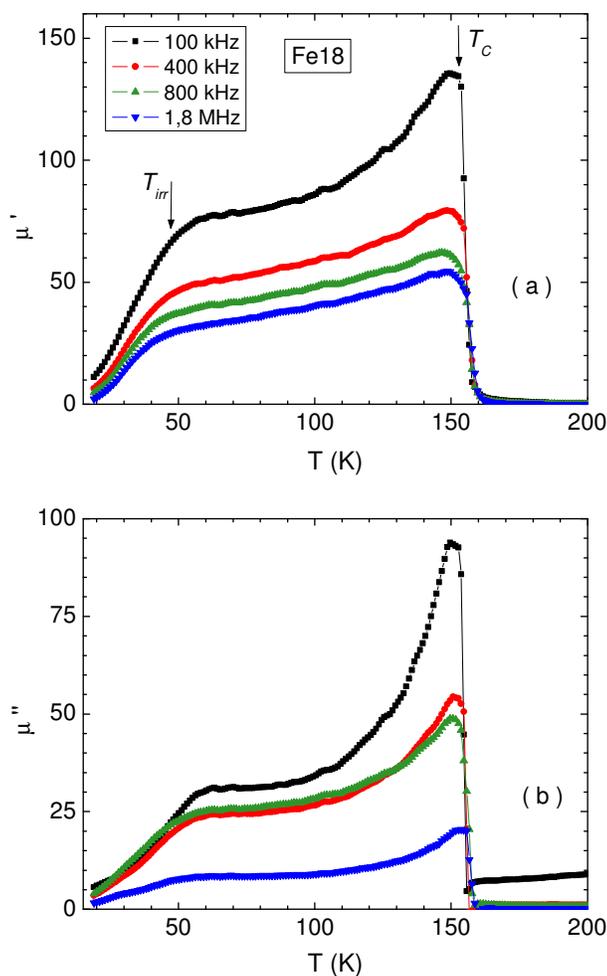


Figura 6.8: Permeabilidade magnética estabelecida a partir das equações C.2 para a liga Fe18 nas frequências de 100 kHz, 400 kHz, 800 kHz e 1,8 MHz sem campo magnético aplicado. (a) μ' em função da temperatura. (b) μ'' em função da temperatura.

O painel (a) mostra $\mu' \times T$, enquanto que no painel (b) tem-se $\mu'' \times T$. Observa-se o comportamento paramagnético em altas temperaturas até $T = T_C \approx 160$ K, onde ocorre a transição ferromagnética. Observa-se uma redução na magnitude da permeabilidade no intervalo $T_{irr} < T < T_C$. Este efeito é decorrente do congelamento gradativo dos momentos magnéticos na medida em que se atinge a transição ao estado vidro de spin em $T_{irr} \approx 45$ K. Em $T < 45$ K, a liga encontra-se no estado reentrante tipo vidro de spin.

iii) Amostra Fe21:

A figura 6.9 mostra μ' e μ'' em função da temperatura para a liga Fe21 nas frequências de 100 kHz, 400 kHz, 1,0 MHz e 1,8 MHz sem a presença de campo magnético externo.

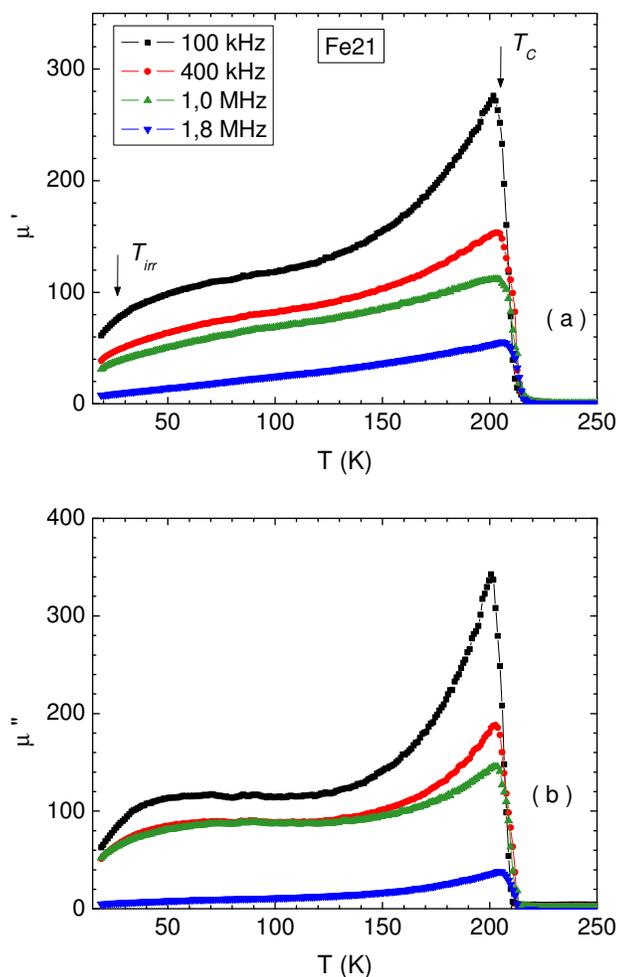


Figura 6.9: Permeabilidade magnética estabelecida a partir das equações C.2 para a liga Fe21 nas frequências de 100 kHz, 400 kHz, 1,0 MHz e 1,8 MHz sem campo magnético aplicado. (a) μ' em função da temperatura. (b) μ'' em função da temperatura.

O painel (a) mostra $\mu' \times T$, enquanto que, no painel (b) tem-se $\mu'' \times T$. Observa-se o comportamento paramagnético em altas temperaturas até $T = T_C \approx 205$ K, onde ocorre a transição ferromagnética. Ocorre uma redução na magnitude da permeabilidade no intervalo $T_{irr} < T < T_C$. Este efeito é decorrente do congelamento gradativo dos momentos magnéticos na medida em que se atinge $T_{irr} \approx 25$ K. Em $T < 25$ K, a liga encontra-se no estado reentrante tipo vidro de spin. Observa-se também aqui, uma redução da permeabilidade com a frequência da corrente de sonda.

6.3.2.1.a Análise K-F na Permeabilidade Magnética

Considerando-se que a parte real da permeabilidade magnética escala com a temperatura de acordo com a equação 6.1, utilizamos a análise K-F, com base na equação 6.2, para determinar os parâmetros críticos do sistema Au-Fe.

i) Amostra Fe13:

A figura 6.10 mostra a análise da permeabilidade K-F, ou função $S(T)$, para a liga Fe13 na frequência de 400 kHz, sem campo externo aplicado. Os sucessivos tratamentos dos resultados experimentais para se obter a permeabilidade K-F, propiciam uma propagação de erros mais acentuada que na análise da susceptibilidade, apresentada no capítulo 4. No caso da amostra Fe13 apenas uma análise qualitativa pode ser feita. Por esta análise, supõe-se que T_C está próximo ao valor determinado a partir das medidas magnéticas apresentadas no capítulo 5. A partir dos resultados obtidos em 400 kHz, estimou-se $T_C = 70$ K e os expoentes críticos $n_1 = 0,6$, em $T < T_C$, e $n_2 = 1,7$, em $T > T_C$. Análises efetuadas nas demais frequências forneceram resultados semelhantes, de modo que foi possível estabelecer os valores médios $T_C = 70 (\pm 1)$ K, $n_1 = 0,6 \pm 0,1$ e $n_2 = 1,7 \pm 0,2$. Os valores obtidos para os expoentes n_1 e n_2 reproduzem os valores obtidos para β e γ respectivamente, a partir das experiências de magnetização descritas no capítulo 5. O valor obtido para T_C está um pouco abaixo do obtido a partir das medidas magnéticas.

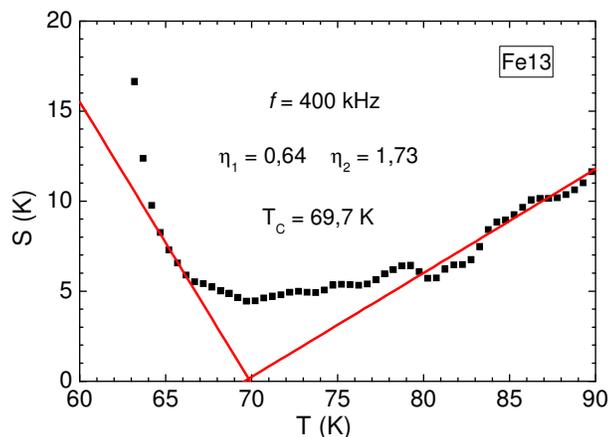


Figura 6.10: Permeabilidade K-F em função da temperatura, obtida a partir da equação 6.2, para a liga Fe13. As incertezas são parcialmente compensadas por um processo de média dos resultados obtidos em diferentes frequências.

ii) Amostra Fe18:

A figura 6.11 mostra a permeabilidade K-F para a liga Fe18 determinada com a frequência de 400 kHz, sem campo externo aplicado.

Os parâmetros críticos n e T_C , determinados por meio do ajuste linear mostrado na figura são $T_C = 158,2$ K, $n_1 = 0,4$ (em $T < T_C$) e $n_2 = 1,3$ (em $T > T_C$). As demais medidas em outras frequências forneceram análises de qualidade semelhante, de forma que foi possível calcular os valores médios $T_C = 158,0 (\pm 0,8)$ K, $n_1 = 0,44 \pm 0,03$ e $n_2 = 1,31 \pm 0,04$.

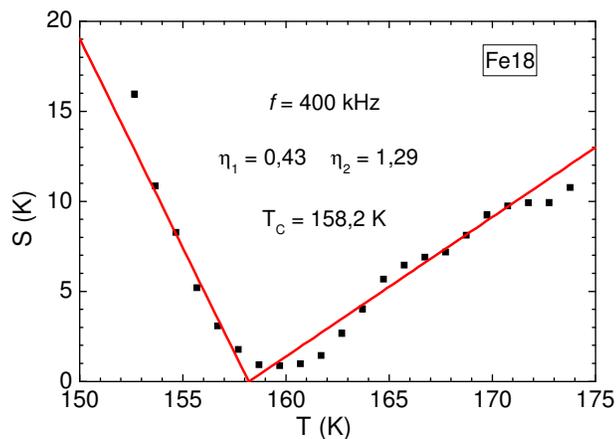


Figura 6.11: Permeabilidade K-F em função da temperatura, obtida a partir da equação 6.2, para a liga Fe18. Os parâmetros críticos obtidos são próximos aos determinados com os resultados de magnetização.

Novamente percebe-se a concordância qualitativa entre n_1 e β . Entretanto, há uma diferença significativa entre n_2 e γ . A temperatura crítica também difere daquela obtida com medidas magnéticas.

iii) Amostra Fe21:

A figura 6.12 mostra a quantidade $S(T)$, determinada a partir da equação 6.2, para a liga Fe21 com base nas medidas realizadas sob a frequência de 400 kHz e sem campo externo aplicado. De forma semelhante às amostras anteriores, os parâmetros críticos foram determinados por meio de ajustes lineares nas regiões em torno da transição. Assim, obteve-se $T_C = 214,1$ K, $n_1 = 0,48$ em $T < T_C$, e $n_2 = 1,67$ na região $T > T_C$. A partir das medidas realizadas nas demais frequências, obteve-se os valores médios $T_C = 214,6 (\pm 0,9)$ K, $\eta_1 = 0,48 \pm 0,03$ e $\eta_2 = 1,68 \pm 0,04$.

