

# 1

## Introdução

O primeiro exemplo da classe de férmions pesados foi observado pela primeira vez em 1975 quando medidas realizadas (1) no composto  $CeAl_3$  em temperaturas abaixo de 300mK revelaram que o coeficiente linear do calor específico a baixas temperaturas era centenas de vezes mais elevado que o valor teórico previsto para metais e ligas comuns.

A faixa de temperaturas em questão (abaixo de 500mK) e o valor obtido mostravam que a contribuição eletrônica para o calor específico neste composto era muitas vezes maior que o valor previsto pela teoria de elétrons livres. Isto significava, indiretamente, que a massa efetiva dos elétrons no  $CeAl_3$  parecia ser centenas de vezes maior que nos metais até então conhecidos.

Ao longo dos anos outros materiais com esta característica foram sendo descobertos e a classe dos férmions pesados (HF) foi ganhando novos membros até que, em 1979, a descoberta de supercondutividade (2) no composto  $CeCu_2Si_2$ , à temperatura de 0,2K, atraiu a atenção de muitos pesquisadores.

Sabia-se até então(3)(4) que a corrente supercondutora era composta por pares de elétrons de spins opostos, mantidos unidos através de uma interação com oscilações harmônicas da rede cristalina (fônons). Sabia-se, também, que a adição de impurezas magnéticas a um material supercondutor suprimia a supercondutividade, pois a interação de um par com uma impureza tendia a inverter o spin de um de seus elétrons e dissociar o par.

Apesar de ser não magnético, o  $CeCu_2Si_2$  possuía uma matriz de átomos magnéticos que, em relação ao que se conhecia até então, seria suficiente para suprimir qualquer estado supercondutor. Este fato, somado à enorme massa efetiva dos elétrons, a maior até então observada ( $420mJ/K^2$  mol Ce) motivou a definição deste tipo de supercondutividade como não-convencional (5).

A descoberta e o estudo de diversos férmions pesados supercondutores(6) (ver tabela 1.1) trouxe novos ingredientes ao problema, como a freqüente ocorrência deste tipo de supercondutividade na presença de estados magneticamente ordenados, ou sua coexistência com interações magnéticas.

Pressão Ambiente	Induzidos por pressão
$CeCu_2Si_2$	$CeCu_2Ge_2$
$UBe_{13}$	$CePd_2Si_2$
$UPt_3$	$CeRh_2Si_2$
$URu_2Si_2$	$CeNi_2Ge_2$
$UPd_2Al_3$	$CeIn_3$
$UNi_2Al_3$	$CeRhIn_5$
$CeCoIn_5$	$Ce_2RhIn_8$
$CeIrIn_5$	

Tabela 1.1: Alguns compostos férmions pesados supercondutores conhecidos

## 1.1

### Fenomenologia

À temperatura ambiente, os compostos férmions pesados se comportam como uma coleção de momentos magnéticos fracamente interagentes, gerados por camadas parcialmente preenchidas de elétrons f, e de elétrons de condução com massas efetivas comuns. Com a redução da temperatura, os momentos magnéticos localizados se acoplam com os spins dos elétrons de condução, causando um aumento da massa efetiva dos últimos.

Nos casos em que o estado supercondutor se manifesta, um mecanismo de atração entre elétrons originado das flutuações dos momentos magnéticos (7) (8)(9) parece ser o responsável pela supercondutividade nos férmions pesados, ao invés da troca de fônons que ocorre nos supercondutores convencionais.

O estado normal não magnético de um sistema férmion pesado possui algumas características únicas (10)(11) que o distingue dos metais típicos em baixas temperaturas.

A primeira delas, já citada acima, é um valor elevado da contribuição eletrônica ao calor específico, representada pela razão  $C(T)/T \equiv \gamma(T)$ , associada à densidade eletrônica de estados próxima à superfície de Fermi. No caso dos férmions pesados, abaixo de 10K, não somente o valor de  $\gamma$  é uma ou duas ordens de grandeza maior que o encontrado para os metais típicos como também seu valor continua fortemente dependente da temperatura abaixo de 10K.

Outra característica importante é uma alta dependência (12) com a temperatura da amplitude das oscilações de de Haas-van Alphen a temperaturas abaixo de 0,1K em compostos como  $CeCu_6$  e  $UPt_3$ , confirmando a presença de elétrons de condução com massas efetivas uma ou duas ordens de magnitude maiores que as dos metais típicos.

A susceptibilidade magnética,  $\chi(T)$ , também apresenta diferenças claras entre os metais ordinários e os férmions pesados. Abaixo de 20K,  $\chi(T)$  continua

variando com a temperatura, com sua magnitude sendo uma ou duas ordens de grandeza maior que a susceptibilidade magnética de Pauli observada nesta região em um metal ordinário. A suscetibilidade, ainda, é altamente dependente da pressão.

As propriedades de transporte de um composto HF a baixas temperaturas também diferem daquelas dos metais comuns. A resistividade apresenta uma rápida variação com a temperatura, principalmente abaixo de 10K. Já no caso de um metal típico, seu valor é quase constante e dominado apenas pelo espalhamento devido a impurezas. Em alguns compostos HF a resistividade elétrica toma, ainda, a forma  $\rho = \rho_0 + \rho_{ee}T^2$  nas temperaturas mais baixas. Apesar de a contribuição independente da temperatura,  $\rho_0$ , ter valores comparáveis ao de metais comuns na forma pura, o coeficiente  $\rho_{ee}$ , que mede a importância do espalhamento elétron-elétron é de seis a nove ordens de magnitude maior que num metal típico.

Uma grande sensibilidade à impurezas também é característica dos compostos férmions pesados. A substituição de 3.4% do U no  $UBe_{13}$  por Th, por exemplo, leva a um aumento de 37% em  $\gamma$ , enquanto uma substituição similar por Ru reduz  $\gamma$  do mesmo valor (13).

Nota-se pelos fatos descritos acima que os férmions pesados mudam dramaticamente de comportamento em baixas temperaturas. No estado normal, não magnético, a contribuição do calor específico é grande e, geralmente, dependente de T sugerindo que os elétrons itinerantes, com massas até centenas de vezes maiores que a do elétron livre, dominam o comportamento térmico.

As propriedades de transporte a baixas temperaturas exibem o comportamento esperado (14) de um líquido de Fermi que é composto por elétrons pesados espalhados por impurezas, por flutuações de spin e por outros elétrons pesados.

Com a redução da temperatura, o acoplamento entre elétrons de condução e os momentos magnéticos torna-se cada vez mais forte, reduzindo a ordem magnética e aumentando a massa efetiva dos elétrons itinerantes.

## 1.2

### Compostos relacionados a este trabalho

A motivação para o presente trabalho tem origem em uma seqüência de estudos focalizando o composto  $CeIn_3$ . Este e outros seis compostos férmions pesados serão discutidos a partir daqui, definindo o contexto no qual as informações desta tese serão discutidas. A forma como tais compostos se relacionam está esquematizada na figura 1.1

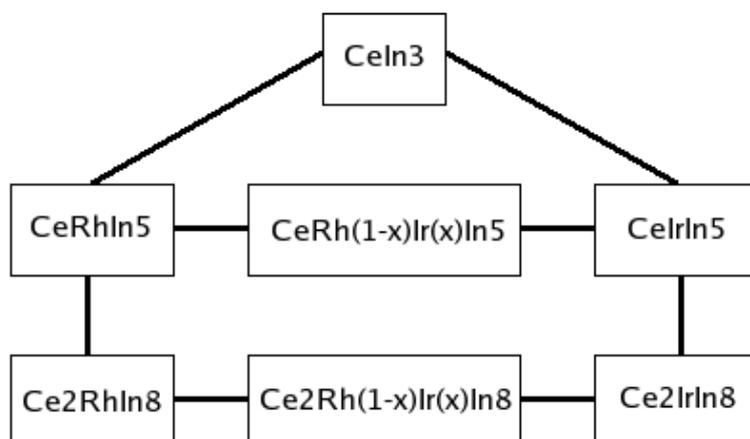


Figura 1.1: Relação entre os compostos  $Ce_n M In_{3n-2}$

### 1.3

#### $CeIn_3$

O composto  $CeIn_3$  é um férmion pesado com  $\gamma = 100mJ/molK^2$  (15) que se ordena antiferromagneticamente abaixo de 10K. Sua estrutura é uma rede cúbica, cuja célula unitária pode ser vista na figura 1.2.

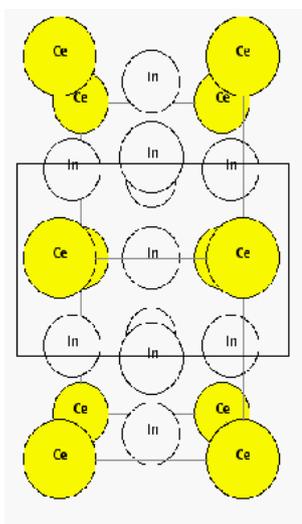


Figura 1.2: Célula unitária do  $CeIn_3$ .

Medidas de resistividade elétrica mostram, à pressão ambiente, um pico largo em torno de 50K e uma cúspide em torno de 10K (ver figura 1.3), sinalizando início da ordem antiferromagnética (16). A temperatura de Néel é inferida desta cúspide, e confirmada por vários outros resultados experimentais (15).

O máximo da resistividade em torno de 50K sugere a presença do efeito Kondo(17)(18), resultante da interação dos elétrons de condução com os momentos magnéticos localizados nos átomos de cério em baixas temperaturas.

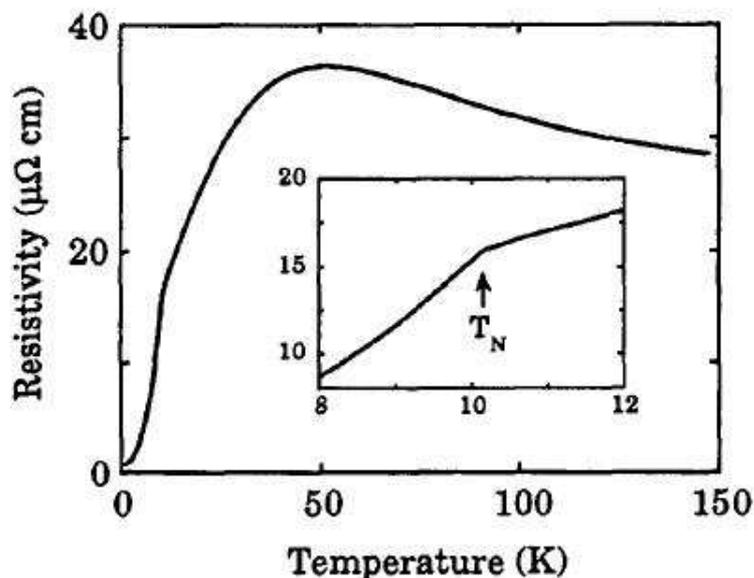


Figura 1.3: Resistividade do  $CeIn_3$  à pressão ambiente. Ref. (16)

Quando o material é submetido a pressão aplicada,  $T_{Neel}$  decresce rapidamente e uma extrapolação suave indica que ela deveria chegar a zero em torno de 25kbar, onde surge uma transição supercondutora com  $T_c$  em torno de 200mK, como pode ser visto no diagrama de fases na figura 1.4.

Uma tentativa de entender qualitativamente o mecanismo por trás deste diagrama faz uso de um modelo proposto por Doniach (19) em 1977. Neste modelo, o comportamento de uma cadeia unidimensional de impurezas magnéticas em uma matriz metálica, não magnética, é descrito por dois tipos de interação: as do tipo Rudderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY), de longo alcance, e as do tipo Kondo, de curto alcance.

O primeiro tipo de interação se refere a um acoplamento onde o spin de um íon da rede interage com um elétron de condução, e este elétron, por sua vez, interage com o spin de outro íon da rede. A intensidade da interação de troca é representada pelo parâmetro de acoplamento  $J$  e define a temperatura abaixo da qual a interação se torna dominante no sistema. O valor de  $J$  varia de forma oscilante com a distância entre os momentos magnéticos, como pode ser visto na figura 1.5.

