

4

Discussão

Uma discussão dos resultados à luz do que se sabe sobre os compostos da família 115 se inicia aqui. O foco inicial é feito na construção de diagramas de fases pressão-temperatura a partir dos resultados obtidos em cada concentração estudada, e na comparação com o conhecimento disponível na literatura.

A fusão dos diagramas pressão-temperatura de cada composição é representada no diagrama final, do tipo pressão-composição-temperatura, exibido e discutido na seção final deste capítulo.

4.1

Amostra com $x=0,15$

4.1.1

Diagrama de fases da amostra com $x=0.15$

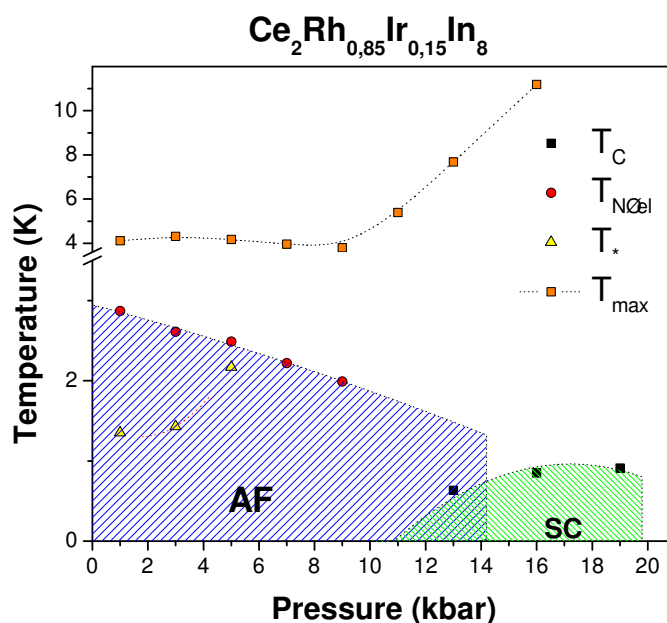


Figura 4.1: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.15$.

Nota-se no diagrama da figura 4.1 que um domo supercondutor surge numa região onde a temperatura de Néel não pode mais ser identificada nas medidas de resistividade.

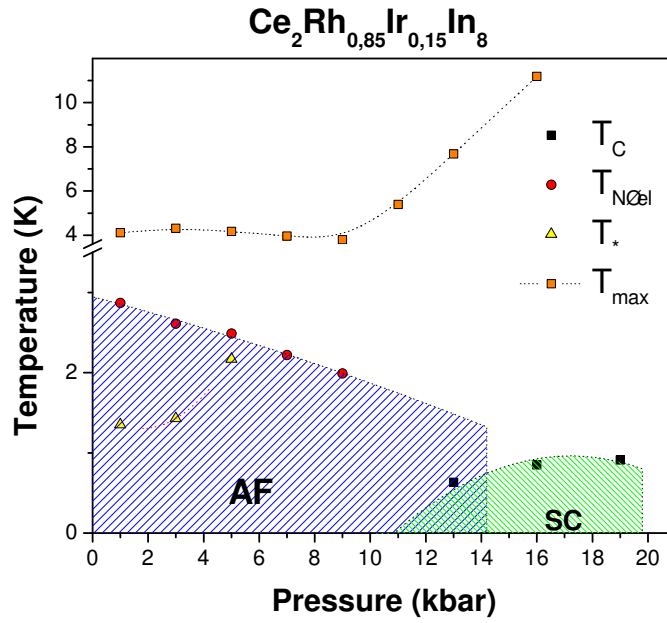
Nota-se também uma transição, provavelmente de origem magnética, que surge dentro da região de ordem antiferromagnética (AF). Sua temperatura aumenta com a pressão até que deixa de ser visível, ainda dentro do domo AF.