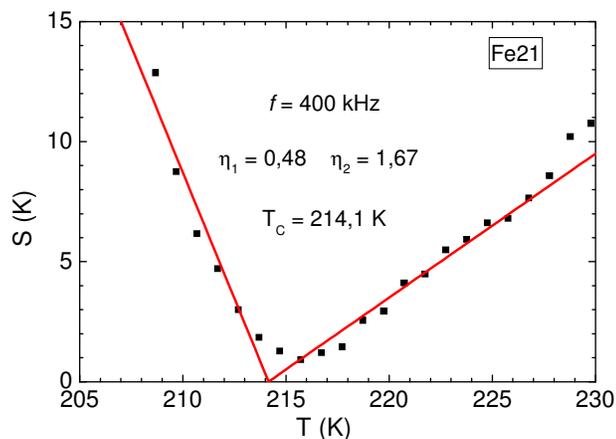


Figura 6.12: Permeabilidade K-F em função da temperatura, obtida a partir da equação 6.2, para a liga Fe21. Os parâmetros críticos coincidem com aqueles obtidos nos resultados de magnetização, sendo $n_1 = \beta$ e $n_2 = \gamma$

6.3.2.2 Magnetoimpedância e Campo de Anisotropia

Conforme apresentado na seção 6.3.1, ciclos de magnetoimpedância foram realizados no sistema Au-Fe, considerando-se várias isotermas distribuídas por toda a extensão do intervalo de temperaturas estudado.

A partir dos ciclos mostrados nas figuras 6.2, 6.4 e 6.6, foram extraídos os valores para o campo de anisotropia, H_{an} , em função da temperatura. Este campo é identificado pelo valor médio do máximo de magnitude nos experimentos de $Z \times H_a$.

A passagem da corrente de sonda estimula o surgimento de um autocampo circunferencial, devido ao formato da amostra, que polariza circunferencialmente os momentos magnéticos. O campo magnético externo, aplicado paralelamente à corrente de sonda, faz então, um ângulo de 90° com o autocampo, provocando competição na orientação dos momentos magnéticos. O máximo na magnetoimpedância ocorrerá quando o campo aplicado possuir intensidade igual ao campo de anisotropia dos momentos magnéticos e é associado ao aumento da permeabilidade transversa, resultante da rotação da magnetização em direção ao eixo da amostra. O subsequente decréscimo da impedância com o campo é atribuído a um eixo de anisotropia imposto pelo campo magnético externo que reduz a permeabilidade transversa [63]. Efeitos de anisotropia internos, intrínsecos ou extrínsecos, impedem a rotação de domínios até este valor de campo aplicado. Somente para $H > H_{an}$, a magnetoimpedância indica efetivamente a dominância da polarização DC, evidenciada pela diminuição de intensidade de Z à medida que o campo aplicado aumenta até o efeito de saturação em $H \gg H_{an}$. Quando intrínseco, o campo de anisotropia está associado ao campo cristalino [43, 48, 49].

A dependência de H_{an} com a temperatura é construída a partir dos resultados de impedância em função do campo aplicado em diferentes temperaturas, mostrados nas figuras 6.2, 6.4 e 6.6. Resultados anteriores estabelecidos para o gadolínio [48] mostram que H_{an} comporta-se de modo semelhante à magnetização de saturação, diminuindo com o aumento da temperatura até se anular em T_C .

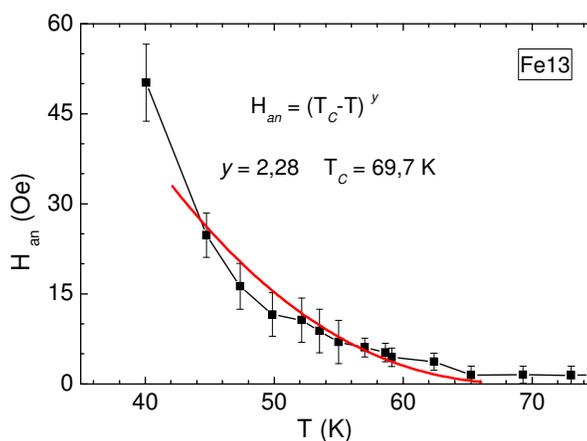


Figura 6.13: Campo de anisotropia em função da temperatura para a liga Fe13 obtido a partir dos resultados de magnetoimpedância na frequência de 200 kHz (figura 6.2). A transição para-ferromagnética é identificada como sendo aproximadamente 70 K.

Na figura 6.13, o campo de anisotropia, H_{an} , é representado em função da temperatura para a liga *Fe13*. Em temperaturas acima de 66 K, H_{an} é praticamente nulo. Abaixo desta temperatura, H_{an} aumenta continuamente à medida que a temperatura é diminuída. Entre 40 K e $T_C = 70$ K, pode-se escrever $H_{an} \cong (T_C - T)^y$, onde $y = 2,3$.

A variação de H_{an} em função da temperatura para a liga *Fe18* é mostrada na figura 6.14. Observa-se que H_{an} tende a zero em $T_C \cong 158$ K. Diminuindo-se a temperatura, H_{an} varia de modo análogo à magnetização de equilíbrio e tende a saturar em torno de 80 K. Porém, abaixo de $T_{irr} \approx 50$ K, H_{an} passa a aumentar fortemente com a diminuição da temperatura. A variação de H_{an} em função de T reproduz o comportamento do campo hiperfino observado por efeito Mössbauer [20, 64]. O efeito do campo hiperfino, e de H_{an} , em temperaturas inferiores a T_{irr} é atribuído ao efeito de *canting*, que caracteriza o rearranjo de spins na fase reentrante.

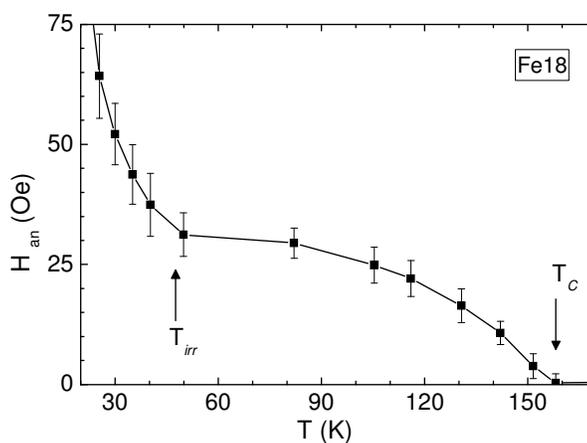


Figura 6.14: Campo de anisotropia em função da temperatura para a liga *Fe18* obtido a partir das medidas de magnetoimpedância na frequência de 100 kHz (figura 6.4). A transição para-ferromagnética em $T_C \approx 158$ K e a transição reentrante em $T_{irr} \approx 50$ K estão indicadas por flechas.

A figura 6.15 mostra H_{an} em função da temperatura para a liga *Fe21*. O comportamento de H_{an} é qualitativamente idêntico àquele observado na liga *Fe18*. Isto mostra que a liga *Fe21* é também reentrante. Neste caso, H_{an} desvia da saturação em $T_{irr} \approx 35$ K. Os resultados das figuras 6.14 e 6.15 mostram que o comportamento de H_{an} em função da temperatura é eficaz para a determinação precisa da temperatura de transição entre a fase ferromagnética e o estado

fundamental vidro de spin. De modo geral, observa-se que a técnica da magnetoimpedância pode ser aplicada, com boa precisão, na identificação de transições de fase magnéticas.

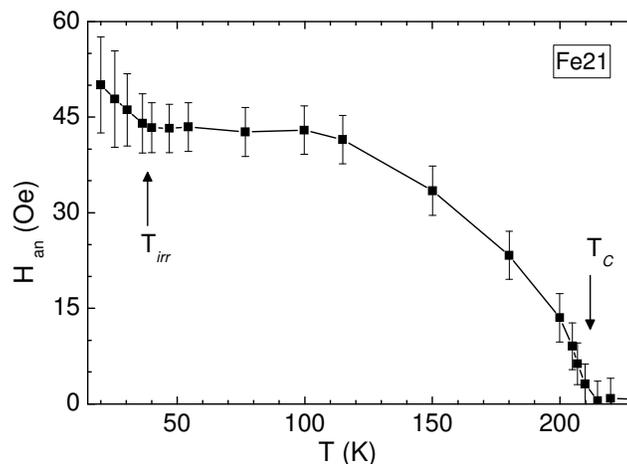


Figura 6.15: Campo de anisotropia em função da temperatura para a liga Fe21 obtido a partir das medidas de magnetoimpedância na frequência de 100 kHz (figura 6.6). A transição para-ferromagnética ocorre em torno de 210 K e transição reentrante em torno de 35 K. Ambas estão assinaladas por flechas.

6.4 O Sistema σ -FeCr

Medidas de impedanciometria na liga Cr46 são apresentadas a seguir. A amostra estudada foi produzida de acordo com os procedimentos descritos no capítulo 3.

6.4.1 Resultados de Impedanciometria

Assim como no sistema Au-Fe, as medidas de $Z \times T$, para a liga Cr46, foram realizadas em frequências entre 1,0 kHz e 1,8 MHz, na ausência de campo magnético aplicado. Somente para a frequência de 1,8 MHz, campos magnéticos foram aplicados. Como nas medidas

realizadas para o sistema $Au-Fe$, a amostra foi resfriada e só então o campo magnético externo foi aplicado.

A figura 6.16 mostra as partes real (resistência, R) e imaginária (reatância, X) da impedância em função da temperatura. Nos painéis (a) e (b) são apresentadas medidas para algumas frequências fixas, sem campo magnético aplicado. Os resultados apresentam valor aproximadamente constante em altas temperaturas até que, em torno de 30 K, o sistema inicia a transição para-ferromagnética, aumentando continuamente a magnitude da impedância até a menor temperatura medida, em torno de 18 K.

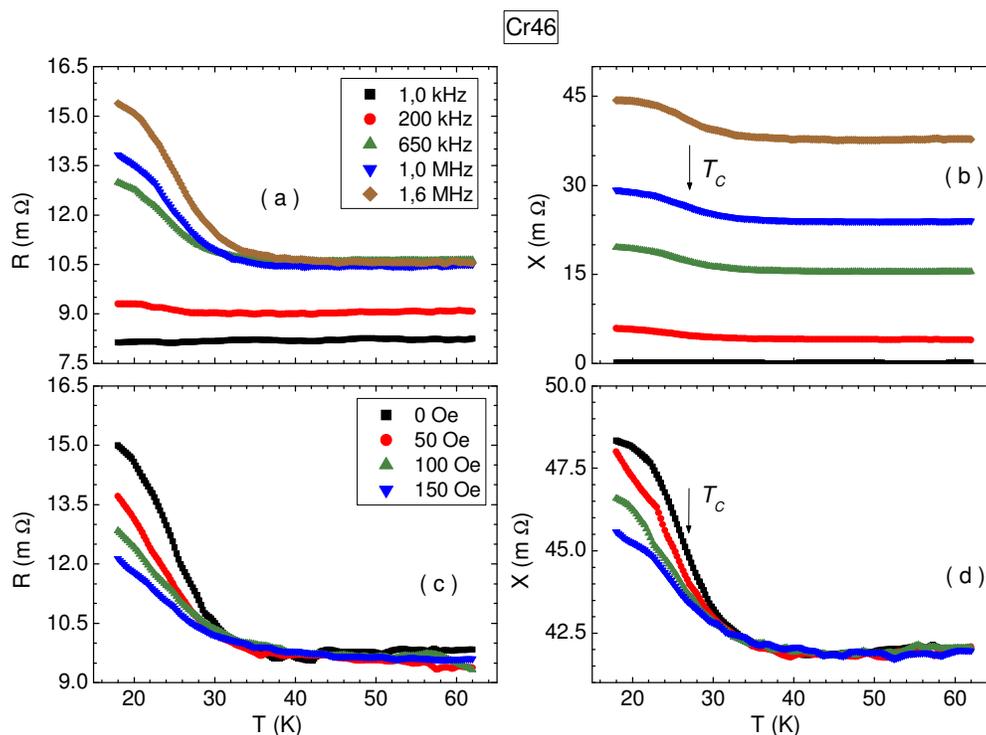


Figura 6.16: Partes real e imaginária da impedância em função da temperatura para a amostra Cr46. (a) Curvas para algumas frequências fixas sem campo magnético aplicado. (b) Curvas para a frequência de 1,8 MHz sob os campos de 0 Oe, 50 Oe, 100 Oe e 150 Oe.