As interações do segundo tipo se referem a um acoplamento onde os elétrons de condução tendem a blindar os momentos magnéticos localizados e reduzir a ordem de longo alcance. O parâmetro de acoplamento entre os dois

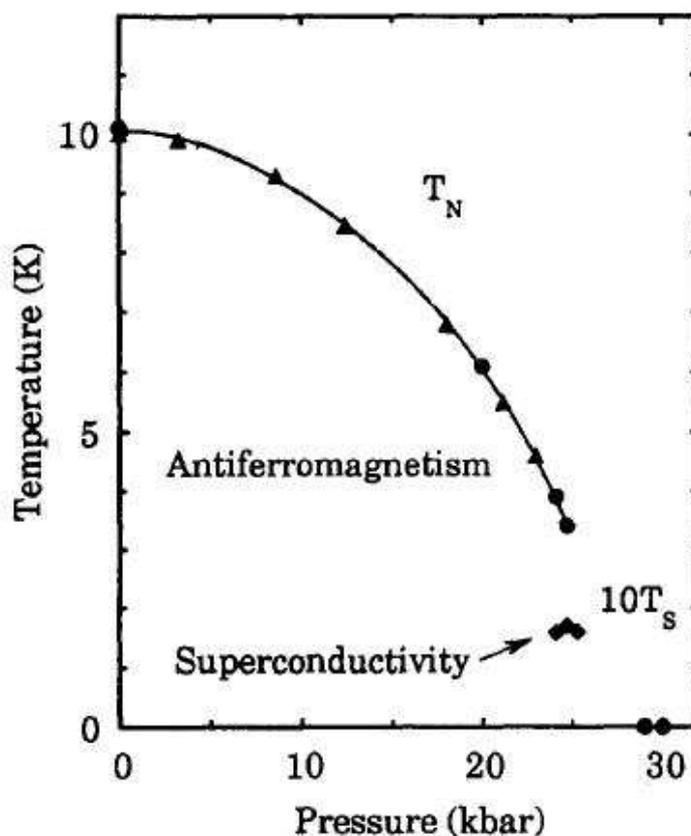


Figura 1.4: Diagrama de fases pressão-temperatura do  $CeIn_3$ . A escala da transição supercondutora está aumentada 10 vezes.(16)

é o mesmo do caso RKKY, mas a variação da temperatura de Kondo com  $J$  é exponencial.

O resultado da competição entre as duas interações é mostrado na figura 1.6. Para pequenos valores de  $J$  as interações de longo alcance (RKKY) dominam, favorecendo o ordenamento magnético. Com o aumento do parâmetro de acoplamento, o efeito Kondo passa a ser relevante, suprimindo completamente a ordem magnética de longo alcance e levando a temperatura de transição antiferromagnética do sistema na direção do zero absoluto.

Algumas características previstas neste modelo simples, unidimensional, de impurezas magnéticas podem ser claramente distinguidas no diagrama de fases do  $CeIn_3$  e de outros compostos férmions pesados baseados em Ce. Nestes casos, o parâmetro de acoplamento é modificado pela aplicação de pressão externa sobre a rede cristalina, de forma a alterar a distância interatômica, ou pela introdução de átomos isoeletrônicos com raio diferente, que exercem uma pressão química efetiva na rede.

Em vários destes materiais, o estado supercondutor surge quando a

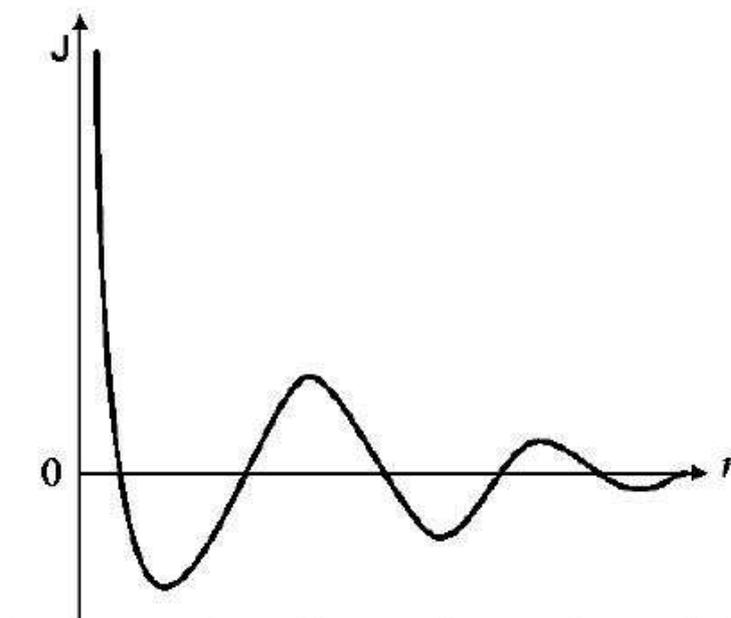


Figura 1.5: Variação da constante de acoplamento  $J_{RKKY}$  com a separação entre momentos magnéticos da rede (20).

PUC-Rio - Certificação Digital Nº 0124800/CA

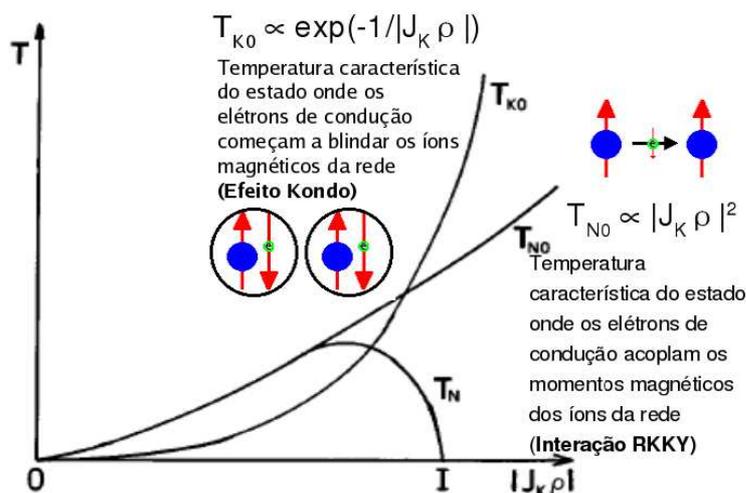


Figura 1.6: Competição entre os efeitos Kondo e RKKY, onde as temperaturas características de cada interação são definidas em função da constante de acoplamento entre os momentos localizados e os spins dos elétrons de condução ( $J$ ) e da densidade de estados dos elétrons de condução  $\rho$ . Ref (21)

fronteira entre a ordem e a desordem magnética é ultrapassada a temperaturas próximas do zero absoluto, caracterizando um ponto crítico quântico (22)(23) (24).

Nas vizinhanças deste ponto alguns modelos físicos bem conhecidos não se aplicam mais. Em metais magnéticos, por exemplo, propriedades termo-

dinâmicas em baixas temperaturas como resistividade elétrica, susceptibilidade magnética e calor específico não correspondem mais à descrição de líquido de Fermi, como pode ser visto na tabela 1.2.

Propriedade	Líquido de Fermi	Proximidade QCP
Resistividade	$\rho = \rho_0 + AT^2$	$\rho \propto T^{1+\epsilon}$
Susceptibilidade	$\chi^{-1} = \chi_0^{-1} + cT$	$\chi^{-1} \propto T^\alpha$
Calor Específico	$C/T \propto \gamma$	$C/T \propto \ln T$

Tabela 1.2: Mudança nas leis de potência da resistividade elétrica, susceptibilidade magnética e calor específico na proximidade de um ponto crítico quântico.

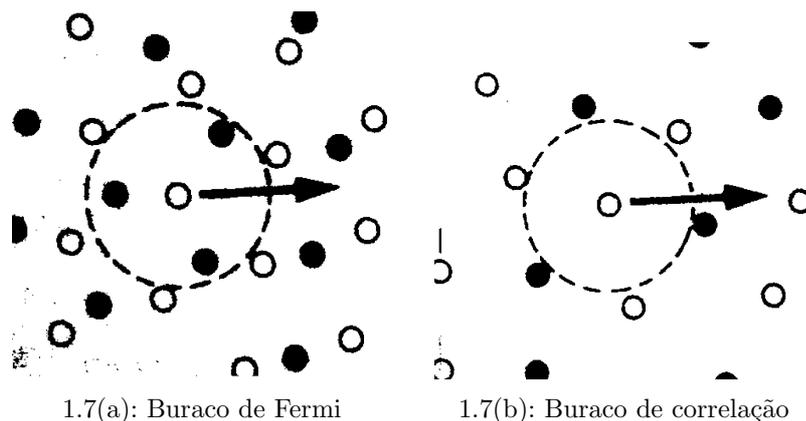
Em alguns compostos férmions pesados, a resistividade elétrica no estado normal aumenta quase linearmente com a temperatura, em claro contraste com a dependência com  $T^2$  esperada por um líquido de Fermi, previsto pela teoria de Landau(25).

No modelo de Landau os elétrons de condução num metal convencional deixam de ser não-interagentes como no gás de Fermi, para se tornarem fracamente interagentes. Passam, então, a se comportar como quasipartículas, não mais como partículas independentes. Estas quasipartículas têm a mesma carga do elétron, mas sua massa está renormalizada devido às interações com outros elétrons. A resistividade assume uma dependência com  $T^2$  devido aos mecanismos de espalhamento eletrônico envolvidos.

Uma forma qualitativa (26) de visualizar a interação elétron- elétron num metal pode ser vista na figura 1.7, onde, no primeiro caso, a interação coulombiana entre elétrons é ignorada e o princípio da exclusão mantém elétrons de mesmo spin longe dos caminhos uns dos outros. A separação é aproximadamente igual ao comprimento de onda de de Broglie que, em metais é da ordem de  $10^{-10}m$  e é representada pelo raio do círculo pontilhado. O espaço que circunda cada elétron é chamado de buraco de Fermi, ou buraco de troca. Este espaço acompanha o movimento do elétron no material e os elétrons de mesmo spin devem sair de seu caminho para que ele possa passar.

No segundo caso, figura 1.7b, a interação coulombiana não é mais ignorada e, além das forças de troca que agem no caso anterior, existe a força eletrostática, mantendo os elétrons afastados entre si, qualquer que seja seu spin. O espaço que os separa é chamado de buraco de correlação e seu raio é tipicamente a metade daquele do buraco de Fermi.

Em regiões próximas a um ponto crítico quântico magnético(27) as flutuações de spin interagem com as quase-partículas, espalhando-as e destruindo o comportamento líquido de Fermi.



1.7(a): Buraco de Fermi

1.7(b): Buraco de correlação

Figura 1.7: Ilustração esquemática da interação entre elétrons num metal. Ref (26)

A variação da resistividade elétrica com  $T^1$  é prevista (24)(28) nesta região e está relacionada com o estado denominado não líquido de Fermi (NFL) (29). Neste estado, flutuações quânticas críticas dominam as dependências de propriedades termodinâmicas, e de transporte, com a temperatura.

A manifestação de um estado supercondutor nesta região dá suporte à visão mais aceita atualmente, que sugere que a mediação dos pares de Cooper na região do ponto crítico quântico é feita por flutuações de spin (28)(30) (31).

Antes de seguir adiante e entrar na seção dos compostos 115 o diagrama que relaciona os compostos relevantes será apresentado novamente aqui (figura 1.8), sintetizando as principais informações sobre cada composto apresentado até o momento.

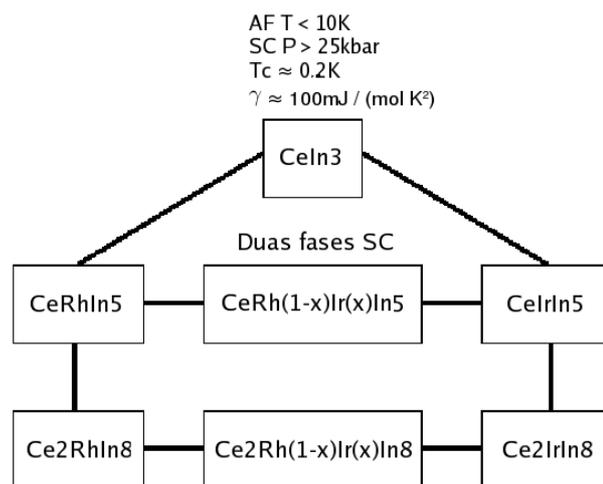


Figura 1.8: Síntese das principais características do  $CeIn_3$  em relação aos outros compostos relevantes.

## 1.4

### $CeRhIn_5$ e $CeIrIn_5$

Em 1998, acrescentando uma camada de  $RhIn_2$  e  $IrIn_2$  ao  $CeIn_3$ , os compostos  $CeRhIn_5$  e  $CeIrIn_5$  foram, respectivamente, sintetizados (32)(33). A estrutura destes novos compostos é a mesma do  $HoCoGa_5$  e está ilustrada na figura 1.9.