A temperatura do máximo da resistividade descreve uma parábola pouco acentuada com máximo em 5kbar. Após atingir um mínimo em 9kbar, dispara para cima claramente correlacionada com o surgimento da supercondutividade.

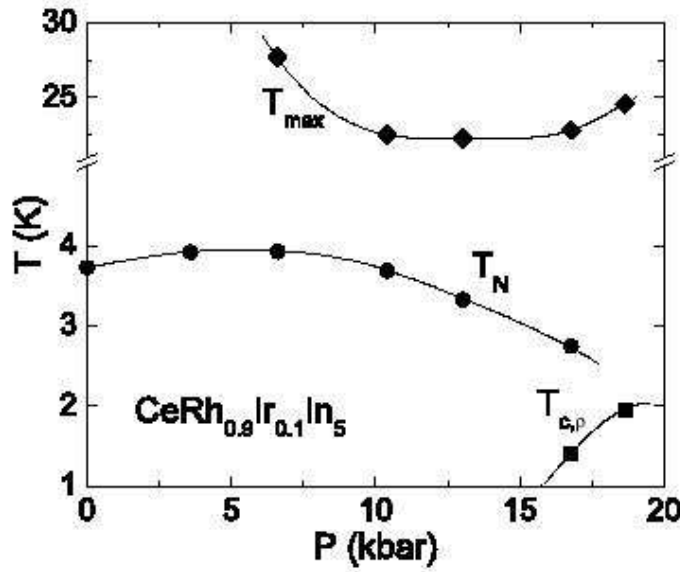
Os valores exibidos no diagrama estão listados na tabela 3.2.

Uma comparação deste diagrama com o diagrama obtido de uma concentração próxima ($x=0,10$) nos compostos 115 pode ser vista na figura 4.2.

Apesar de as duas amostras não serem exatamente da mesma concentração, a diferença entre elas é tão pequena quanto o erro experimental relacionado com o valor de x , permitindo uma comparação qualitativa entre ambas.



4.2(a): $Ce_2Rh_{0.85}Ir_{0.15}In_8$



4.2(b): $CeRh_{0.9}Ir_{0.1}In_5$ da ref. (63)

Figura 4.2: Comparação entre os diagramas dos compostos $Ce_2Rh_{0.85}Ir_{0.15}In_8$ e $CeRh_{0.9}Ir_{0.1}In_5$.

Nota-se, comparando os dois diagramas *desta concentração*, que a supercondutividade no composto 218 se manifesta numa pressão 2kbar mais baixa que no composto 115.

Nota-se, também, que a assinatura da temperatura de Néel na resistivi-

dade deixa de ser visível no composto 218 numa pressão aproximadamente dois terços mais baixa que no composto 115. Além disso, a temperatura crítica no composto 218 é menor que no composto 115 por um fator aproximadamente 2.

As temperaturas de transição antiferromagnética no composto 218 também são 75% menores que no composto 115 e, em baixas pressões, a temperatura do máximo da resistividade é quase uma ordem de grandeza menor que no composto 218 que no composto 115.

O diagrama mostra, ainda, que a evolução da temperatura do máximo da resistividade passa por um valor mínimo melhor definido no composto 218 que no composto 115.

A partir das observações acima pode-se concluir que, considerando a pressão central das regiões supercondutoras igual a 19 kbar no composto 115 e 17 kbar no composto 218, pode-se supor que o $CeIn_3$ quase 2D no composto 218 está sob pressão química 10% maior.

Conclui-se, também, que a ordem AF é desfavorecida com a adição de mais uma camada de $CeIn_3$ ao composto 115, mas as flutuações magnéticas consequentes de sua extinção parecem começar a ocorrer em pressões menores.

A supercondutividade também parece ser desfavorecida com a adição de mais uma camada de $CeIn_3$ ao composto 115, pois T_c diminui. Este comportamento, no entanto, é mais próximo do $CeIn_3$ 3D que o apresentado pelo composto 115.