Este aumento na magnitude da impedância com a diminuição da temperatura é compatível com o estabelecimento de ordenamento ferromagnético no sistema. À medida que se aumenta a frequência, a impedância aumenta. Este efeito decorre do aumento linear da reatância indutiva com a frequência e da blindagem eletromagnética em altas frequências de amostras metálicas (efeito *skin*). O efeito da contribuição externa é observado, sobretudo, nas curvas de reatância na região paramagnética. Nos painéis (c) e (d) da figura 6.16, tem-se o

resultado da aplicação de campos magnéticos externos fixos de 0, 50, 100 e 150 Oe, mantendo-se a frequência fixa em 1,8 MHz. Nota-se que, à medida que o campo é aumentado, ocorre uma redução na magnitude da magnetoimpedância espontânea. Resultado similar foi observado no sistema *Au-Fe*.

A figura 6.17 mostra os resultados de magnetoimpedância para a liga *Cr46* na frequência de 400 kHz, em algumas isothermas entre 18 K e 36 K. O campo é excursionado entre -150 Oe e +150 Oe. A anisotropia observada tem origem unidirecional, uma vez que o máximo para campos aplicados negativos ocorre quando o campo está aumentando (-150 Oe a +150 Oe). Enquanto que o máximo para campos aplicados positivos, ocorre quando o campo aplicado está diminuindo (+150 Oe até -150 Oe).

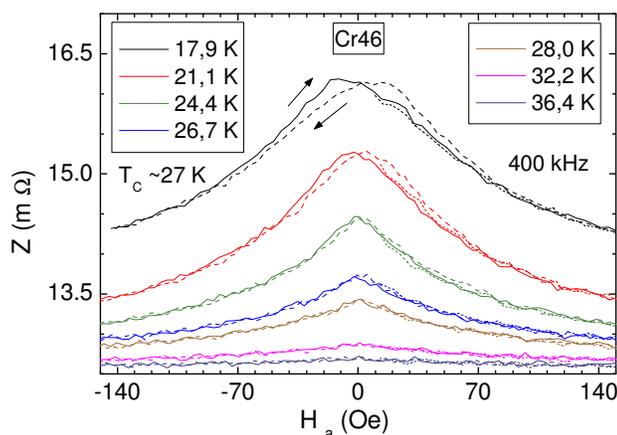


Figura 6.17: Resultados de magnetoimpedância para a liga *Cr46* na frequência de 400 kHz, para algumas isothermas entre 18 K e 37 K.

6.4.2 Análises

6.4.2.1 Permeabilidade Magnética em Função da Temperatura

Seguindo-se os procedimentos descritos na seção 6.2, foi calculada a permeabilidade magnética ($\mu = \mu' + i\mu''$) para a liga *Cr46*, a partir das medidas de $Z \times T$, com base na equação 2.28 e no programa de solução numérica descrito nos apêndices.

A figura 6.18 mostra μ' e μ'' em função da temperatura para a liga *Cr46* nas frequências de 200 kHz, 650 kHz, 1,0MHz e 1,8 MHz sem a presença de campo magnético

externo. Assim como nos casos anteriores, a permeabilidade magnética tem a magnitude diminuída proporcionalmente ao aumento da frequência. O painel (a) mostra $\mu' \times T$, enquanto que, o painel (b) mostra $\mu'' \times T$. Observa-se o comportamento paramagnético em altas temperaturas até que, em torno de 35 K a polarização tipo ferromagnética aumenta a magnitude da permeabilidade, que continua a aumentar até a temperatura mínima estudada. Este comportamento é compatível com a ocorrência da transição para-ferromagnética em torno de 28 K.

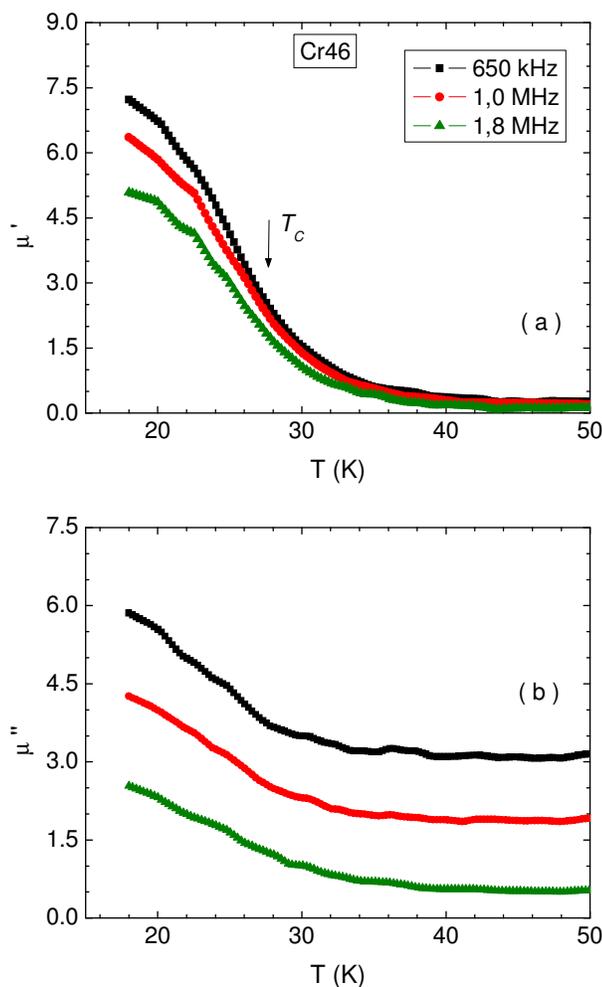


Figura 6.18: Permeabilidade magnética determinada a partir das equações C.2a e C.2b para a liga Cr46 nas frequências de 200 kHz, 650 kHz, 1,0 MHz e 1,8 MHz sem campo magnético aplicado. (a) μ' em função da temperatura. (b) μ'' em função da temperatura.

6.4.2.2 Magnetoimpedância e Campo de Anisotropia

Conforme apresentado na seção 6.4.1, ciclos de magnetoimpedância foram realizados na liga *Cr46*, considerando-se várias isotermas entre 18 K e 36 K. A partir dos ciclos de magnetoimpedância foi extraído o campo de anisotropia, H_{an} , a partir da posição dos máximos de magnitude em Z .

Na figura 6.19, tem-se H_{an} em função da temperatura na frequência de 400 kHz. Em temperaturas acima de 28 K, H_{an} torna-se constante e próximo de zero. Diminuindo-se a temperatura H_{an} sofre aumento de intensidade e, tal qual a magnetização espontânea, tende a saturar em 24 K. Porém, em 21 K ocorre um aumento sistemático em H_{an} que persiste até as mais baixas temperaturas estudadas.

Conforme apresentado no capítulo 4, esta liga apresenta uma fase paramagnética em altas temperaturas, um estado intermediário tipo ferromagnético e, em baixas temperaturas, o sistema reentra para um estado desordenado tipo vidro de spin. Assim como ocorre no sistema *Au-Fe*, o campo H_{an} apresenta significativas mudanças de comportamento nas temperaturas em que ocorrem as transições de fase magnéticas, indicando que a técnica da magnetoimpedância é eficiente na identificação de transições de fase magnéticas. Em particular, o campo H_{an} mostra de forma clara a transição entre o estado intermediário ferromagnético e o estado de baixa temperatura do tipo vidro de spin.

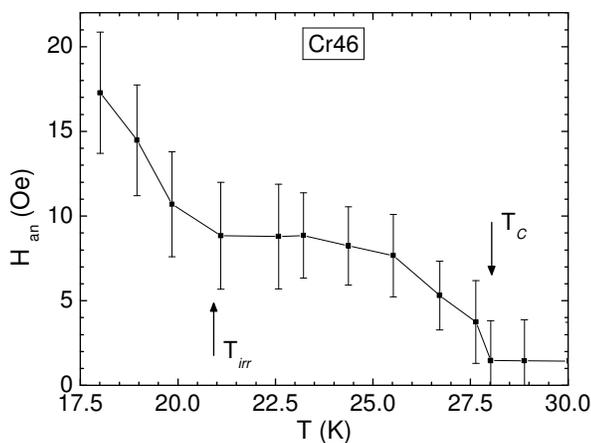


Figura 6.19: Campo de anisotropia em função da temperatura para a liga *Cr46* obtido a partir das medidas de magnetoimpedância na frequência de 400 kHz (figura 6.17). A transição para-ferromagnética ocorre em torno de 28 K enquanto que, a transição reentrante, em torno de 21 K.

O comportamento de H_{an} no sistema $Cr46$ é totalmente análogo àquele observado nas ligas $Fe18$ e $Fe21$. Assim, o resultado na figura 6.19 constitui-se numa evidência suplementar da natureza magnética reentrante da liga $\sigma-Fe_{0,54}Cr_{0,46}$.

6.5 Comparação Entre os Resultados de Magnetização e de Impedanciometria

De forma semelhante ao observado nas medidas de magnetização apresentada nos capítulos 4 e 5, foi possível identificar as transições de fase magnéticas e avaliar os parâmetros críticos relativos à transição para-ferromagnética com a técnica de impedanciometria nos sistemas reentrantes estudados.

A figura 6.20 apresenta a comparação entre os resultados de $M \times T$, em preto, obtidos de acordo com o procedimento ZFC, e $Z \times T$, em vermelho, para uma frequência fixa, sem campo magnético aplicado para todos os sistemas estudados. As analogias entre o comportamento das duas grandezas em relação à temperatura são evidentes. Tanto a magnetização quanto a magnetoimpedância espontânea revelam o estabelecimento do ordenamento ferromagnético, bem como a ocorrência do fenômeno da reentrância a um estado desordenado, em baixas temperaturas, em todos os sistemas estudados nesta Tese.

No painel (a) da figura 6.20, nota-se um aumento significativo da magnetização desde 15 K até 45 K, incluindo a anomalia que indica a posição de T_{irr} . Após passar por um máximo, a magnetização mostra uma transição suave ao estado paramagnético em torno de 80 K. A magnitude da impedância também passa por um máximo, relativamente mais estreito, antes de se anular de modo mais abrupto na transição para-ferromagnética. A mudança de regime na magnetização, em $T_{irr} \sim 25$ K, coincide aproximadamente com o aparecimento do efeito de magnetoimpedância espontânea na região de baixas temperaturas. No painel (b) tem-se os resultados para a liga $Fe18$. Observa-se a transição ao estado vidro de spin em $T_{irr} \sim 50$ K, e T_C em torno de 156 K, em ambas as técnicas. A transição para-ferromagnética é mais marcante na medida de impedância. No painel (c) são mostrados os resultados para a liga $Fe21$. Novamente, observa-se que, T_{irr} e T_C são coincidentes em ambas as técnicas, com a transição para-ferromagnética mais marcante na técnica de impedância.

No painel (d) da figura 6.20, observa-se os resultados para a liga *Cr46*. A temperatura de transição do estado paramagnético é coincidente em ambas as técnicas. Neste caso, no entanto, não se identifica a posição de T_{irr} .