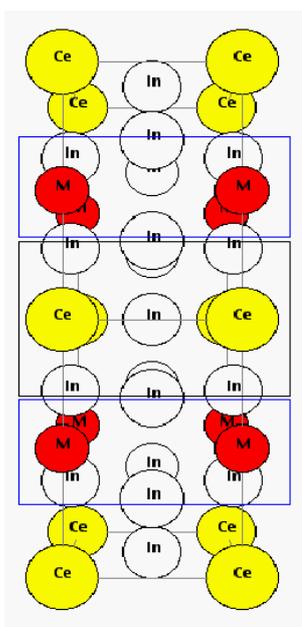


Figura 1.9: Estrutura do composto  $CeMIn_5$ , onde  $M = Rh, Ir, Co$ .

## 1.5

### $CeRhIn_5$

Medidas de calor específico, susceptibilidade magnética e resistividade sob pressão, foram realizadas (34) no composto  $CeRhIn_5$ , caracterizando-o como um férmion pesado com  $\gamma = 420mJ/molK^2$ .

Nas medidas de resistividade da figura 1.10, pode-se ver claramente a evolução de um máximo bem definido ( $T_{max}$ ) com a pressão. No detalhe da figura, vê-se a dependência de  $T_{max}$  com a pressão  $P$ . Inicialmente,  $T_{max}$  move-se para temperaturas menores com o aumento de  $P$ , atingindo um mínimo em torno de 12 kbar, após o qual começa a aumentar novamente.

Diferentes mecanismos de espalhamento dos elétrons de condução pelos íons magnéticos da rede são responsáveis pela formação deste máximo. Em temperaturas altas um efeito análogo ao efeito Kondo de impureza simples seria predominante, enquanto em baixas temperaturas os íons magnéticos assumiriam um comportamento coerente, reduzindo o espalhamento e, conseqüentemente, a resistividade elétrica. A pressão aplicada sobre o material, ao

variar os parâmetros da rede cristalina, interfere com o a contante de acoplamento entre íons magnéticos e elétrons de condução, mudando a forma como os processos de espalhamento eletrônico variam com a temperatura.

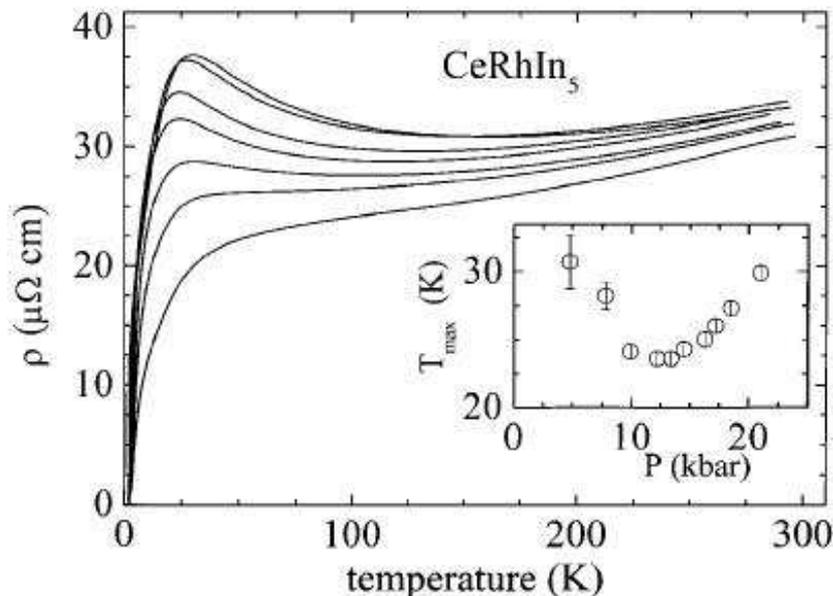


Figura 1.10: Resistividade elétrica sob pressão no  $CeRhIn_5$ , entre 1,5K e 300K. Ref (34).

Nas medidas em baixas temperaturas (figura 1.11), fica claro um aumento da resistividade residual com a pressão aplicada, elevando-a de  $1\mu\Omega cm$ , à pressão ambiente, para  $12\mu\Omega cm$  a 21kbar.

A dependência com a temperatura também muda sistematicamente com a pressão. A assinatura de  $T_{Neel}$  na resistividade não aparece em pressões acima de 14kbar. Uma transição para um estado de resistência zero (ZR) surge a partir de 16 kbar. Medidas de calor específico a 21 kbar confirmam que o estado superconductor ocorre em todo o material, e não apenas em pequenos filamentos entre os terminais de medida. O diagrama de fases resultante de tais medidas pode ser visto na figura figura 1.12.

O desaparecimento abrupto da assinatura da transição magnética no diagrama T-P, o súbito aparecimento da supercondutividade e a rápida redução da largura da transição supercondutora sugerem que uma transição de fase de primeira ordem ocorre numa pressão crítica entre 14,5 e 16,3 kbar.

Transições de fase de primeira ordem envolvem a absorção, ou a liberação, de uma quantidade finita de energia. Como esta energia não pode ser transferida instantaneamente entre o sistema e seu ambiente, tais transições estão, geralmente relacionadas com regimes onde partes do sistema completaram a

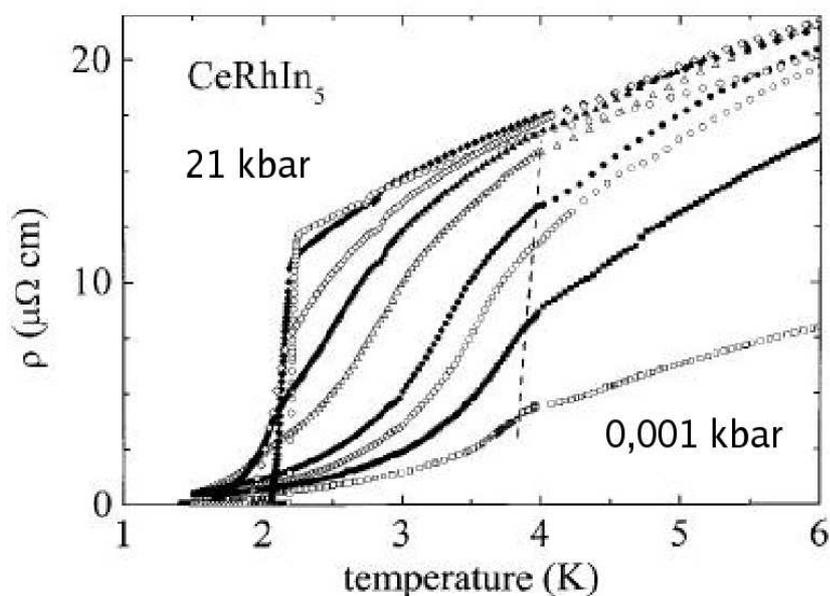


Figura 1.11: Resistividade elétrica sob pressão no  $CeRhIn_5$ , abaixo de 1,5K. As curvas correspondem às pressões de 0.001, 7.9, 9.9, 12.2, 14.5, 16.3, 17.2, 18.5 e 21.0 kbar. Ref (34).

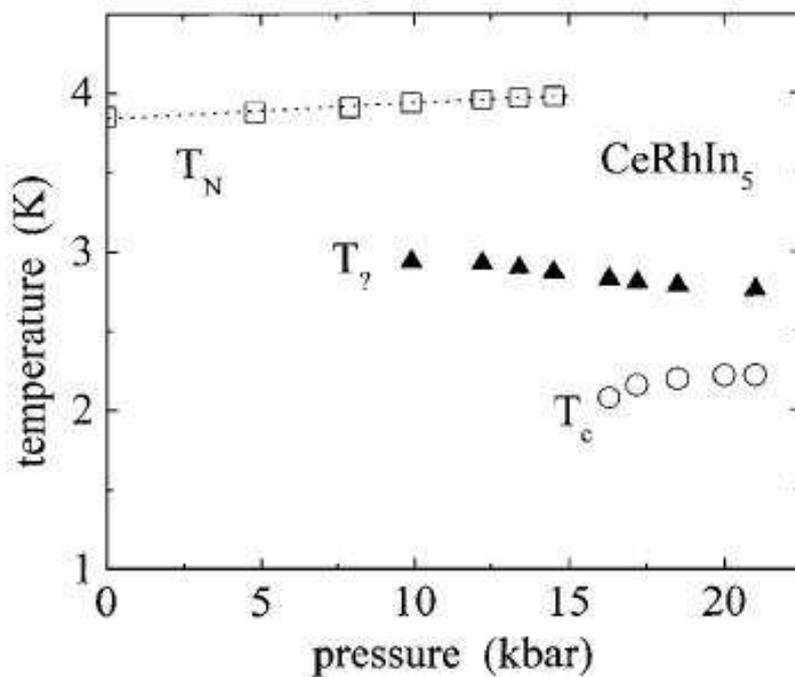


Figura 1.12: Diagrama de fases pressão-temperatura do composto  $CeRhIn_5$ .  $T_2$  representa uma transição visível nos dados, mas não associada a nenhum mecanismo conhecido. Ver ref (34)

transição, enquanto outras não. Já as transições de segunda ordem, por não envolverem calor latente, são contínuas.

A transição exibida neste diagrama é, aparentemente, contrária ao esperado pelo diagrama de Doniach. A transição de primeira ordem é aproximadamente coincidente com a mudança na dependência de  $T_{max}$  com a pressão aplicada e com a pressão na qual o máximo da susceptibilidade magnética pode ser extrapolada para zero.

Uma interpretação qualitativa das propriedades do  $CeRhIn_5$  a pressão ambiente e sob pressão hidrostática é sugerida por sua estrutura cristalina quase-bidimensional. Denomina-se esta estrutura de 2D pelo fato de ser possível, em alguns compostos, isolar apenas um plano da célula unitária e tratá-lo independentemente, obtendo-se o mesmo resultado para o material volumétrico. Sistemas 3D teriam seu estado fundamental drasticamente alterado caso esta operação fosse efetuada.

Comparando-se o parâmetro de rede  $a$  do  $CeRhIn_5$ , ao do  $CeIn_3$ , pode-se sugerir que a camada de  $CeIn_3$  dentro do  $CeRhIn_5$  esteja sob uma pressão química de 14kbar(34). Levando-se em conta que a temperatura de Néel do composto  $CeIn_3$  sob esta pressão é 8K, e que a temperatura do máximo da susceptibilidade magnética no  $CeRhIn_5$  está em torno de 7,5K, é razoável relacionar tal máximo com o aparecimento de correlações de spin 2D nas camadas de  $CeIn_3$  dentro do composto  $CeRhIn_5$ .

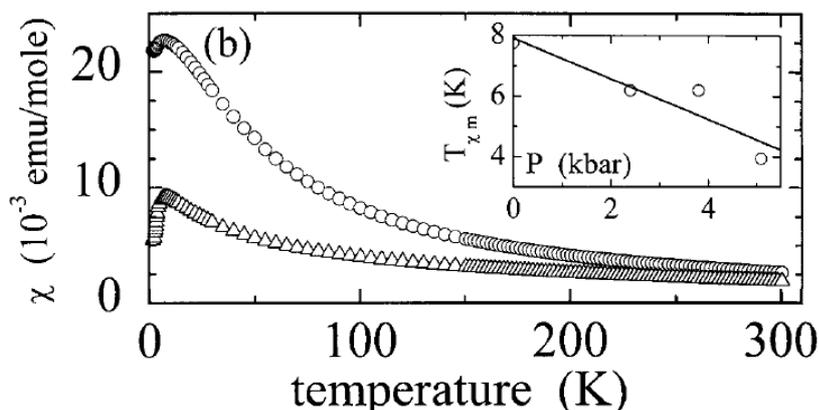


Figura 1.13: Medidas de susceptibilidade magnética sob pressão realizadas no  $CeRhIn_5$ . No detalhe, uma extrapolação do máximo da susceptibilidade com a pressão aplicada. Ref (34).

Uma maneira de verificar a hipótese das flutuações de spin bidimensionais nas camadas de  $CeIn_3$  é considerar o fato de  $T_N$  ir a zero no  $CeIn_3$  3D na pressão crítica de 25kbar e que o  $CeIn_3$  quase 2D está submetido a uma pressão química de 14kbar no  $CeRhIn_5$ . Pode-se supor, portanto, que a aplicação de

11kbar sobre o  $CeRhIn_5$  tenha um efeito semelhante à aplicação de 25kbar sobre o  $CeIn_3$  3D.

Se este for o caso, e a temperatura do máximo da susceptibilidade magnética,  $T_{\chi_m}$ , estiver mesmo relacionado com flutuações de spin nas camadas de  $CeIn_3$  quase 2D, seu valor vai atingir um mínimo em torno de 13kbar. De fato, uma extrapolação (34) da variação da temperatura do máximo da susceptibilidade (figura 1.13) magnética com a pressão aplicada leva a um valor de  $P_C$  em torno de 13kbar.

Outra maneira de verificar a hipótese das flutuações de spin bidimensionais nas camadas de  $CeIn_3$  é levar em conta que o fato de  $T_{max}$  tender a um mínimo quando  $T_{\chi_m}$  se aproxima de zero. Este fato pode estar relacionado com as flutuações magnéticas 2D. Estas se tornariam mais fortes conforme a temperatura diminui, levando a um aumento do espalhamento eletrônico e, conseqüentemente, a um aumento na resistividade. A temperatura do máximo da resistividade, portanto, seguiria o comportamento de  $T_{\chi_m}$ , e tenderia a um valor mínimo quando  $T_{\chi_m}$  atingisse o valor zero. Após este ponto o espalhamento eletrônico seria dominado por flutuações quânticas, ao invés de magnéticas, e o espalhamento eletrônico diminuiria.

A terceira conseqüência da hipótese formulada acima seria que a ordem magnética no  $CeRhIn_5$  seria resultado de uma competição entre um acoplamento magnético entre os planos de  $CeIn_3$  e a blindagem dos momentos magnéticos do Ce pelos elétrons de condução, justificando a dependência de  $T_N$  com a pressão.

A importância do fator dimensionalidade fica clara se os fatos acima forem levados em conta e o  $CeIn_3$  quase 2D for considerado responsável pelo comportamento magnético do  $CeRhIn_5$ .

Uma comparação entre os dois compostos mostra que a evolução do estado antiferromagnético ao supercondutor no  $CeRhIn_5$  acontece numa pressão 40% menor que no  $CeIn_3$ . Mostra, também, que a temperatura da transição supercondutora é uma ordem de grandeza maior no  $CeRhIn_5$ .

Tais fatos, aliados à maneira repentina como a transição magnética desaparece enfatizam a necessidade de considerar o fator dimensionalidade nos modelos utilizados.

## 1.6

### Ordem magnética oculta no $CeRhIn_5$

Em trabalho recente (35) são relatados resultados obtidos de medidas de calor específico em torno do que seria o ponto crítico quântico magnético no  $CeRhIn_5$ .

Na figura 1.14 pode-se ver um diagrama esquemático, representativo de algumas classes de supercondutores não convencionais.

Uma extrapolação da linha que representa a evolução da temperatura de transição magnética em função do parâmetro de controle  $\delta$  sugere que o ponto crítico quântico magnético estaria situado em  $\delta_2$ .

O surgimento de uma fase supercondutora, no entanto, parece impossibilitar o aparecimento de transições magnéticas dentro do domo supercondutor e sugere que nenhuma ordem magnética exista em valores de  $\delta$  maiores que  $\delta_1$ .

Acima do domo supercondutor, no entanto, o estado normal apresenta um comportamento não líquido de Fermi, sugerindo a existência de um ponto crítico quântico com  $\delta$  maior que  $\delta_1$ .

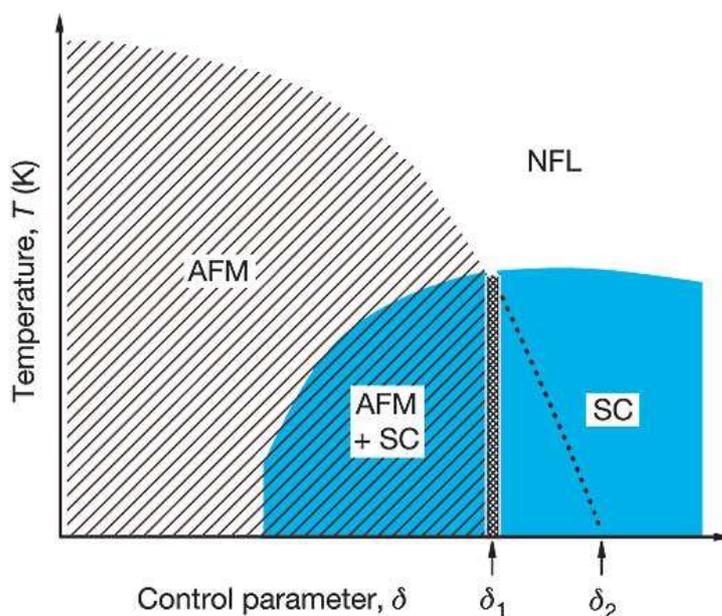


Figura 1.14: Diagrama de fases esquemático sugerindo a posição do ponto crítico quântico com parâmetro  $\delta = \delta_2$ . Ref (35)

O aparente paradoxo foi parcialmente esclarecido quando medidas de calor específico sob pressão revelaram, dentro do domo supercondutor o ressurgimento da transição magnética após a aplicação de campo magnético.

A figura 1.15a mostra medidas realizadas num valor de pressão equivalente  $\delta < \delta_1$ , isto é, onde  $T_{Neel}$  é maior que  $T_c$  e a transição magnética ainda é visível. O campo aplicado não tem nenhum efeito sobre a temperatura de transição magnética, mas reduz  $T_c$  e diminui, também, sua amplitude.

Na figura 1.15b, a pressão aplicada é equivalente a um ponto do diagrama entre  $\delta_1$  e  $\delta_2$ , onde a transição supercondutora pode ser encontrada em valores

pequenos do campo magnético aplicado. Conforme o campo aumenta, no entanto,  $T_{Nee1}$  reaparece, revelando uma ordem magnética antes oculta pela supercondutividade.

A última das três figuras, 1.15c, corresponde a uma região do diagrama acima de  $\delta 2$  onde, mesmo para valores elevados do campo aplicado, não se pode ver nenhuma transição magnética surgindo.

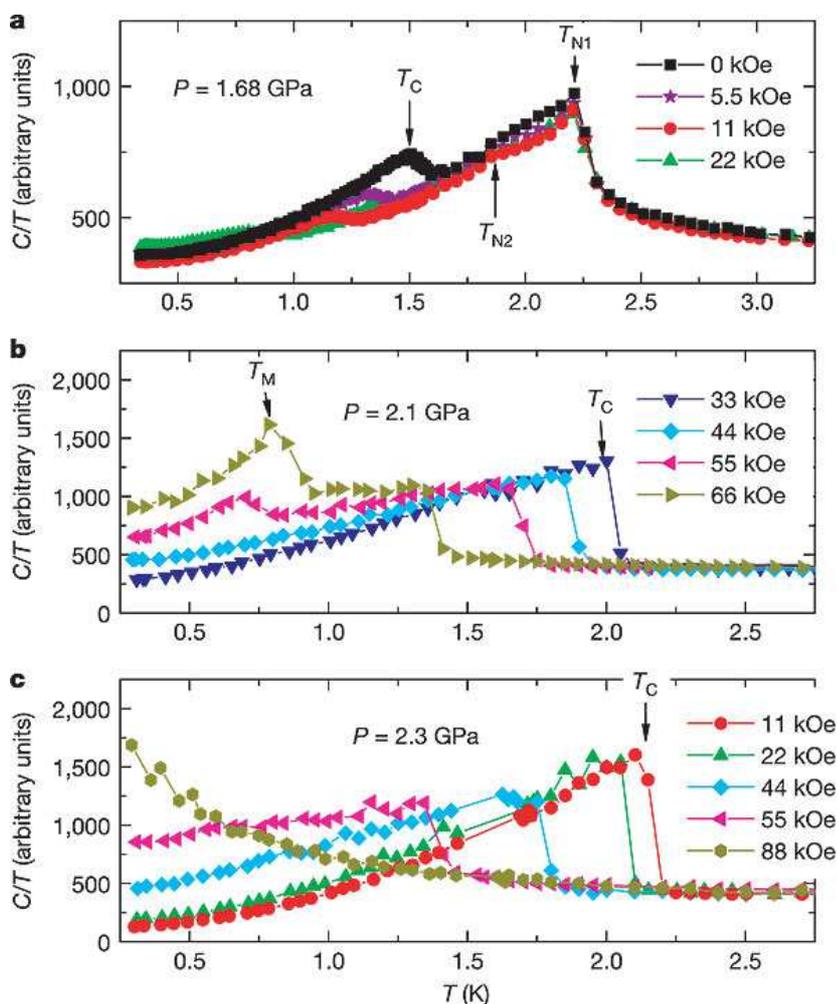


Figura 1.15: Medidas de calor específico realizadas (a) em  $p < p_{c1}$ , (b) em  $p_{c1} < p < p_{c2}$  e (c) em  $p > p_{c2}$ . Ref (35)

A figura 1.16a mostra a evolução da anomalia magnética em  $C/T$  na pressão de 2,1GPa. A área sob essas curvas é uma medida da entropia magnética e reflete, aproximadamente, a magnitude do magnetismo induzido por campo.

A relação quase linear da entropia com o campo aplicado sugere que o magnetismo está associado com o surgimento de vórtices quantizados de fluxo magnético que penetram no supercondutor e cuja densidade é diretamente proporcional a  $H$ .

Na figura 1.16b um diagrama de fases pressão temperatura é mostrado para valores de campo representativos. Como foi visto anteriormente, em campo nulo, os sinais da transição magnética desaparecem abruptamente em  $P_{C1}$ , sugerindo uma transição de primeira ordem.

Com um campo aplicado de 33kOe, no entanto,  $T_N$  evolui continuamente além de  $P_{C1}$ , entrando no domo supercondutor. Com o aumento do campo, a posição dos pontos críticos, em que  $T_N$  vai a zero, varia com respeito ao centro do domo supercondutor, mas a influência da supercondutividade no desenvolvimento da ordem magnética pode ser notada na mudança de inclinação da linha de transição magnética após sua entrada na região supercondutora.

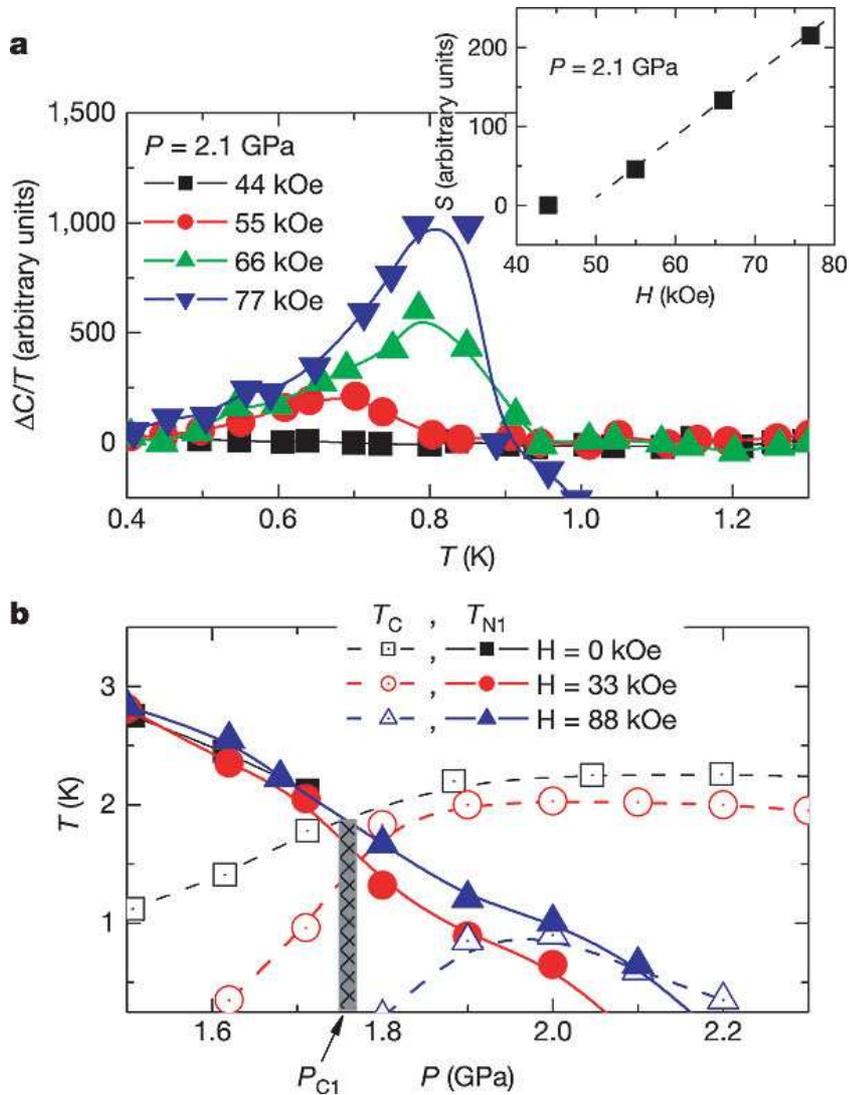


Figura 1.16: Evolução de  $T_c$  e  $T_{Neel}$  com o campo aplicado. Ref (35)

A observação de magnetismo induzido por campo entre  $P_{C1}$  e  $P_{C2}$  parece estar relacionada com um aumento da massa efetiva observado por medidas de de Haas-van Auphen (ref 16 em (35)) em torno do ponto crítico quântico

em  $P_{C2}$ . A esta pressão o volume da superfície de Fermi parece expandir para acomodar portadores de carga adicionais. Essa conclusão é motivada pelo fato de o volume expandido corresponder àquele do supercondutor isoestrutural  $CeCoIn_5$  cujo elétron 4f do cério contribui para a expansão.