Com base na figura 6.20, e nas análises apresentadas, é possível afirmar que a técnica de impedanciometria é eficaz na identificação de transições de fase magnéticas, bem como na identificação das respectivas temperaturas, entretanto o estudo dos parâmetros críticos necessita ser encarado com certa cautela, uma vez que possui menor precisão que nas análises de susceptibilidade. Porém, o fato de a resposta da impedância envolver somente campos internos, viabiliza a utilização da técnica, uma vez que o campo desmagnetizante não possui relevância nos resultados, enquanto que a técnica de magnetização é fortemente influenciada, conforme é discutido no apêndice A.

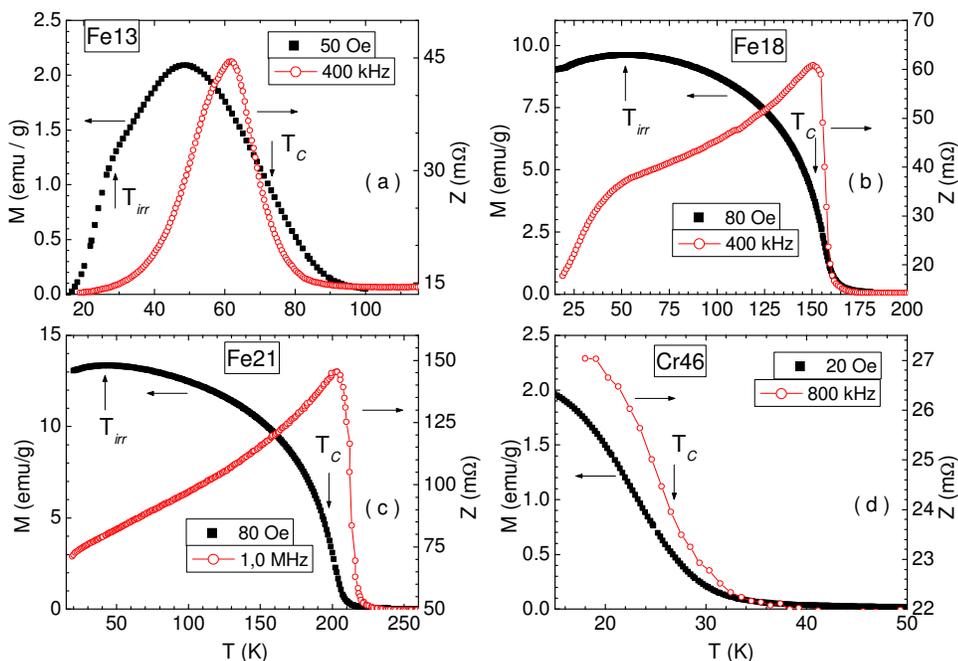


Figura 6.20: Comparação entre os resultados de magnetização ZFC (pontos pretos) e de impedanciometria (pontos vermelhos). (a) Liga Fe13. Magnetização no campo aplicado de 50 Oe. Impedância na frequência de 400 kHz. (b) Liga Fe18. Magnetização no campo aplicado de 80 Oe. Impedância na frequência de 400 kHz. (c) Liga Fe21. Magnetização no campo aplicado de 80 Oe. Impedância na frequência de 1,0 MHz. (d) Liga Cr46. Magnetização ZFC no campo aplicado de 20 Oe. Impedância na frequência de 800 kHz.

CONCLUSÕES

Esta Tese consiste de um estudo experimental sobre a fenomenologia crítica e a resposta frente a correntes AC de sistemas magnéticos reentrantes. Medidas detalhadas de magnetização em função da temperatura e do campo magnético aplicado permitem a obtenção dos expoentes críticos β , γ e δ característicos da transição entre os estados para e ferromagnético. Por outro lado, estudos de impedanciometria, inéditos em sistemas reentrantes, além de fornecer informações sobre o comportamento crítico nas vizinhanças da temperatura de Curie, evidenciam a ocorrência da transição de fase ferromagnética para o estado fundamental tipo vidro de spin.

Os sistemas estudados são as ligas metálicas $\sigma\text{-Fe}_{1-x}\text{Cr}_x$, onde $x = 0,46$ e $0,49$, $\sigma\text{-Fe}_{0,52}\text{V}_{0,48}$ e $\text{Au}_{1-y}\text{Fe}_y$, onde $y = 0,135$, $0,15$, $0,18$ e $0,21$. O caráter reentrante das ligas da fase sigma, $\sigma\text{-FeCr}$ e $\sigma\text{-FeV}$, foi, pela primeira vez, evidenciado nos estudos aqui reportados.

A partir dos resultados experimentais de magnetização, cuidadosamente corrigidos pelos efeitos do campo desmagnetizante, e utilizando-se os métodos de Kouvel-Fisher, de Arrot-Noakes, da isoterma crítica e da equação de estado associada à técnica do método de escala, foi realizado um estudo detalhado dos parâmetros críticos associados à transição de fase para-ferromagnética de todos os sistemas acima citados. A tabela 7.1 apresenta os resultados obtidos para os expoentes críticos estáticos e as temperaturas críticas. Na mesma tabela são reportados resultados obtidos por outros autores em diferentes sistemas magnéticos reentrantes. Também listados estão os expoentes experimentalmente obtidos para um vidro de spin típico e valores calculados com a técnica do grupo de renormalização para a transição ferromagnética descrita pela classe de universalidade do modelo 3D-Heisenberg, no caso ordenado.

Tabela 7.1: Comparação entre alguns expoentes críticos existentes na literatura com os valores encontrados nesta Tese. * Valores calculados de acordo com a relação de Rushbrooke (equação 2.12b).

Sistema	T_C (K)	α	β	γ	δ	Ref.
$Au_{0,865}Fe_{0,135}$	76,8	-1,1*	0,60	1,84	3,92	Este trabalho
$Au_{0,85}Fe_{0,15}$	92,1	1,7*	0,94	1,81	2,91	Este trabalho
$Au_{0,82}Fe_{0,18}$	155,6	-0,6*	0,46	1,70	4,89	Este trabalho
$Au_{0,79}Fe_{0,21}$	204,5	-0,7*	0,47	1,77	4,83	Este trabalho
$Au_{0,81}Fe_{0,19}$	174	-0,7*	0,54	1,64	4,73	15
$Ni_{0,78}Mn_{0,22}$	227	-0,8*	0,55	1,71	4,61	15
$Ni_{0,79}Mn_{0,21}$	281			1,71		15
$Fe_{0,92}Zr_{0,08}$	174,6		0,62	1,92	5,82	65
$Fe_{0,92}Zr_{0,08}$	186		0,66	1,76		15
$Fe_{0,90}Zr_{0,10}$	227,6		0,56	1,87	4,84	65
$Eu_{0,7}Sr_{0,2}S_{0,5}Se_{0,5}$			0,44	1,84	5,0	66
$(PdFe)Mn$			0,53	1,64	4,1	67
$\sigma\text{-}FeCr_{0,46}$	27	-2,3*	1,38	1,54	2,07	68
$\sigma\text{-}FeCr_{0,49}$	5	-0,9*	0,69	1,48	3,20	Este trabalho
$\sigma\text{-}FeV_{0,48}$	42	-1,6*	0,96	1,61	2,61	68
$Ag\text{-}Mn$		-2,2	1,00	2,20	3,10	69
3D-Heisenberg		-0,13	0,37	1,40	4,78	8

Os valores reportados na tabela 7.1 demonstram, sem ambiguidade, que os expoentes críticos característicos da transição ferromagnética dos sistemas reentrantes são distintos daqueles calculados e observados em ferromagnetos ordenados. Isto significa que a desordem é relevante nos sistemas reentrantes e afeta a fenomenologia crítica destes sistemas. Observa-se, além disso, que os valores obtidos para os expoentes críticos estáticos são intermediários entre aqueles dos ferromagnetos ordenados clássicos e os valores anômalos da transição vidro de spin. Este efeito sugere que a desordem, nos sistemas reentrantes, é acompanhada de frustração, mesmo na fase tipo ferromagnética.

Dadas as variações observadas nos valores dos expoentes não se pode afirmar que uma única classe de universalidade caracterize a transição ferromagnética nos sistemas reentrantes.

O expoente da susceptibilidade oscila em torno do valor médio $\gamma = 1,7 \pm 0,1$. Esta média é tomada sobre todos os valores reportados na tabela 7.1. Por outro lado, os valores encontrados para β oscilam em torno de dois valores médios característicos. Um deles é $\beta_1 = 0,56 \pm 0,08$. O outro valor, $\beta_2 = 1,1 \pm 0,2$, corresponde à média dos três sistemas: a liga $Au_{0,85}Fe_{0,15}$ e as fases sigma $\sigma-Fe_{0,54}Cr_{0,46}$ e $\sigma-Fe_{0,52}V_{0,48}$. É interessante constatar que o valor de β_2 é característico dos vidros de spin. Também notável é o fato de que $\beta_2 \cong 2 \beta_1$.

A dispersão dos valores reportados para δ é um pouco maior. Porém os dados também podem ser apresentados em torno de dois valores médios, tal como ocorre com β . Assim, para a maioria dos sistemas listados na tabela 7.1, tem-se $\delta_1 = 4,6 \pm 0,7$. Este é um valor próximo ao esperado para a transição ferromagnética clássica. Porém, para os três sistemas anteriormente identificados, obtém-se $\delta_2 = 2,5 \pm 0,5$, que está próximo do valor típico para a transição vidro de spin.

É interessante constatar que a relação de Widom é respeitada, dentro da imprecisão experimental, para ambos os conjuntos de expoentes. Isto permite supor que as demais leis de escala também são respeitadas. Assim, a relação de Rushbrooke foi usada para estimar os valores de α na tabela 7.1.

Outro resultado importante desta Tese é a observação de que o escalonamento CHT, no qual a temperatura reduzida é suposta como $\tau = (T - T_C)/T$ é muito superior para descrever o comportamento crítico da susceptibilidade magnética ($T > T_C$) nos sistemas de fase sigma, com expoentes críticos estáticos do tipo, β_2 e δ_2 . Nos demais sistemas, o escalonamento convencional, em que a temperatura reduzida é $t = (T - T_C)/T_C$ é mais adequado para a descrição da fenomenologia crítica tanto acima quanto abaixo de T_C . O caso do sistema $\sigma-Fe_{0,51}Cr_{0,49}$ é peculiar, pois a transição parece ser afetada pela vizinhança de um ponto crítico quântico.

Amostras das ligas $Fe13$, $Fe18$, $Fe21$ e $Cr46$ foram estudadas com a técnica de impedanciometria, que revelou ser potencialmente útil na determinação das temperaturas da transição para-ferromagnética, em temperaturas superiores e, em baixas temperaturas, a transição crítica reentrante. A utilização desta técnica para o estudo dos sistemas magnéticos reentrantes é inédita. O estudo dos campos de anisotropia em função da temperatura, obtidos a partir das medidas de magnetoimpedância em função do campo aplicado revela, de forma clara, a ocorrência da transição de fase ferromagnética para o estado fundamental vidro de spin. As componentes real e imaginária da permeabilidade magnética circunferencial foram

obtidas das medias de impedância em função da temperatura. Nas ligas *Fe13*, *Fe18* e *Fe21*, aplicamos o método K-F nos resultados da parte real da permeabilidade e encontramos expoentes n_1 e n_2 em concordância com os obtidos através de medidas magnéticas.