Uma transição do estado localizado para o não localizado é esperada num modelo de criticalidade onde flutuações localizadas, ou não, coexistem em um ponto crítico quântico.

A comparação com alguns compostos supercondutores em altas temperaturas (36) leva a um modelo onde o supercondutor estaria próximo a uma transição de fase quântica após a qual haveria a coexistência das ordens supercondutora e magnética (37)(38).

A supressão da supercondutividade neste modelo estaria relacionada com uma inibição da supercondutividade na região em torno dos vórtices magnéticos induzidos pelo campo aplicado.

Já a ordem magnética oculta seria causada pela inibição do mecanismo de comunicação entre os spins, como o RKKY, pela presença de supercondutividade.

## 1.7

### $CeIrIn_5$

O composto férmion pesado  $CeIrIn_5$  apresenta uma transição(39) para resistência zero abaixo de 1,2K. O efeito Meissner e o salto no calor específico, porém, só podem ser vistos abaixo de 0,4K.

Um comportamento análogo é apresentado por uma amostra de  $Ce_2Rh_{0,5}Ir_{0,5}In_8$  caracterizada nesta tese. Isto será mostrado com detalhes no capítulo de resultados.

A figura 1.17 mostra os dados de calor específico do  $CeIrIn_5$  à pressões até 1,56 GPa. À pressão ambiente,  $C/T$  é quase constante entre  $T_c$  e 1K, com valor de 0,72 J/mol  $K^2$ . Com o aumento da pressão,  $T_c$  aumenta, com  $dT_c/dp \approx 0,25K/GPa$ , e o calor específico diminui com  $d \ln(C/T)/dp \approx -0,39/GPa$ . Deve-se notar que este composto não apresenta evidências de uma ordem magnética de longo alcance.

A figura 1.18b mostra o diagrama de fases deste composto. A redução do valor de  $C/T$  a 1K com a pressão aplicada pode ser considerada típica em compostos baseados em Ce. Tal fato é justificado pela hibridização crescente entre os elétrons 4f do Ce e os elétrons da banda de condução.

Considerando que no cenário da teoria das flutuações de spin itinerantes (40) a redução da massa da quasipartícula corresponde a um aumento da temperatura característica das flutuações de spin, pode-se interpretar tal fato

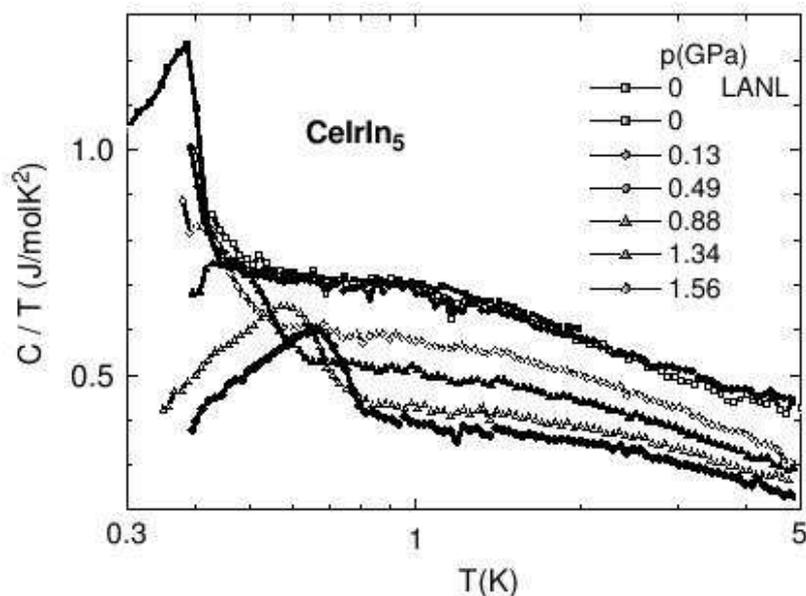


Figura 1.17: Medidas de calor específico no  $CeIrIn_5$  sob pressão. Ref (39)

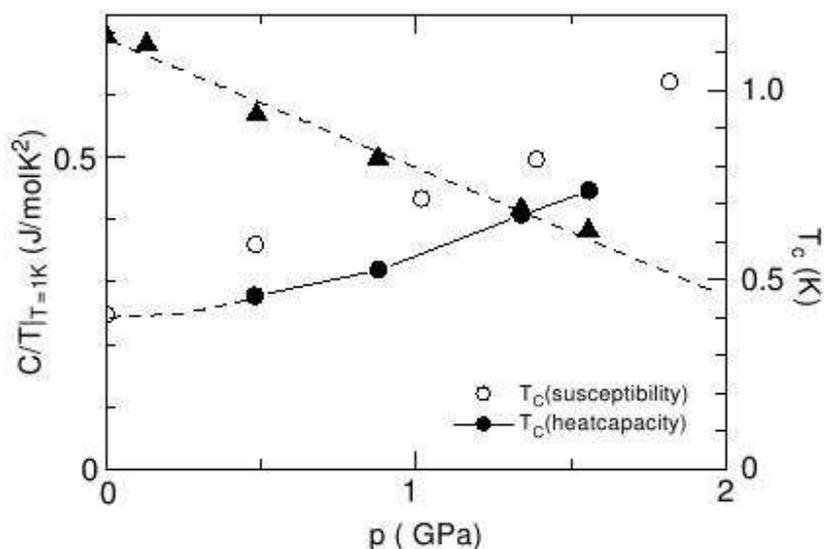


Figura 1.18: Diagrama de fases pressão-temperatura do  $CeIrIn_5$ . Ref (39)

em favor de um estado supercondutor mediado por tais flutuações. O aumento de  $T_c$  com a pressão reforça esta hipótese.

## 1.8

### $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$

A série de compostos  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$  representa uma tentativa de estudar a relação entre as propriedades do  $CeRhIn_5$  e do  $CeIrIn_5$ , através da dopagem do primeiro com concentrações sucessivas de átomos de irídio até que

a estequiometria do segundo composto seja obtida.

Esta série de compostos foi estudada através de medidas de resistividade e calor específico em vários trabalhos (41).

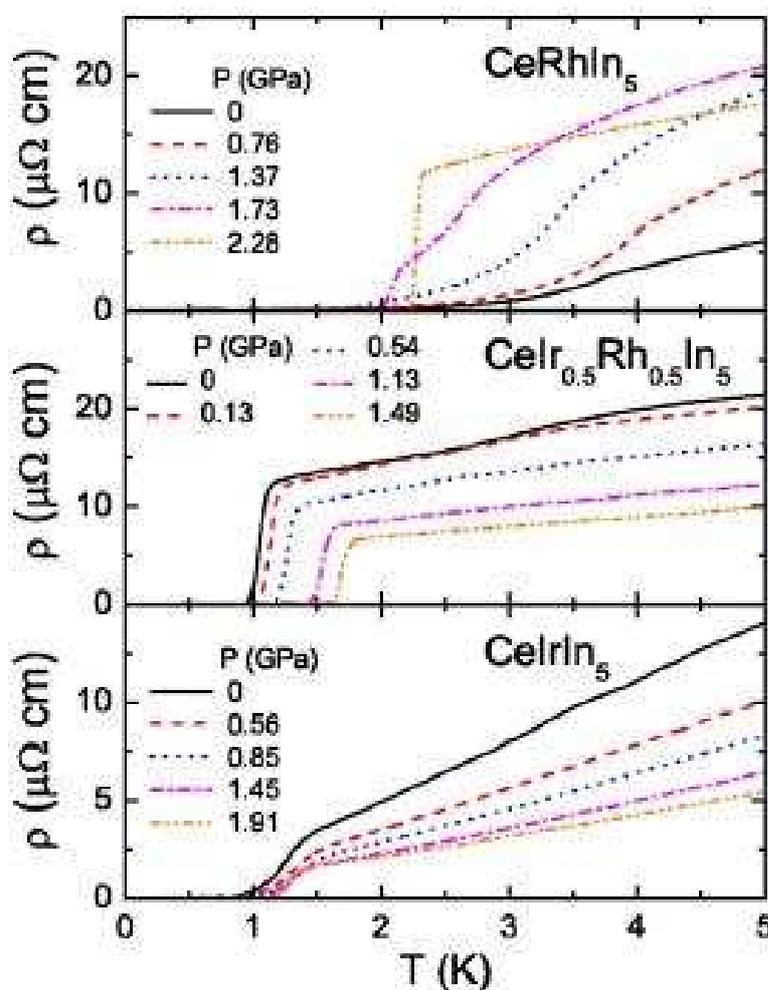


Figura 1.19: Medidas de resistividade sob pressão no  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$ . Ref (41)

A figura 1.19 mostra medidas de resistividade em três concentrações representativas ( $x = 0$ ,  $x=0,5$  e  $x=1$ ).

A baixas temperaturas a resistividade tende a aumentar com a pressão aplicada para  $x < 0.5$ . Já o comportamento oposto surge acima e próximo de  $x = 0.5$ .

Pode-se notar que a substituição de Rh por Ir parece ter pouca influência no espalhamento eletrônico, já que os valores da resistividade, logo acima de transições magnéticas ou supercondutoras, variam de  $2\mu\Omega cm$  em  $x=0$  e  $x=1$  para  $7\mu\Omega cm$  em  $x=0.5$ .

A variação na resistividade a pressão ambiente com a substituição de Rh por Ir é análoga à de vários compostos antiferromagnéticos conhecidos quando

submetidos à variação externa de pressão. De fato, como pode ser visto na figura 1.20, a pressão química exercida pela substituição de Rh por Ir pode ser comparada à pressão externa aplicada sobre as amostras para valores de  $x$  até 0,3. Acima deste limite a comparação não é mais possível, provavelmente devido a desordens introduzidas no sistema pela dopagem com Ir.

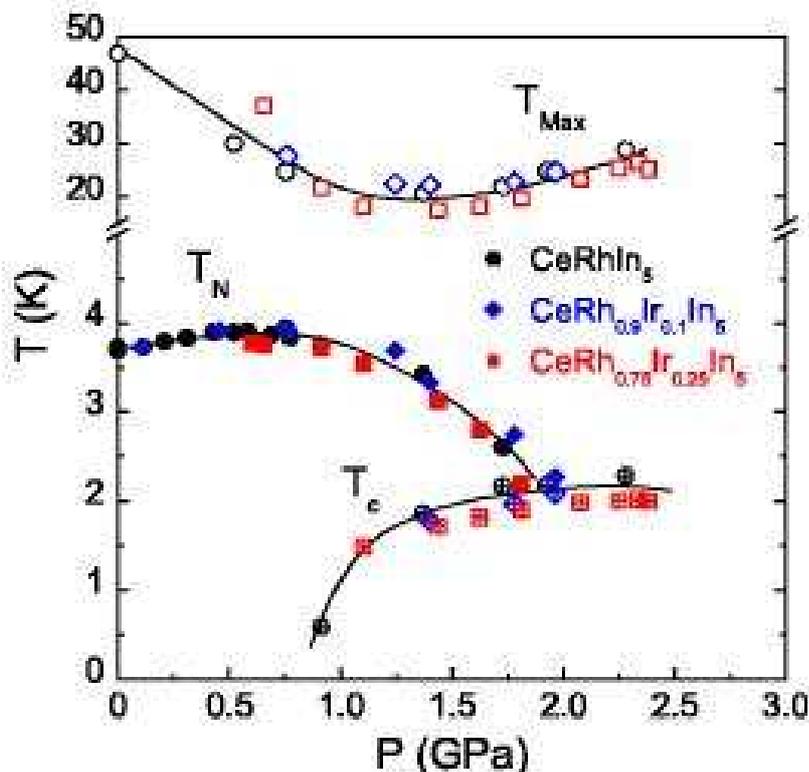


Figura 1.20: Equivalência entre pressão química e pressão hidrostática na variação de  $T_{max}$ ,  $T_c$  e  $T_{Neel}$  com a substituição de Rh por Ir. Ref (41)

## 1.9

### Duas fases supercondutoras no $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$

A variação de  $T_c$  e  $T_{Neel}$  com a composição e a pressão(41)(42) é mostrada na figura 1.21, para algumas pressões representativas. Os resultados mostram que, com a aplicação de pressão, surgem claramente duas fases supercondutoras distintas.