De forma geral, os resultados obtidos nesta Tese, tanto do ponto de vista da fenomenologia crítica quanto da resposta às correntes AC, mostram que os efeitos de desordem não trivial, decorrente da frustração magnética e associada ao efeito de *canting* dos momentos magnéticos, são importantes na caracterização microscópica dos sistemas reentrantes. Assim, a desordem não trivial deve ser encarada como um parâmetro relevante para a transição da termodinâmica destes sistemas.

A Tese reporta, pela primeira vez, a caracterização das ligas *Fe-Cr* e *Fe-V*, na fase sigma, em termos do comportamento magnético reentrante. Nesta Tese também é demonstrada a potencialidade da técnica de impedanciometria no estudo de sistemas magnéticos reentrantes.

APÊNDICES

Introdução

Nos apêndices são apresentadas as discussões e considerações necessárias para realizar as análises apresentadas nos capítulos 4, 5 e 6.

No apêndice A é apresentado a influência do campo desmagnetizante nos resultados experimentais de magnetização. No apêndice B, têm-se informações relevantes à utilização do programa FEMM e o cálculo da contribuição externa nos resultados de impedância. No apêndice C é mostrada a rotina matemática necessária para o cálculo da permeabilidade magnética a partir dos resultados experimentais de impedância em função da temperatura.

A. O Campo Desmagnetizante e o Fator de Desmagnetização

Se um material magnetizável é introduzido em um campo magnético, pólos magnéticos são induzidos nos extremos da amostra, conforme a figura A.1. Estes pólos, por sua vez, são responsáveis pela produção de um campo magnético, antiparalelo à magnetização na amostra. Este campo é conhecido como campo desmagnetizante, de forma que

$$\vec{H}_a = \vec{H}_i + \vec{H}_d \quad , \quad (A.1)$$

onde H_a é a intensidade do campo magnético externo, H_i é a intensidade do campo magnético interno da amostra e H_d é a intensidade do campo desmagnetizante da amostra.

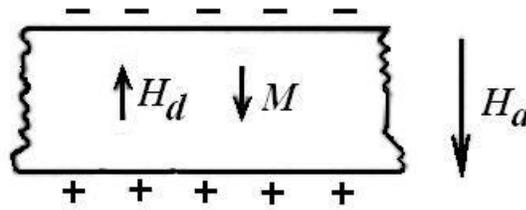


Figura A.1: Distribuição de polos livres em um material magnetizado [56].

Em amostras com formato regular, o campo desmagnetizante é proporcional à magnetização, então

$$H_d = -\eta M \quad , \quad (A.2)$$

onde η é o fator de desmagnetização, que depende da geometria da amostra.

Num material magnético, o campo desmagnetizante atua no sentido oposto à magnetização e, portanto, tende a diminuir o campo interno H_i em relação ao valor do campo aplicado.

Num caso extremo em que um filme é orientado perpendicularmente ao campo magnético aplicado (figura A.1) temos, pela Lei de Gauss, que o campo desmagnetizante é $H_d = -M$, o que implica em $\eta = 1$. No outro extremo, se o plano do filme é colocado paralelamente ao campo magnético, a distância entre os polos livres é suficiente para gerar o campo desmagnetizante muito fraco. Desta forma, se o filme for suficientemente longo, $\eta = 0$. Conclui-se assim, que o fator de desmagnetização está associado à geometria da amostra.

Amostras com formatos irregulares produzem magnetização não uniforme, fazendo com que o campo desmagnetizante também não seja uniforme. Nestas circunstâncias não é possível determinar o fator de desmagnetização qualitativamente. Em amostras com formato elipsoidal (figura A.2a), no entanto, a magnetização é uniforme e, conseqüentemente, o cálculo do fator de desmagnetização torna-se possível [27,56, 57, 70].

Escolhendo-se o semieixo maior a , paralelo ao campo magnético aplicado, de forma que o elipsóide seja um esferóide oblato ($a = b > c$) (figura A.2b), o fator de desmagnetização, ao longo do eixo a , é dado por [27,57, 70]

$$\eta_a = \frac{1}{2(m^2 - 1)} \left[\frac{m^2}{\sqrt{m^2 - 1}} \operatorname{sen}^{-1} \left(\frac{\sqrt{m^2 - 1}}{m} \right) - 1 \right] , \quad (\text{A.3})$$

onde $m = a / c$.

Ou, escolhendo um esferóide prolato ($a > b = c$) (figura A.2c), o fator de desmagnetização será [27,57, 70]

$$\eta_a = \frac{1}{m^2 - 1} \left[\frac{m}{2\sqrt{m^2 - 1}} \ln \left(\frac{m + \sqrt{m^2 - 1}}{m - \sqrt{m^2 - 1}} \right) - 1 \right] . \quad (\text{A.4})$$

Entretanto, para um elipsóide com semieixos $a > b \gg c$ e supondo o campo magnético aplicado paralelamente ao semieixo a , o fator de desmagnetização é dado de acordo com [56]

$$\eta = \frac{\pi c}{4a} \left[1 - \frac{a-b}{4a} - \frac{3}{16} \left(\frac{a-b}{a} \right)^2 \right] . \quad (\text{A.5})$$

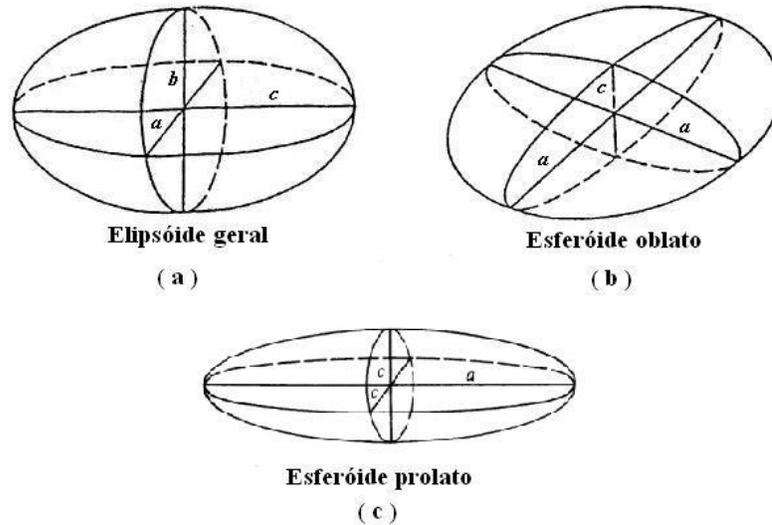


Figura A.2: (a) Elipsóide geral com semieixos $a > b > c$. (b) Esferóide oblato. Semieixos maiores $a = b$ e semieixo menor c . (c) Esferóide prolato. Semieixo maior a e semieixos menores b e c iguais [70].

O fator de desmagnetização também pode se obtido por meio do gráfico apresentado na figura A.3.

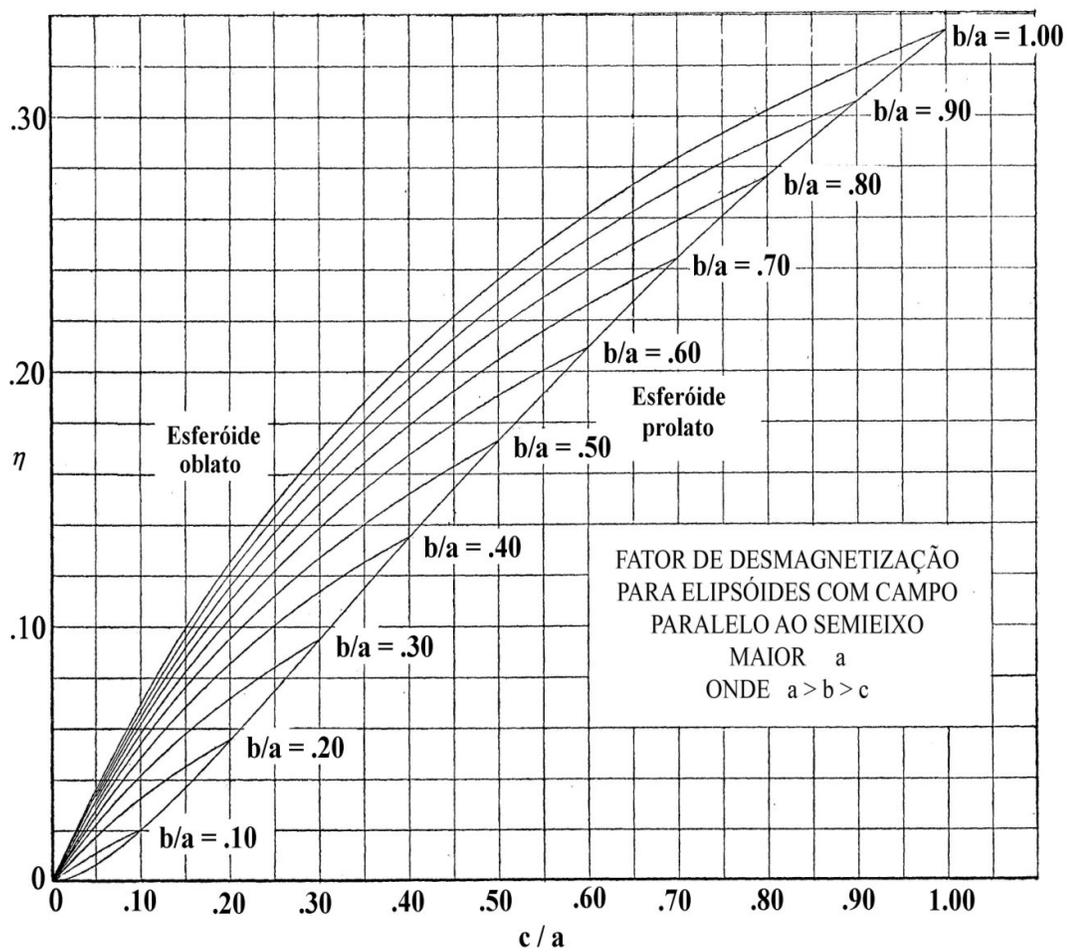


Figura A.3: Fator de desmagnetização para elipsóides prolato e oblato com semieixo maior paralelo ao campo magnético aplicado [57].

B. O programa FEMM e o Cálculo da Contribuição Externa

No apêndice B apresentamos as considerações pertinentes ao cálculo da contribuição externa à impedância experimental, com o auxílio do programa FEMM.

B.1 O Programa FEMM

O programa FEMM (*Finite Element Method Magnetics*) [71] é um excelente recurso computacional, utilizado na simulação e solução de problemas de natureza eletromagnética, por meio do método de elementos finitos.

A base do método está em se subdividir o espaço físico simulado em regiões menores, os chamados “elementos”. Estes podendo possuir formatos variados como triângulos, tetraedros ou outras formas que permitam preencher todo o espaço físico simulado. Esta subdivisão em elementos torna o problema de mais fácil solução, apesar de possuir uma grande quantidade de equações a serem resolvidas. Assim sendo, a escolha adequada do tamanho da malha utilizada para a formação dos elementos define a precisão da solução do problema pretendido, que se baseia nas equações de Maxwell para o potencial vetor. Na figura *B.1* tem-se a interface do programa com a simulação de uma amostra e a malha calculada pelo FEMM.

Para que o FEMM encontre a solução do problema proposto, é necessário informar o tamanho da malha, os parâmetros dos materiais de cada região, como por exemplo, a permeabilidade paramagnética e a condutividade elétrica, σ . Faz-se necessário informar ainda a frequência e a intensidade da corrente de sonda que atravessa a amostra e também regular a profundidade do ambiente a ser considerado.