Apenas dois outros compostos férmions pesados conhecidos apresentaram esta característica até então:  $U_{1-y}Th_yBe_{13}$  e  $CeCu_2Si_2$ . Nos outros casos apenas um domo supercondutor tende a surgir numa região relativamente estreita dos parâmetros de controle.

No primeiro exemplo, átomos de U ([Rn] 5f3 6d1 7s2) foram gradualmente substituídos por Th, não magnético ([Rn] 6d2 7s2), e um mínimo não nulo

surge em  $T_c$  em torno de  $y = 0,019$ . A supercondutividade, porém, persiste até  $y = 0,6$ . Com a aplicação de pressão a supercondutividade foi suprimida neste mínimo, revelando a presença de duas fases supercondutoras distintas. Apesar da coexistência de flutuações magnéticas fracas com a supercondutividade entre  $y=0,019$  e  $y=0,042$ , a origem das duas transições permanece indefinida.

Já no sistema  $CeCu_2(Si_{1-x}Ge_x)_2$  (43) (44) a primeira das duas fases reveladas parece ter origem na proximidade de um ponto crítico quântico antiferromagnético, sendo consistente com um mecanismo de emparelhamento magnético. A segunda fase acontece somente em pressões elevadas e parece coincidir com um colapso isoestrutural de volume, sugerindo que flutuações de densidade ou de valência (45) estariam envolvidos no mecanismo de formação dos pares de Cooper.

O sistema  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$  foi o terceiro a apresentar duas fases supercondutoras (41). A substituição gradual de Rh por Ir leva o estado fundamental deste composto de antiferromagnético ( $x < 0,3$ ) para antiferromagnético com coexistência de supercondutividade ( $0,3 < x < 0,6$ ) e, finalmente, para um estado supercondutor, aparentemente, sem ordem magnética de longo alcance.

Como no caso do  $U_{1-y}Th_yBe_{13}$ , um mínimo em  $T_c$  aparece no domo supercondutor a pressão ambiente. Desta vez, porém, ela acontece em  $x=0.9$  e a supercondutividade é suprimida.

Com a aplicação de pressão sobre o sistema este mínimo se expande em um conjunto de valores de  $x$  que separa duas fases supercondutoras, como pode ser visto na figura 1.21.

O objetivo principal da substituição de Rh por Ir é diminuir o volume da célula, gerando uma pressão química efetiva sobre a mesma.

Se a desordem induzida pela dopagem com Ir não fosse levada em conta, o diagrama da figura acima refletiria o diagrama do  $CeRhIn_5$  sob pressão e sugeriria a existência de um segundo domo de supercondutividade a pressões mais altas. De fato, há evidências de um segundo domo supercondutor induzido por pressão externa no  $CeRhIn_5$  (ref 19 em (41)) a 6.5GPa, além daquele já conhecido em torno de 2.5GPa.

Uma relação linear entre  $T_c$  e a razão entre os parâmetros da rede tetragonal do  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_8$  é sugerida em estudos à pressão ambiente (46). Esta relação parece ser confirmada por outro trabalho (47) que descreve dois máximos na variação de  $c/a$  com a pressão aplicada, o primeiro em torno de 2.5GPa e o segundo próximo a 6GPa.

Medidas de Haas-van Auphen mostram que a topologia das superfícies de Fermi do  $CeRhIn_5$ , à pressão ambiente, e do  $CeIrIn_5$ , sob pressão, são comparáveis, a menos de variações devidas à pequenas diferenças nos

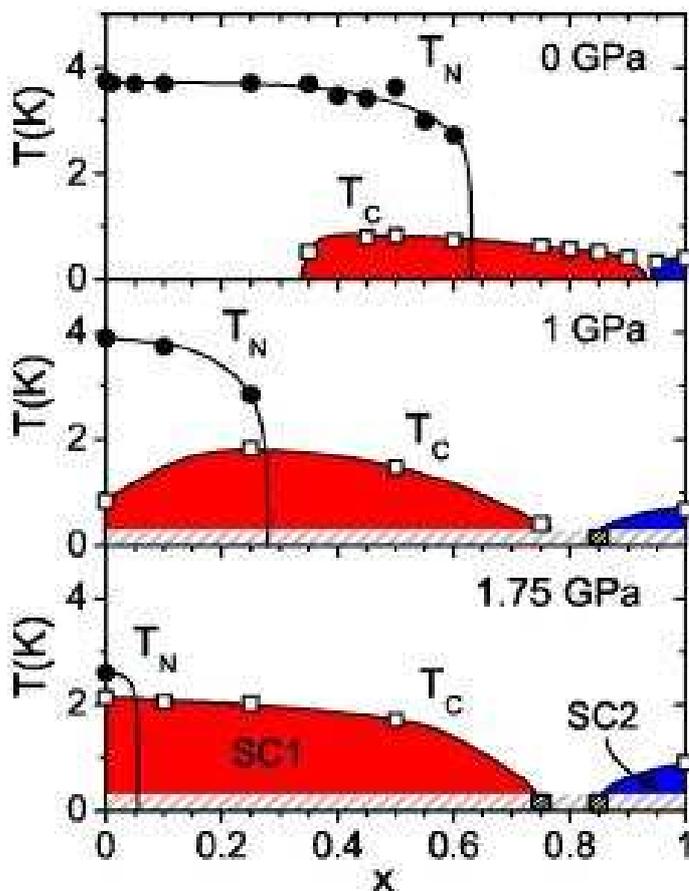


Figura 1.21: Duas fases supercondutoras no  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$ . Ref (41)

parâmetros de rede. Tal fato sugere que a supercondutividade nos dois sistemas surge de estados eletrônicos semelhantes.

Com base na semelhança entre pressão química efetiva e pressão externa visível na figura 1.19b pode-se assumir que a causa da supercondutividade na fase SC1, do sistema dopado com Ir, é a mesma do domo supercondutor observado no  $CeRhIn_5$ , a 2,5GPa. Neste caso, a proximidade do ponto crítico quântico magnético seria uma possível causa.

Já a ausência de ordem magnética aparente dificulta a utilização da mesma interpretação para a origem da supercondutividade no segundo domo.

Medidas de expansão térmica (47), no entanto, encontraram um comportamento dependente da temperatura no  $CeIrIn_5$  relacionado com a ocorrência de flutuações críticas tridimensionais próximas a um ponto crítico quântico ferromagnético.

A causa da supercondutividade no segundo domo no  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$  assim como, por inferência, no  $CeRhIn_5$  em pressões acima de 5GPa, parece ser algum tipo de ordem magnética oculta.

### 1.9.1

#### Ordem magnética nos compostos $Ce_nRhIn_{3n+2}$

Em um trabalho publicado(48) em 2001 medidas de difração de nêutrons revelaram aspectos interessantes da estrutura magnética dos compostos  $Ce_nRhIn_{3n+2}$ .

O  $CeRhIn_5$  mostrou-se antiferromagnético no plano ab, mas sua direção varia de plano para plano, formando uma espiral incomensurável com a rede, como pode ser visto na figura 1.22.

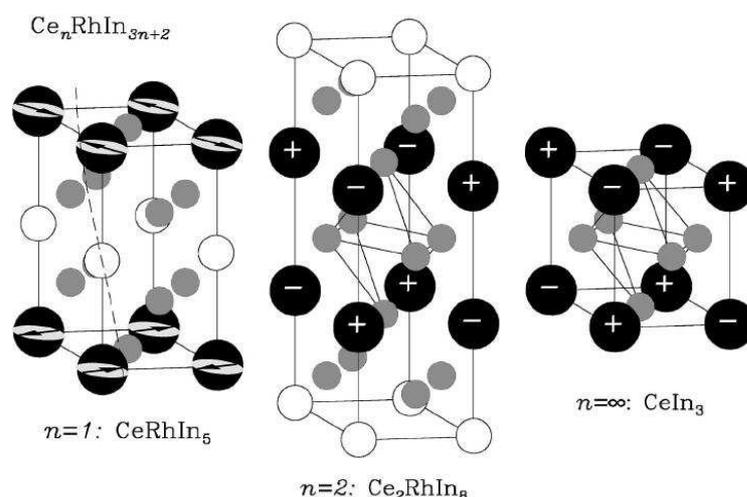


Figura 1.22: Estrutura magnética do  $Ce_nRhIn_{3n+2}$ . Ref (48)

### 1.10

#### Dois parâmetros de ordem magnética nos compostos $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$

Em um trabalho mais recente(49) dois parâmetros diferentes de ordem magnética coexistem em uma região do diagrama de fases dos compostos  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$ , formando uma ordem antiferromagnética comensurável e outra incomensurável. Mais interessante ainda é o fato da supercondutividade se manifestar em parte desta região, como pode ser visto na figura 1.23.

Tanto a ordem magnética comensurável quando a incomensurável desaparecem abruptamente, ao mesmo tempo em  $x \approx 0,6$ , enquanto a temperatura de Néel, quando não nula, parece variar muito pouco com x. Um comportamento similar de  $T_{Neel}$  pode ser encontrado no composto  $UPt_3$  sob pressão e sugere que ambos os compostos possuem o mesmo tipo de comportamento crítico quântico.

A coexistência de três estados ordenados cooperativos nestes compostos é mais um fenômeno que enriquece a relação entre magnetismo e supercondutividade.

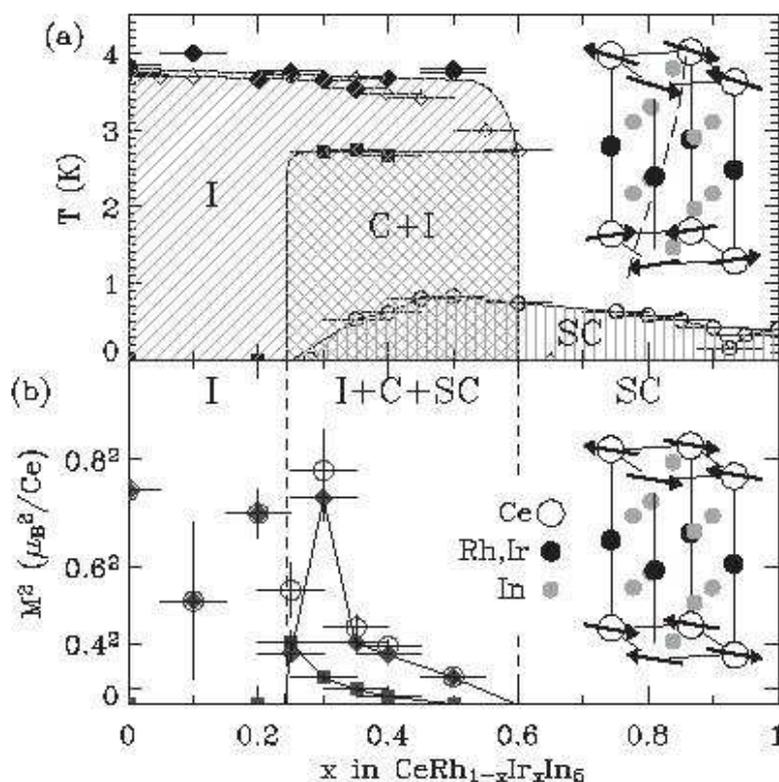


Figura 1.23: Coexistência de dois parâmetros de ordem diferentes com a supercondutividade nos compostos  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$ . Ref (49)

Devido à grande quantidade de informações apresentadas e ainda a apresentar, antes de seguir adiante e entrar na seção dos compostos 218 o diagrama que relaciona os compostos relevantes para este trabalho será apresentado novamente aqui (figura.1.24), sintetizando as principais informações de cada composto.

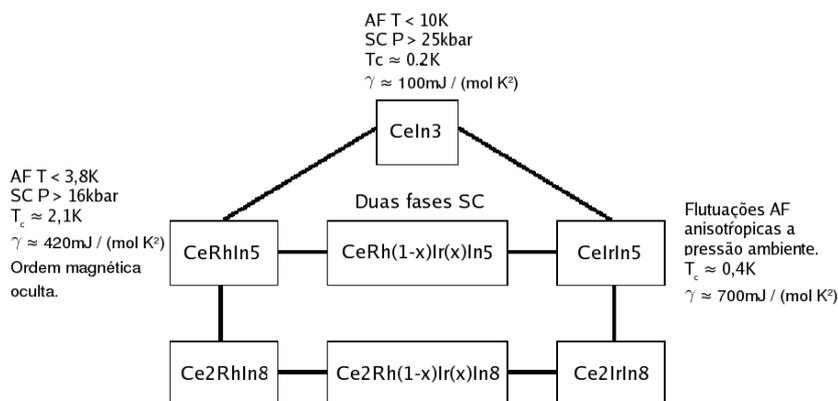


Figura 1.24: Síntese das principais características dos compostos 115 em relação aos outros compostos relevantes.

### 1.11

#### $Ce_2RhIn_8$

O composto  $Ce_2RhIn_8$  pertence à família  $Ce_2MIn_8$ , onde  $M = Rh, Ir, Co$ , mais conhecida como 218. Sua célula unitária pode ser descrita como uma camada de  $CeIn_3$  sobre uma camada de  $CeMIn_5$ , ou como duas camadas de  $CeIn_3$  separadas por uma camada de  $RhIn_2$ . Argumenta-se a partir daí que este composto teria um caráter mais tridimensional que os compostos 115.

Uma representação de sua célula unitária pode ser vista na figura 1.25. Em vermelho estão representados os átomos de cério e, em azul, os átomos de ródio e irídio. O índio é representado pela cor branca.

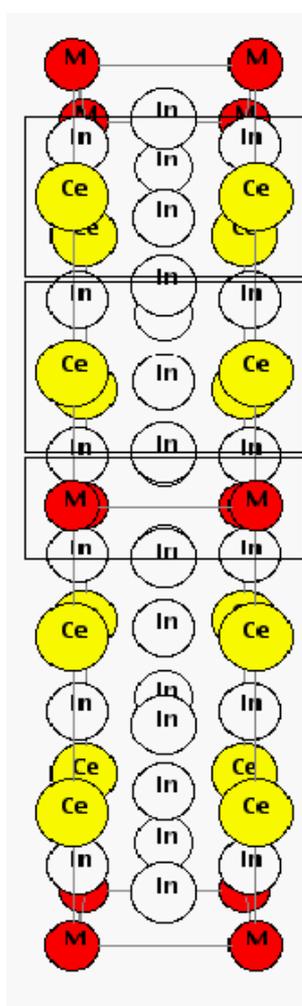


Figura 1.25: Célula unitária do  $Ce_2MIn_8$ .

O  $Ce_2RhIn_8$  se ordena antiferromagneticamente(50) a 2,8K com momento magnético  $0,55\mu_B$ . Uma segunda transição, para uma ordem antiferromagnética incomensurável, acontece em  $T_{LN} = 1,65K$ .

O comportamento da resistividade está mostrado nas figuras 1.26 e 1.27. A aplicação de pressão aumenta a resistividade entre 25K e 300K. A

temperatura do máximo da resistividade, em torno de 5K à pressão ambiente, decresce inicialmente com a aplicação de pressão, para depois subir à taxa de 20 K/GPa. Esta queda inicial também é encontrada no  $CeRhIn_5$ . (refs 8 e 12 em (50), onde foi relacionada a um máximo na susceptibilidade produzido pelo desenvolvimento de correlações antiferromagnéticas anisotrópicas acima de  $T_{Neel}$ . O aumento de  $T_{max}$  após esta queda está relacionado a uma elevação da temperatura característica das flutuações de spin.

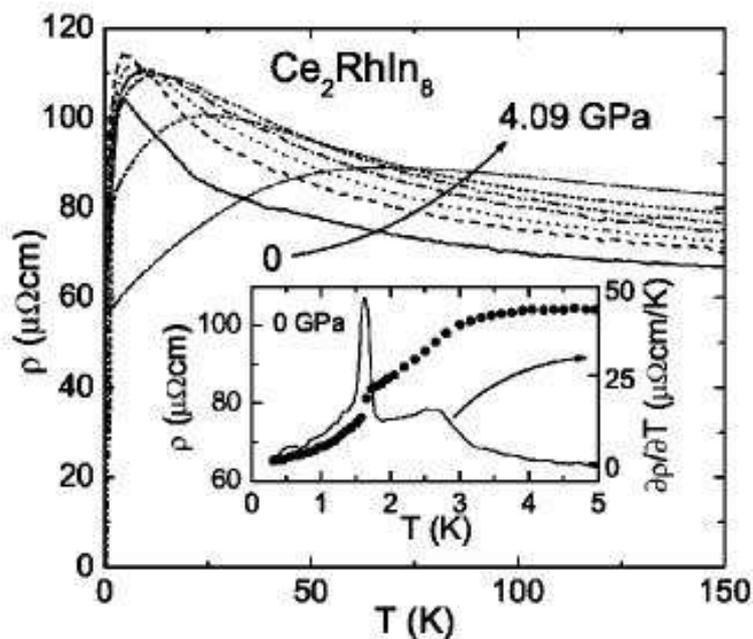


Figura 1.26: Curva de resistividade x temperatura do composto  $Ce_2RhIn_8$ . Ref. (50)

O detalhe da figura 1.26 mostra a resistividade a pressão ambiente e sua derivada. Seu valor é de uma a duas ordens de grandeza maior que os valores apresentados pelos compostos  $CeIn_3$  e  $CeRhIn_5$ . Esta característica se mostrou reproduzível e parece ser uma propriedade intrínseca deste composto.

O detalhe também permite ver as transições  $T_{Neel}$ , em 2,8K, e  $T_{LN}$ , em 1,65K, claramente na curva de resistividade e em sua derivada.

Seguindo estas transições de fase pode-se ver (figura 1.29) que  $T_{Neel}$  decresce linearmente à taxa de 0,76K/GPa até tocar o domo supercondutor, quando a transição deixa de ser detectável nas curvas de resistividade.

A variação da resistividade do composto  $Ce_2RhIn_8$  abaixo de 2K pode ser vista na figura 1.27.

Pode-se notar que a transição  $T_{LN}$ , relacionada ao parâmetro de ordem magnética incomensurável, é muito sensível à pressão, variando de 1,65K a pressão ambiente para 0,95K a 0,02GPa. Uma extrapolação suave situa a

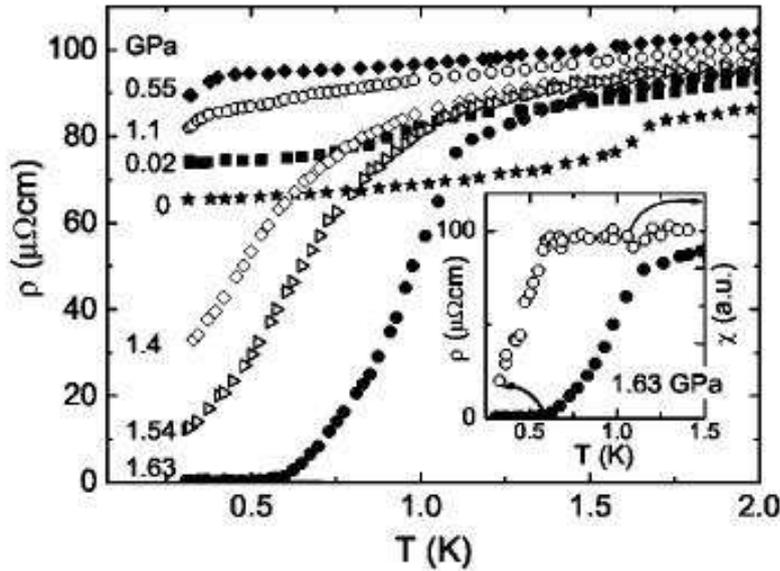


Figura 1.27: Detalhe da região de baixa temperatura da resistividade elétrica do composto  $Ce_2RhIn_8$ . Ref. (50)

pressão crítica desta transição em, aproximadamente,  $(0,04 \pm 0,01)GPa$  e prediz uma taxa de variação de  $(43 \pm 15)K/GPa$ .

Acima de 1,1GPa a derivada da resistividade começa a aumentar abaixo de 1K e uma estrutura semelhante a um início de transição surge em torno de 380mK. A evolução desta estrutura com a pressão leva a uma transição para resistência zero em 600mK à pressão de 1,63GPa. Medidas de susceptibilidade mostram o início do estado diamagnético na temperatura em que a transição para resistência zero se inicia, confirmando a supercondutividade.

A figura 1.28 mostra medidas de resistividade com campo aplicado e pressão de 1,63GPa. O ajuste de uma parábola feito sobre os dados define o valor de  $H_{c2}$  em 53.6 kOe, com uma derivada inicial de  $dH_{c2}/dT \approx 91,8$  kOe/K.

O diagrama de fases da figura 1.29 mostra o comportamento de  $T_c$  com a temperatura obtido das medidas de resistividade. Pode-se notar que  $T_c$  atinge o valor máximo (aprox. 2,5K) próximo ao valor onde a extrapolação de  $T_{NeeI}$  atinge o zero.

No caso da supercondutividade mediada por magnetismo,  $T_C \propto T_{sf}$ , onde  $T_{sf}$  é a temperatura característica de flutuação de spin, que é inversamente proporcional ao coeficiente de Sommerfeld do calor específico (ref 16 em (50)). No caso do  $CeRhIn_5$ ,  $Ce_2RhIn_8$  e do  $CeIn_3$ , os valores de  $\gamma$  são, respectivamente, 0,4, 0,2 e 0,37J/mol Ce  $K^2$ .

Se os valores fossem os mesmos,  $T_C$  deveria ser muito próximo nesta

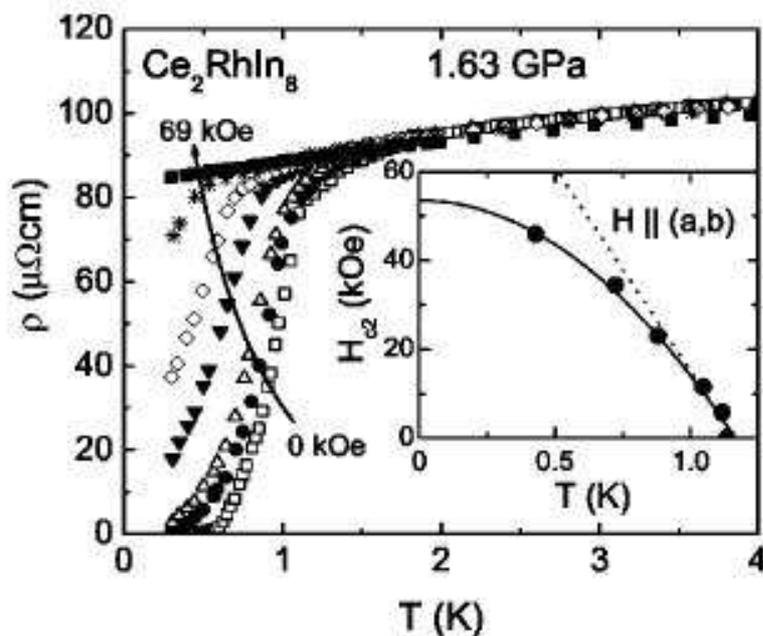


Figura 1.28: Medidas de resistividade com campo no composto  $Ce_2RhIn_8$ . Ref. (50)

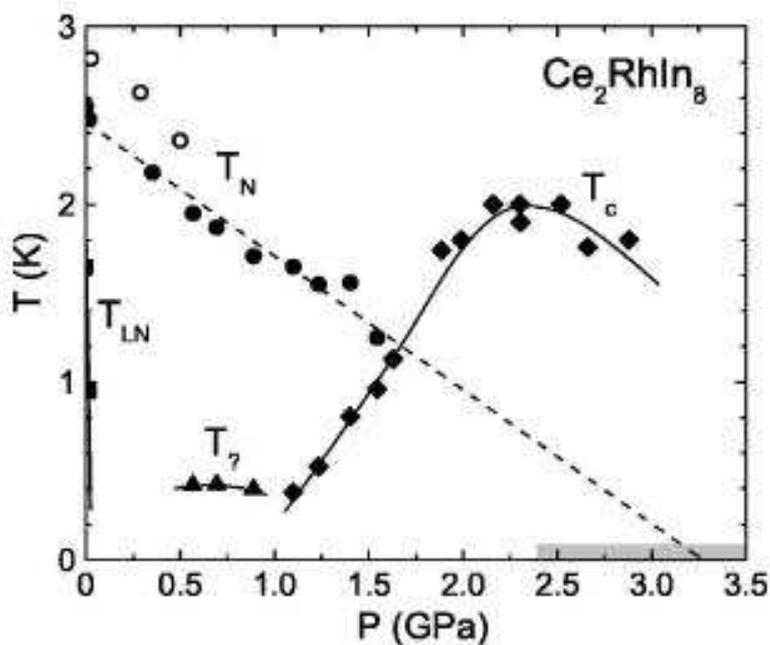


Figura 1.29: Detalhe da região de baixa temperatura da resistividade elétrica do composto  $Ce_2RhIn_8$ . Ref. (50)

família de materiais. Nos compostos intermetálicos, no entanto, o valor de  $T_C$  é muito maior que no  $CeIn_3$ .