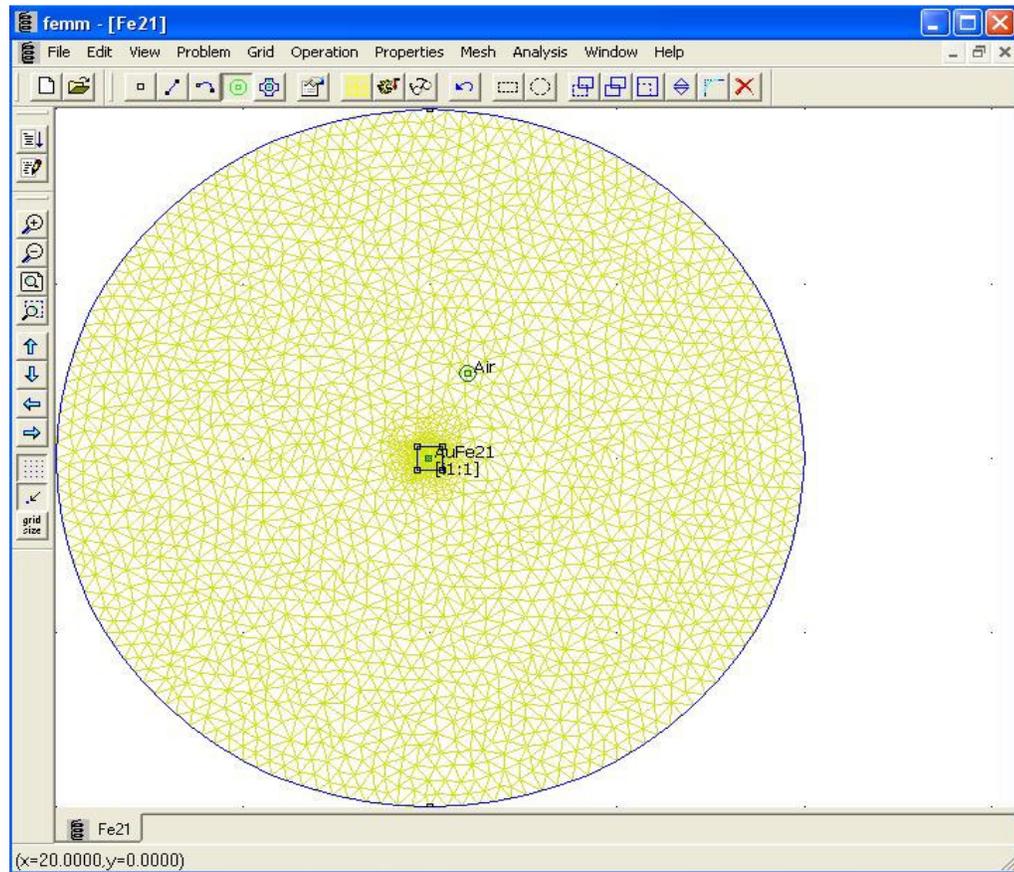


Figura B.1: Simulação da seção reta da amostra Fe21, no centro do círculo. O círculo externo é a fronteira de cálculo do programa ($A = 0$) e o ambiente no entorno da amostra. A malha, calculada pelo FEMM, também é mostrada. Nesta simulação os parâmetros utilizados foram: $\mu = 1$, $\sigma = 0,7156 \text{ MS/m}$ e $f = 100 \text{ kHz}$.

A solução apresentada pelo FEMM oferece diversas informações como: a distribuição da densidade de corrente em um código de cores definido pelo programa, as equipotenciais do potencial vetor (figura B.2), as partes real e imaginária da impedância e as intensidades do campo magnético envolvido.

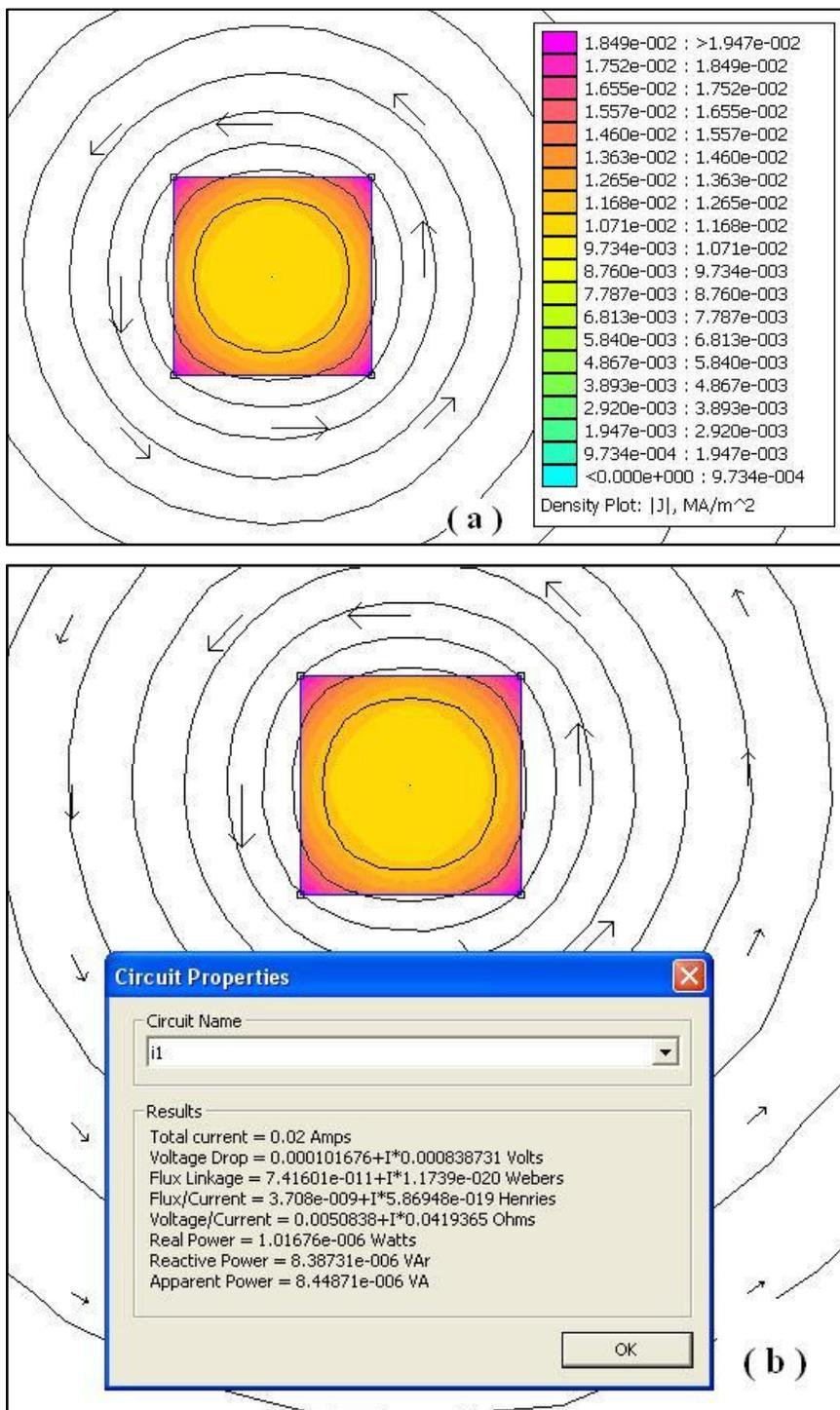


Figura B.2: Simulação para a amostra Fe21, na frequência de 1,8 MHz e corrente de 20 mA. (a) Nota-se o efeito skin através das cores da densidade de corrente. Os círculos são as equipotenciais do potencial vetor e as setas indicam o sentido do campo magnético induzido pela corrente AC. (b) Solução do problema proposto ao FEMM.

B.2 A estimativa da Contribuição Externa nos Resultados de Impedância

Conforme apresentado na seção 2.3, os resultados experimentais da impedância complexa são compostos por uma parte real, que representa a componente dissipativa do sistema, e uma parte imaginária, que é devida à componente indutiva ($Z = R + iX$). A parte imaginária da impedância, por sua vez, é composta pela contribuição intrínseca da amostra, X^* , e a contribuição extrínseca, X_{ex} , decorrente do meio no qual a amostra está imersa. Assim, é necessário corrigir os resultados experimentais para a reatância indutiva, X_{am} , extraindo-se a contribuição externa, ou seja

$$X^* = X_{am} - X_{ex} \quad . \quad (B.1)$$

A contribuição externa não pode ser descontada diretamente dos resultados, pois ela não é medida diretamente. Por este motivo, o programa FEMM é utilizado para simular uma situação idêntica ao experimento real, com as mesmas condições investigadas. A partir do programa FEMM e de um resultado realizado na fase paramagnética ($T > T_C$), é possível avaliar a contribuição externa em determinada temperatura e frequência. Supondo que a contribuição externa seja independente da temperatura, é possível descontá-la dos resultados experimentais.

Conforme apresentado na seção B.1, para se realizar a simulação no FEMM é necessário introduzir alguns parâmetros no programa, entre eles, a condutividade elétrica do material investigado.

Um fator relevante a ser considerado é que, para um paramagneto ideal, a permeabilidade magnética vale $\mu = 1$. As amostras se aproximam desta situação à medida que a temperatura se afasta da temperatura de transição crítica, ou seja, em $T \gg T_C$. Assim sendo, as constantes a serem consideradas na simulação, foram obtidas a partir dos resultados experimentais nesta região de temperatura.

Como se pretende corrigir a contribuição externa nos resultados experimentais de impedância, e como o programa FEMM necessita de um ambiente nas proximidades da amostra simulada, procedeu-se na simulação de uma amostra com as mesmas condições da situação real.

Devido a necessidade de se considerar o ambiente externo à amostra no programa FEMM, a resposta da simulação também necessita de uma pequena correção, realizada a partir das seguintes considerações [59]:

Seja

$$X_{FEMM} = X_{am}^{sim} + iX_{ext}^{sim} \quad , \quad (B.2)$$

a reatância indutiva simulada pelo FEMM, de forma que X_{am}^{sim} é a reatância intrínseca simulada e X_{ext}^{sim} é a respectiva contribuição externa.

Ao se considerar a permeabilidade puramente imaginária, a reatância calculada na simulação é devida unicamente à contribuição externa simulada, uma vez que

$$(X_{am}^{sim})_{\mu \text{ imaginário}} \equiv 0$$

e então, tem-se a reatância indutiva intrínseca da amostra simulada

$$X_{am}^{sim} = X_{FEMM}(\mu = 1) - X_{FEMM}(\mu \text{ imaginário}) \quad .$$

Supondo que, em $T \gg T_C$, a amostra real possui permeabilidade magnética $\mu = 1$, X_{am}^{sim} deve ser o valor aproximado da reatância indutiva intrínseca da amostra, para uma frequência específica, na temperatura investigada.

Uma vez conhecida a reatância intrínseca da amostra, a contribuição externa da reatância experimental, X_{ex} , pode ser estimada descontando-se a reatância simulada corrigida, do valor experimental na frequência e na temperatura correspondentes à simulação

$$X_{ex} = X_{am}(T \gg T_C) - X_{am}^{sim} \quad . \quad (B.3)$$

Se a contribuição externa é invariante na temperatura, a constante, determinada em B.3, pode ser descontada de toda a curva experimental da reatância na mesma frequência estudada, conforme a equação B.1. Tem-se assim, o resultado da reatância indutiva corrigida para que se possa extrair a permeabilidade magnética a partir dos resultados experimentais de impedância.

Como exemplo da estimativa da contribuição externa, procedemos no cálculo de X_{ex} para a amostra *Fe21* com $f = 1,0$ MHz e $T = 265$ K. O resultado encontrado foi estimado em $X_{ex} \sim 21$ m Ω . Valor nada desprezível, uma vez que, de acordo com os resultados experimentais, apresentados na seção 6.3.1 do capítulo 6, a reatância medida, na frequência e temperatura mencionadas, é da ordem de 50 m Ω .

C. A Obtenção da Permeabilidade Magnética Inicial a partir dos Resultados de Impedância em Função da Temperatura

Neste apêndice apresentamos as considerações e rotinas necessárias para o cálculo da permeabilidade magnética a partir dos resultados corrigidos da impedância em função da temperatura.

A permeabilidade magnética contém importantes informações sobre as propriedades magnéticas dos materiais e pode ser deduzida a partir de previsões teóricas de Landau [40]. Entretanto, as soluções apresentadas por Landau contemplam materiais com geometria laminar infinita ou fio cilíndrico de raio a . Nos estudos apresentados nesta Tese, as amostras analisadas possuem formato de paralelepípedo, com seção reta quadrada, dessa forma, não seria possível extrair a permeabilidade magnética a partir dos resultados de impedância. Porém, estudos detalhados de L. A. Borba [59], indicam que amostras com seção reta quadrada podem ser avaliadas à luz da previsão teórica de Landau, desde que se considere que a aresta da seção reta da amostra seja tomada como o diâmetro da seção reta circular na equação de Landau (equação 2.25), dada por

$$Z = \frac{1}{2} R_{DC} k a \frac{Y_0(ka)}{Y_1(ka)} \quad , \quad (2.25)$$

onde $R_{DC} = l/a^2\pi\sigma$ é a resistência em frequência nula, $Y_0(ka)$ e $Y_1(ka)$ são funções de Bessel e $k = (1 + i)/\delta$. O comprimento de penetração é $\delta = \sqrt{\rho/\pi\mu\mu_0 f}$.

O erro nesta aproximação foi estimado ser menor que 10%.

Substituindo-se k e δ na equação 2.25, obtém-se

$$\frac{Z}{R_{DC}} = (1 + i) \sqrt{a^2\pi\mu\mu_0/\rho_{DC}\sqrt{f}} \frac{Y_0\left((1 + i)\sqrt{a^2\pi\mu\mu_0/\rho_{DC}\sqrt{f}}\right)}{2Y_1\left((1 + i)\sqrt{a^2\pi\mu\mu_0/\rho_{DC}\sqrt{f}}\right)} \quad (C.1)$$

onde $\rho_{DC} = R_{DC} a^2\pi/l$ é a resistividade da amostra em frequência nula. Porém, não sendo possível realizar medidas nesta condição, ρ_{DC} é obtido a partir de uma medida em baixa frequência, onde $X \rightarrow 0$.

Aqui é relevante considerar que $Z = R - iX^*$, onde R é a resistência, medida diretamente, e X^* é a reatância indutiva, corrigida pela contribuição externa (ver apêndice B).

Substituindo as grandezas f , μ_0 , a e ρ_{DC} na equação C.1, e levando em conta a definição da impedância, é possível escrever um sistema de duas equações transcendentais (equações C.2a e C.2b), cujas soluções estão vinculadas às incógnitas: μ' (parte real da permeabilidade) e μ'' (parte imaginária da permeabilidade), de forma que $\mu = \mu' + i\mu''$.

$$\frac{R}{R_{DC}} = \text{Re} \left[(1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \frac{Y_0 \left((1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)}{2Y_1 \left((1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)} \right] \quad (C.2a)$$

$$\frac{X^*}{R_{DC}} = \text{Im} \left[(1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \frac{Y_0 \left((1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)}{2Y_1 \left((1 + i) \sqrt{a^2 \pi \mu \mu_0 / \rho_{DC} \sqrt{f}} \right)} \right], \quad (C.2b)$$

Estas equações necessitam de um método numérico para serem resolvidas, assim, desenvolveu-se uma rotina matemática com o auxílio de um programa de iterações numéricas. O programa permite que sejam inseridos os resultados de R^* , X^* e R_{DC} . Porém, para que a solução possa ser obtida, é necessário introduzir uma solução tentativa inicial e, a partir desta solução e dos dados experimentais, são executadas iterações numéricas, resolvendo as equações C.2a e C.2b simultaneamente e gerando, ao final, um arquivo de colunas contendo os valores de μ' e μ'' .

Na figura C.1 tem-se um exemplo da rotina executada pelo programa de iterações para o cálculo da permeabilidade magnética em função da temperatura a partir dos resultados experimentais de impedância.

Calculo da Permeabilidade Magnética em função da Temperatura

Amostra Cr46 - $f = 400\text{kHz}$

```

> restart;
> fd:=fopen("resist.dat",READ,TEXT):
> Rea:=readdata(fd,2):
> fd:=fopen("reat.dat",READ,TEXT):
> Ima:=readdata(fd,2):
> fd:=fopen("dc.dat",READ,TEXT):
> RDC:=readdata(fd,2):
> for i from 1 by 1 to 176 do
> Freq:=400000:
> Reaa:=Rea[i,2];
> Imaa:=Ima[i,2]:
>
> Temp:=Rea[i,1]:
>
> perm:=1.5*I + 2.5:
> a:=(1.22e-3)/2: S:=1.4884e-6: L:=0.00355: G:=S/L:
> muzero:=Pi*4E-07:
> ro:=(RDC[i,2]*G):
> const:=sqrt((a^2*Pi*mu*muzero)/ro):
>
>
Z:=(1+I)*const*sqrt(Freq)*(BesselJ(0,(1+I)*const*sqrt(Freq))/(2*BesselJ(1,(1+I)*const*sqrt(Freq)))):
>
> perm:=fsolve(Z=-Imaa*I+Reaa,mu,complex);
>
> re[i,1]:=Temp;
> re[i,2]:=Re(perm);
> imag[i,1]:=Temp;
> imag[i,2]:=Im(perm);
> i
> od:
> fopen ("mu-400k.dat",APPEND,BINARY):
> for i from 1 by 1 to 176 do
> fprintf("mu-400k.dat", "%e %e %e\n", Rea[i,1],re[i,2],imag[i,2]):
> i
> od:
> fclose("mu-400k.dat");

```

Figura C.1: Rotina do programa de iterações numéricas para o cálculo da permeabilidade em função da temperatura da amostra Cr46 na frequência fixa de 400 kHz.

REFERÊNCIAS

1. **S. G. Magalhães, C. V. Morais, F. M. Zimmer.** Inverse Freezing in the Hopfield Fermionic Ising Spin Glass. *Phys. Rev. B.* 2010, Vol. 81, 014207, pp. 1-9.
2. **I.A. Campbell, K. Hukushima, H. Takayama.** Extended Scaling for Ferromagnets. *Phys. Rev. B.* 2007, Vol. 76, pp. 1-10.
3. **B. R. Coles, B. V. B. Sarkissian, R. H. Taylor.** The Role of Finite Magnetic Clusters in Au-Fe Alloys Near the Percolation Concentration. *Phil. Mag. B.* 1978, Vol. 37, 4, pp. 489 - 498.
4. **V. Canella, J. A. Mydosh.** Magnetic Ordering in Gold-Iron Alloys. *Phys. Rev. B.* 1972, Vol. 6, 11, pp. 4220 - 4237.
5. **K. Binder, A. P. Young.** Spin Glasses: Experimental Facts, Theoretical Concepts and Open Questions. *Rev. Mod. Phys.* October de 1986, Vol. 58, 4, pp. 801-976.
6. **K. H. Fisher, J. A. Hertz.** Spin Glasses. Cambridge: Cambridge University Press, 1991.
7. **V. Dotsenko.** An Introduction to the Theory of Spin Glasses and Neural Networks. s.l.: World Scientific, 1994.
8. **S.K.Ma.** Modern Theory of Critical Phenomena. Colorado: Westview Press, 1976. pp. 1-56.
9. **D.Craik.** Magnetism: Principles and Applications. Chichester: John Wiley & Sons Inc., 1995.
10. **H.E.Stanley.** Introduction to Phase Transition and Critical Phenomena. Oxford: Oxford University Press, 1971.
11. **S. F. Edwards, P. W. Anderson.** Theory of Spin Glasses. *J. Phys. F.* 1975, Vol. 5, pp. 965-974.
12. **D. Sherrington, S. Kirkpatrick.** Solvable Model of a Spin-Glass. *Phys. Rev. Lett.* 1975, Vol. 35, 26, pp. 1792-1796.
13. **J. R. L. de Almeida, D. J. Thouless.** Stability of the Sherrington-Kirkpatrick Solution of a Spin Glass Model. *J. Phys. A: Math. Gen.* 1978, Vol. 11, 5, pp. 983-990.
14. **B.V.B.Sarkissian.** The Appearance of Critical Behavior at the Onset of Ferromagnetism in AuFe Alloys. *J. Phys. F: Metal Phys.* 1981, Vol. 11, pp. 2191-2208.

15. **C. M. Haetinger, L. Ghivelder, J. Schaf, P. Pureur.** Static Critical Exponents of the Ferromagnetic Transition in Spin Glass Re-entrant Systems. *J. Phys: Condens. Matter.* 2009, Vol. 21, 506006, pp. 1-10.
16. **F. P. Rouxinol, G. Z. Gadioli, R. V. Galemo, A. O. dos Santos, L. P. Cardoso, S. Gama, M. A. Bica de Moraes.** Magnetic Properties of Metaestable Gd-Cr Alloys. *J. Magn. Magn. Mater.* 2011, Vol. 323, pp. 2005-2011.
17. **J. S. Kouvel, W. Abdul-Razzaq, Kh. Ziq.** Ferro-Spin-Glass Domain Model for Disordered Ni-Mn. *Phys. Rev. B.* 1987, Vol. 35, 4, pp. 1768-1775.
18. **F. F. Barquín, J. C. Gómez Sal, P. Gorria, J. S. Garitaonandia, J. M. Barandiarán.** Dynamic Susceptibility of Reentrant Fe-Rich Inhomogeneous Amorphous Alloys. *Eur. Phys. Jou. B.* 2003, pp. 3-12.
19. **R. N. Kleiman, I. Maartense, G. Williams.** AC Susceptibility of AuFe Near the Percolation Limit. *Phys. Rev. B.* 1982, Vol. 26, 9, pp. 5241-5244.
20. **L. E. Zamora, G. A. Pérez Alcázar, A. Bohórquez, J. F. Marco.** Magnetic Phase Diagram of the $\text{Fe}_x\text{Mn}_{0.7-x}\text{Al}_{0.3}$ Alloys Series Obtained by Mössbauer Spectroscopy. *Hyp. Interact.* 1997, pp. 177-182.
21. **S. M. Dubiel, K. H. Fischer, Ch. Sauer, W. Zinn.** Influence of an External Magnetic Field on the Reentrant Spin-Glass Transition Temperature in a $\text{Cr}_{75}\text{Fe}_{25}$ Alloy. *Phys. Rev. B.* 1987, Vol. 36, 1, pp. 360-366.
22. **I. A. Campbell, S. Senoussi, F. Varret, J. Teillt, A. Hamzic.** Competing Ferromagnetic and Spin-Glass Order in a AuFe Alloy. *Phys. Rev. Lett.* 1983, Vol. 50, 20, pp. 1615-1618.
23. **M. Gabay, G. Toulouse.** Coexistence of Spin-Glass and Ferromagnetic Orderings. *Phys. Rev. Lett.* 1981, Vol. 47, 3, pp. 201-204.
24. **C.M.Haetinger.** Tese de Doutorado. *Fenomenologia Crítica em Sistemas Magnéticos Reentrantes.* [Orientação: Paulo Pureur]. Porto Alegre, 2010.
25. **P. M. Chaikin, T. C. Lubensky.** Principles of Condensed Matter Physics. Cambridge: Cambridge University Press, 1985.
26. **H.B.Callen.** Thermodynamics and an Introduction to Thermostatistics. New York: John Willey & Sons, Inc., 1985. Vol. 2.
27. **R.M.Bozorth.** Ferromagnetism. New York: Van Nostrand, 1951. pp. 845-850.
28. **M. E. Fisher, J. S. Langer.** Resistive Anomalies at Magnetic Critical Points. *Phys. Rev. Lett.* 1968, Vol. 20, 13, pp. 665-668.
29. **J. K. kim, A. Patrascioiu.** Critical Behavior of the Specific Heat in the Two Dimensional Site Diluted Ising System. *Phys. Rev. Lett.* 1994, Vol. 72, 17, pp. 2785-2788.
30. **X. S. Chang, C. Hohenemser.** Static Critical Behavior of Annealed Disordered Alloys: $\text{Fe}_{1-x}\text{V}_x$. *Phys. Rev. B.* 1988, Vol. 37, 1, pp. 261-268.