Outros fatores, como a dimensionalidade efetiva das flutuações de spin

e a estrutura eletrônica, no entanto, influenciam na temperatura crítica da transição supercondutora. Sabe-se (51) (40)(52). que uma dimensionalidade reduzida favorece o aumento de  $T_C$ .

Os modelos que suportam este cenário se baseiam em argumentos de criticalidade quântica antiferromagnética (53)(54) e predizem que, próximo de  $P_C$ ,  $T_N \propto (P_C - P)^{z/d}$  e  $\rho(T) \propto T^{d/z}$ , onde o expoente dinâmico  $z=2$  e  $d$  é a dimensionalidade efetiva do espectro de flutuações de spin.

Os resultados obtidos do  $CeIn_3$  são consistentes com as previsões deste modelo para  $d=3$ , já que o valor encontrado para a dependência de  $\rho$  com a temperatura neste composto foi  $T^{1,6}$  (28).

O valor de  $d=2$  seria consistente com os resultados experimentais e com as previsões teóricas no  $Ce_2RhIn_8$ , fornecendo uma explicação plausível para o alto valor de  $T_C$  encontrado neste composto. Neste quadro, a supercondutividade mediada por flutuações do tipo  $d$  (55) e o alto valor de  $T_C$  encontrado no  $CeRhIn_5$  seriam devidos a uma otimização da correlação entre a susceptibilidade dinâmica de spin  $\chi(q, \omega)$  e a estrutura eletrônica quase bidimensional destes materiais (56). Esta interpretação contém, ainda, uma justificativa convincente para a sobrevivência do estado supercondutor numa faixa de pressões muito maior nos compostos 1-1-5 e 2-1-8 que no  $CeIn_3$ , pois a interação efetiva de emparelhamento é mais forte em quase 2D que em 3D (51)(40)(52).

## 1.12

### $Ce_2IrIn_8$

O composto  $Ce_2IrIn_8$  é um férmion pesado com  $\gamma \approx 700\text{mJ/mol Ce } K^2$  e estrutura similar à do  $Ce_2RhIn_8$ .

Medidas de resistividade elétrica realizadas (57) mostram que o mesmo não transiciona para o estado supercondutor a temperaturas acima de 300mK.

A aplicação de campo magnético revela ainda que o expoente  $n$  da função  $\rho = \rho_0 + AT^n$  ajustada sobre os dados obtidos nas medidas sem campo magnético aplicado é igual a 1,3, mas assume o valor 1 com campo magnético de 13T aplicado, caracterizando um regime não líquido de Fermi.

Uma anomalia em medidas de calor específico também surge com a aplicação de campo magnético em torno de 24T, fazendo com que o valor de  $\gamma$  aumente de forma divergente abaixo de 0,6K. Ao contrário de outros compostos férmions pesados, o comportamento de tal anomalia não varia significativamente com o aumento do campo

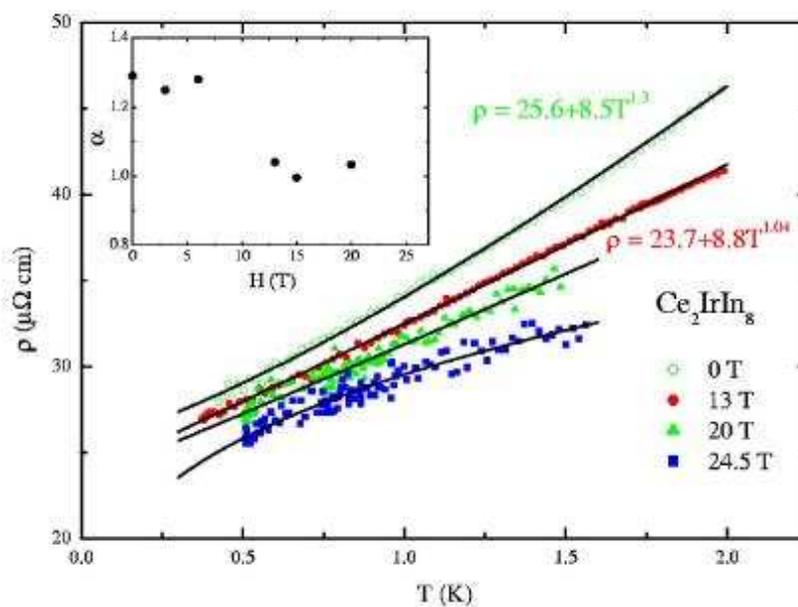


Figura 1.30: Medidas de resistividade com campo no composto  $Ce_2IrIn_8$  (57)

### 1.13

#### $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$

A dopagem do composto  $Ce_2RhIn_8$  com irídio foi estudada através de medidas de calor específico (58) e tempo de relaxação de múons (59).

A família de compostos  $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$  apresentou uma região de ordem antiferromagnética com  $T_{NeeI}$  igual a 2,8K no ródio puro e tendendo a temperatura nula no lado irídio puro, como pode ser visto na figura 1.31.

As medidas de tempo de relaxação de spin de múon revelaram um comportamento tipo vidro de spin em torno do irídio puro, caracterizado por um congelamento desordenado dos spins. A temperatura em que este estado se manifesta é mínima, porém não nula, em torno do irídio puro.

Um diagrama preliminar foi montado a partir dos dados obtidos e pode ser visto na figura 1.31. A hibridização CeM (M=Rh,Ir,Co) se mostrou um fator importante na definição da evolução magnética dos compostos ao longo do diagrama.

As medidas de calor específico realizadas foram preliminares e não desceram a temperaturas baixas o suficiente para detectar transições supercondutoras nos compostos estudados. Também não foram realizadas medidas sob pressão nestes compostos.

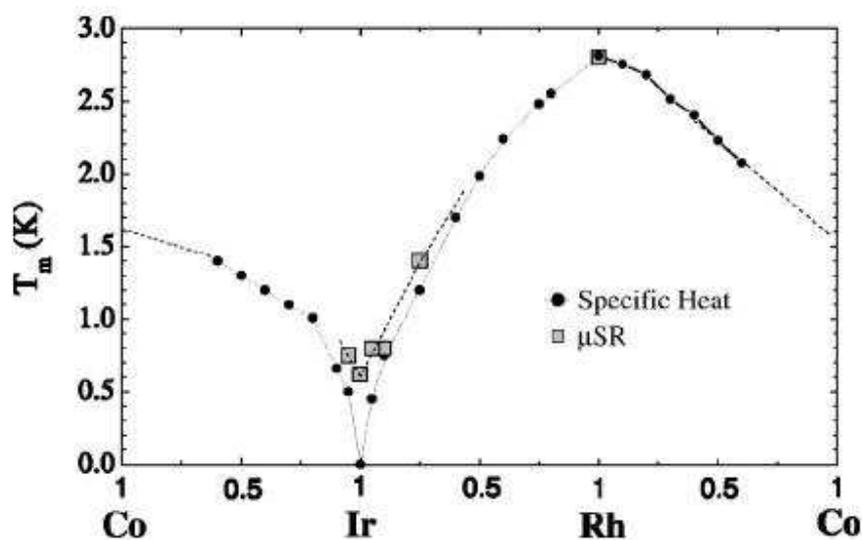


Figura 1.31: Variação de  $T_{NeeI}$  com  $x$  nos compostos  $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$  (59)

### 1.14

#### Medidas de raios-x nos compostos $Ce_nRh_{1-x}Ir_xIn_{3n+2}$

Medidas de raios-x realizadas (60) nos compostos  $Ce_nMIn_{3n+2}$  com  $n=1$  e 2 e  $M = (Rh, Ir)$  mostram que nos compostos 115 ( $n=1$ ) a substituição de ródio por irídio faz com que o parâmetro de rede  $a_0$  aumente, enquanto o parâmetro  $c$  diminui, como pode ser verificado na tabela levando-se em conta a equivalência entre pressão química e pressão aplicada, que a aplicação de pressão a 1.3.

Nestes compostos ( $n=1$ ), o parâmetro  $a_0$ , mede o espaçamento entre os átomos de cério no plano, enquanto o parâmetro  $c$ , reflete a distância entre átomos de cério perpendicular ao plano. A substituição de Rh por Ir nos compostos 115, portanto, tende a achatar a célula unitária e a alargá-la.

Estudos de dopagem no sistema  $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$  (46) mostram que a variação de  $a_0$  e  $c$  é linear com  $x$ .

Composto	$a_0(\text{Å})$	$c(\text{Å})$	$V(\text{Å}^3)$
$CeRhIn_5$	4,652(1)	7,542(1)	163,217(2)
$CeIrIn_5$	4,668(1)	7,515(2)	163,753(5)
$Ce_2RhIn_8$	4,665(1)	12,244(5)	266,456(7)
$Ce_2IrIn_8$	4,671(2)	12,214(6)	266,488

Tabela 1.3: Valores dos parâmetros de rede  $c$  e  $a$  obtidos da literatura (60)

Nos compostos com  $n=2$ , a substituição de Rh por Ir aumenta o parâmetro  $a_0$  e diminui o parâmetro  $c$ , como no caso dos compostos com  $n=1$ .

Aqui, porém, o parâmetro  $c$  mede a distância entre duas bicamadas de cério, enquanto o parâmetro  $a_0$  representa a separação entre átomos de cério no plano.

A substituição progressiva (61) de átomos de ródio por irídio na estrutura dos compostos com  $n=2$  também apresenta uma variação linear dos parâmetros  $c$  e  $a_0$ .

### 1.15

#### Este trabalho

As informações apresentadas até aqui podem ser estruturadas da seguinte maneira:

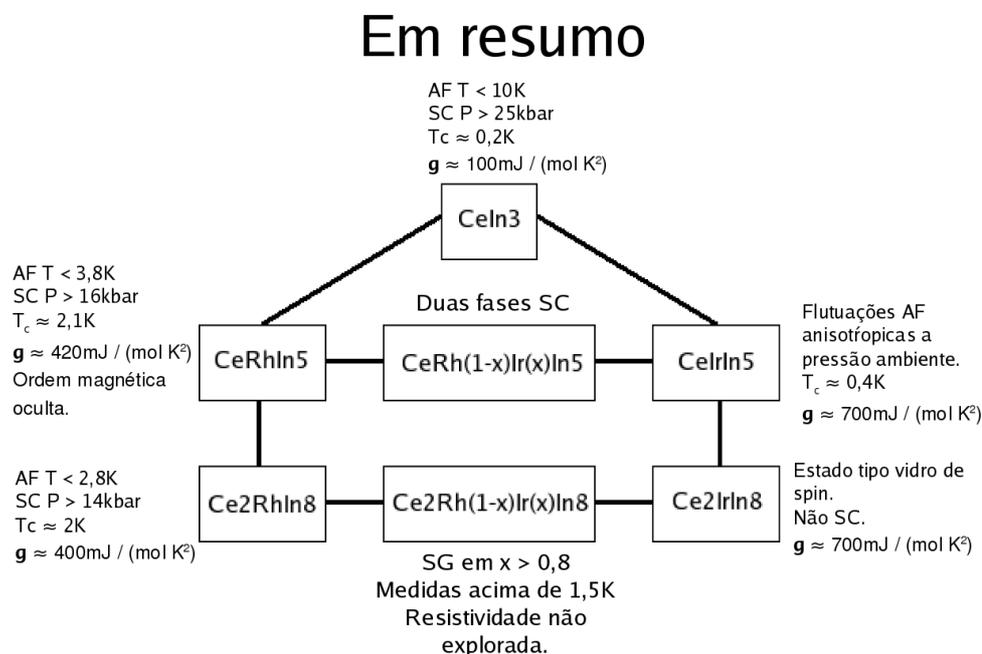


Figura 1.32: Síntese das características dos compostos relevantes para este trabalho.

A diluição de irídio no  $Ce_2RhIn_8$  só havia sido estudada em temperaturas acima de 1,5K quando este trabalho começou e, mesmo assim, sem a aplicação de pressão.

A motivação para uma caracterização mais aprofundada dos compostos  $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$  surge da riqueza de fenômenos físicos encontrada nos compostos precursores desta família.

Neste trabalho(62), a série de compostos  $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$  foi caracterizada utilizando medidas de resistividade sob pressão e, em alguns casos, com campo magnético aplicado. O valor de  $x$  foi variado descontínuamente entre 0,15 e 0,95 e a pressão aplicada não ultrapassou 24kbar.

Duas faixas de temperatura foram utilizadas. A mais baixa, entre 100mK e 1,5K, utilizou um refrigerador de diluição de  $^3He$  em  $^3He$  para ser alcançada. A mais alta foi obtida em criostatos convencionais refrigerados a hélio líquido.

Nos próximos capítulos são discutidos os métodos experimentais e os resultados obtidos, assim como sua situação no atual contexto.