31. **A.B.Harris.** Effect of Random Defects on the Critical Behaviour of Ising Models. *J. Phys. C: Solid State Phys.* 1974, Vol. 7, pp. 1671-1692.
32. **J. S. Kouvel, M. E. Fisher.** Detailed Magnetic Behavior of Nickel Near its Curie Point. *Phys. Rev.* 1964, Vol. 136, 6A, pp. 1626-1632.
33. **A. Arrot, J. E. Noakes.** Approximate Equation of State for Nickel Near its Critical Temperature. *Phys. Rev. Lett.* 1967, Vol. 19, 14, pp. 786-789.
34. **M. Sahana, U. K. Rössler, N. Ghosh, S. Elisabeth, H. L. Bhat, K. Dörr, D. Eckert, M. Wolf, K. H. Müller.** Critical Properties of the Double-Exchange Ferromagnet $\text{Nd}_{0.6}\text{Pb}_{0.4}\text{MnO}_3$. *Phys. Rev. B.* 2003, Vol. 68, 144408, pp. 1-6.
35. **G. D. Mukherjee, S. Chakraborty, K. D. D. Rathnayaka, D. G. Naugle, A. K. Majumdar.** Critical Exponents of NiFeV Alloys of the Ferromagnetic-Paramagnetic Phase Transition. *J. Magn. Mater.* 2000, Vol. 214, pp. 185-194.
36. **I. A. Campbell, K. Hukushima, H. Takayama.** Extended Scaling Scheme for Critically Divergent Quantities in Ferromagnets and Spin Glasses. *Phys. Rev. Lett.* 2006, Vol. 97, 117202, pp. 1-4.
37. **I. A. Campbell, P. H. Lundow.** Extended Scaling Analysis of the $S=1/2$ Ising Ferromagnet on the Simple Cubic Lattice. *Phys. Rev. B.* 2011, Vol. 83, 014411, pp. 1-14.
38. **K. Hukushima, I. A. Campbell, H. Takayama.** Extended Scaling Scheme for Critically Divergent Quantities and Critical Exponents of an Ising Spin Glass. *Int. Jou. Mod. Phys.* 2009, Vol. 20, 9, pp. 1313-1323.
39. **F. L. A. Machado, C. S. Martins, S. M. Rezende.** Giant Magnetoimpedance in the Ferromagnetic Alloy $\text{Co}_{75-x}\text{Fe}_x\text{S}_{15}\text{B}_{10}$. *Phys. Rev. B.* 1995, Vol. 51, 6, pp. 3926-3929.
40. **L. D. Landau, E. M. Lifschitz.** *Eletrodynamics of continous media.* Oxford: Pergamon Press, 1960.
41. **L. V. Panina, K. Mohri, T. Uchiyama, M. Noda.** Giant Magneto-Impedance in Co-Rich Amorphous Wires and Films. *IEEE Trans. on Magn.* 1995, Vol. 31, 2, pp. 1249-1260.
42. **J. Hu, H. Qin.** Magnetoimpedance Effect in Fe Flakes. *J. Magn. Mater.* 2002, Vol. 246, pp. 375-378.
43. **B. Hernando, V. M. Prida, M. L. Sanchez, P. Gorria, G. V. Kurlyanskaya, M. Tejedor, M. Vazquez.** Magnetoimpedance Effect in Co-Rich Metallic Glasses. *J. Magn. Mater.* 2003, Vols. 258-259, pp. 183-188.
44. **G. L. F. Fraga, P. Pureur, D. Brandão.** Spontaneous Magnetoimpedance in the Heusler Compounds Pd_2NiMnSn and Pd_2MnSb Near the Curie Temperature. *Solid State Comm.* 2002, Vol. 124, pp. 7-10.
45. **G. M. B. Castro, A. R. Rodrigues, F. L. A. Machado, R. F. Jardim.** Evidence of Dynamical Phase Separation in $\text{La}_{0.6}\text{Y}_{0.1}\text{Ca}_{0.3}\text{MnO}_3$. *J. Magn. Matter.* 2004, Vols. 272-276, pp. 1848-1850.

46. **G. L. F. Fraga, L. A. Borba, P. Pureur.** Impedance and Initial Magnetic Permeability of the Heusler Compounds Pd_2MnSn and Pd_2MnSb Near the Curie Temperature. *Phys. Rev. B.* 2006, Vol. 74, 064427, pp. 1-8.
47. **A. Rebello, C. L. Tan, R. Mahendiran.** Low-Field Magnetoimpedance in $\text{La}_{0.7}\text{Sr}_{0.3}\text{MO}_3$ (M=Mn, Co). *Solid State Comm.* 2009, Vol. 149, 29-30, pp. 1204-1208.
48. **G. L. F. Fraga, P. Pureur, L. P. Cardoso.** Impedance and Initial Magnetic Permeability of Gadolinium. *J. Appl. Phys.* 2010, Vol. 107, 053909, pp. 1-9.
49. **G. L. F. Fraga, R. Barco, P. Pureur.** Impedance and Magnetic Permeability of Soft Ferromagnetic Metals. *J. Supercond. Nov. Magn.* 2010, Vol. 23, pp. 99-102.
50. **J. Cieslak, B. F. O. Costa, S. M. Dubiel, M. Reissner, W. Steiner.** Magnetic Ordering Above Room Temperature in the Sigma-Phase of $\text{Fe}_{66}\text{V}_{34}$. *J. Magn. Magn. Mater.* 2009, Vol. 321, pp. 2160-2165.
51. **J. Cieslak, S. M. Dubiel, J. Zukrowski.** Determination of the Debye Temperature of the σ -Phase Fe-Cr Alloys. *Phys. Rev. B.* 2002, Vol. 65, 212301, pp. 1-3.
52. **J. Cieslak, B. F. O. Costa, S. M. Dubiel, G. Le Caër.** Kinetics of the Sigma-to-Alpha Phase Transformation Caused by Ball Milling in Near Equiatomic Fe-Cr Alloys. *Phys. Rev. B.* 2006, Vol. 73, 184123, pp. 1-7.
53. CALPHAD. Computational Thermodynamics: Calculation of Phase Diagrams Using the CALPHAD Method. [Online em 2006]. [Acessado em 18 de Agosto de 2011]. www.calphad.com.
54. **B. G. Bergman, D. P. Shoemaker.** The Determination of the Crystal Structure of the σ Phase in the Iron-Chromium and Iron-Molybdeium Systems. *Acta Cryst.* 1954, Vol. 7, pp. 857-865.
55. **S. M. Dubiel, B. F. O. Costa.** Intermediate Phases of the α - σ Phase Transition in the FeCr System. *Phys. Rev. B.* 1993, Vol. 47, 18, pp. 12257-12259.
56. **S. Chikazumi.** Physics of Magnetism. N. Y.: John Wiley & Sons, Inc., 1964. pp. 19 - 24.
57. **J.A. Osborn.** Demagnetizing Factors of the General Ellipsoid. *Phys. Rev.* 1945, Vol. 67, 11, 12, pp. 351-357.
58. **L. N. Bulaevskii, M. Ledvij, V. G. Kogan.** Fluctuations of Vortex in Layered High- T_C Superconductors. *Phys. rev. Lett.* 1992, Vol. 197, 1-4, pp. 3773-3776.
59. **L.A. Borba.** Dissertação de Mestrado. *Impedância e Permeabilidade Magnética Inicial dos Compostos Heusler Pd_2MnSn e Pd_2MnSb Próximo da Temperatura de Curie.* [Orientação: Gilberto L. F. Fraga]. Porto Alegre, 2006.
60. **R. Rammel, J. Souletie.** Spin Glasses. [Autor do livro: M. Cyrot. Magnetism of Metals and Alloys]. Grenoble: North-Holland Pub. Co., 1982, pp. 379-486.
61. **A. I. Abramovich, L. I. Koroleva, L. N. Lukina.** Spin-Glass and Reentrant Spin-Glass States in Iron Sulfospinels Having Dilute A and B Sublattices. *Phys. Solid State.* 1999, Vol. 41, 1, pp. 73-79.
62. **G. V. Bazuev, A. V. Korolev.** Magnetic Properties of the $\text{Gd}_2\text{V}_{0.67}\text{Mo}_{1.33}\text{O}_7$ and Y_2VMoO_7 Pyrochlore Compounds. *Phys. Solid State.* 2008, Vol. 50, 1, pp. 43-46.

63. **D. Atkinson, P. T. Squire.** Experimental and Phenomenological Investigation of the Effect of Stress on Magneto-Impedance in Amorphous Alloys. *IEEE Trans. on Magn.* 1997, Vol. 33, 5, pp. 3364-3366.
64. **F. Varret, A. Hamzic, I. A. Campbell.** Spin Canting and Ferromagnetism in a AuFe Alloy: Mössbauer and Magnetic Measurements. *Phys. Rev. B.* 1982, Vol. 26, 9, pp. 5285-5288.
65. **H. Yamauchi, H. Onodera, H. Yamamoto.** Anomalous Critical Behavior of Amorphous $\text{Fe}_{100-x}\text{Zr}_x$ Ferromagnets ($x=8$ and $x=10$). *J. Phys. Soc. Jap.* 1984, Vol. 53, pp. 747-753.
66. **K. Westerholt, G. Sobotta.** Critical Exponents of the Ferromagnetic Solid Solution System $\text{Eu}_x\text{Sr}_{1-x}\text{S}_{0.50}\text{Se}_{0.50}$. *J. Phys. F: Met. Phys.* 1983, Vol. 13, 11, pp. 2371-2388.
67. **H. P. Kunkel, G. Williams.** AC Susceptibility of the Re-entrant System (PdFe)Mn. *J. Magn. Mater.* 1988, Vol. 75, pp. 98-110.
68. **R. Barco, P. Pureur, G. L. F. Fraga, S. M. Dubiel.** Extended Scaling in the Magnetic Critical Phenomenology of the σ -Phase $\text{Fe}_{0.53}\text{Cr}_{0.47}$ and $\text{Fe}_{0.52}\text{V}_{0.48}$ Alloys. *J. Phys. Condens. Matter.* 2012, Vol.24, 046002, pp. 1-8.
69. **H. Bouchiat.** Determination of the Critical Exponents in the AgMn Spin Glass. *Le Jour.de Phys. Coll.* 1986, Vol. 47, p. 71.
70. **B. D. Cullity, C. D. Graham.** Introduction to Magnetic Materials. 2nd. New Jersey: John Wiley & Sons Inc., 2009. pp. 52-62.
71. **D. Meeker.** FEMM - Finite Element Method Magnetics. Versão 4.2 Disponível no site: www.femm.info.