Por último, a existência de dois fatores distintos que influenciam na supercondutividade é sugerida pois, apesar da região supercondutora se alargar no composto 218, o valor máximo de sua temperatura crítica é menor.

4.1.2

Medidas de resistência elétrica com campo magnético aplicado.

O campo necessário para suprimir completamente a supercondutividade nesta amostra é superior a 2,5T.

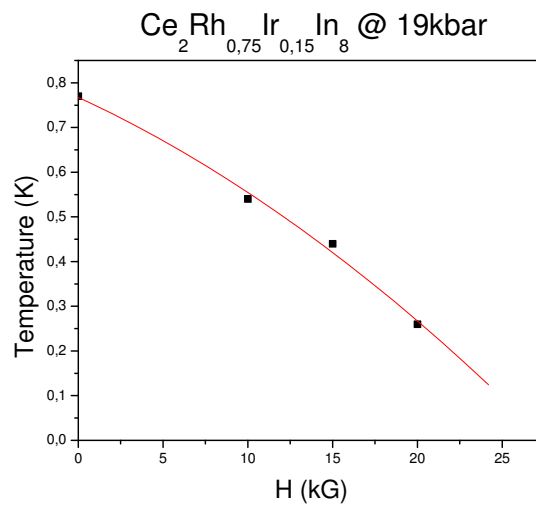


Figura 4.3: Variação da temperatura de transição supercondutora com o campo magnético aplicado no plano AB à pressão de 19kbar. A temperatura de transição foi tomada no meio da transição.

4.2

Amostra com $x=0,25$

4.2.1

Diagrama de fases da amostra com $x=0.25$

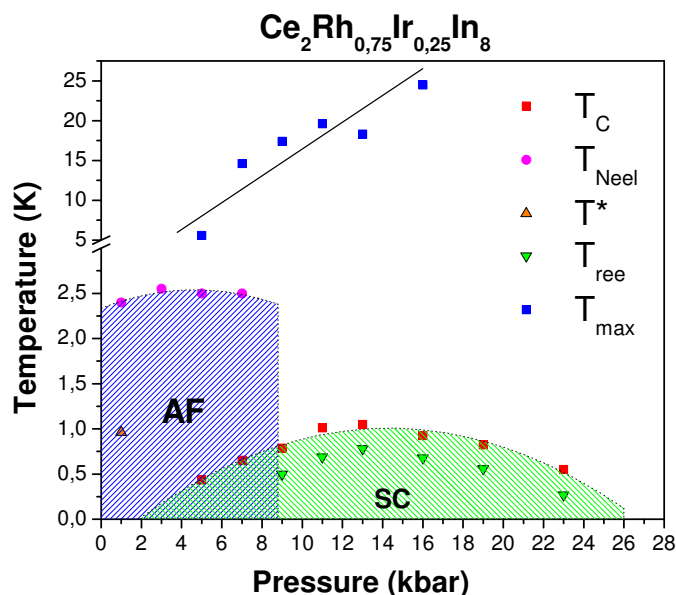


Figura 4.4: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.25$.

O procedimento para determinação da temperatura de Néel foi o mesmo utilizado na amostra com 15% de irídio.

No diagrama de fases desta amostra pode ser visto, novamente, que o domo supercondutor surge abaixo da região onde a transição antiferromagnética não pode mais ser determinada.

O domo de supercondutividade reentrante é visível dentro do domo supercondutor, que possui um máximo em torno de 14kbar.

O comportamento da temperatura do máximo da resistividade é ascendente com a pressão. As regiões cuja derivada é maior são o início e o centro do domo de supercondutividade.

Os valores plotados no diagrama estão listados na tabela 3.3.

4.2.2

$H \times T$ $x=0.25$

O campo necessário para suprimir a supercondutividade nesta concentração de irídio é 2,5T e, portanto, menor que no caso da amostra com $x=0.15$.

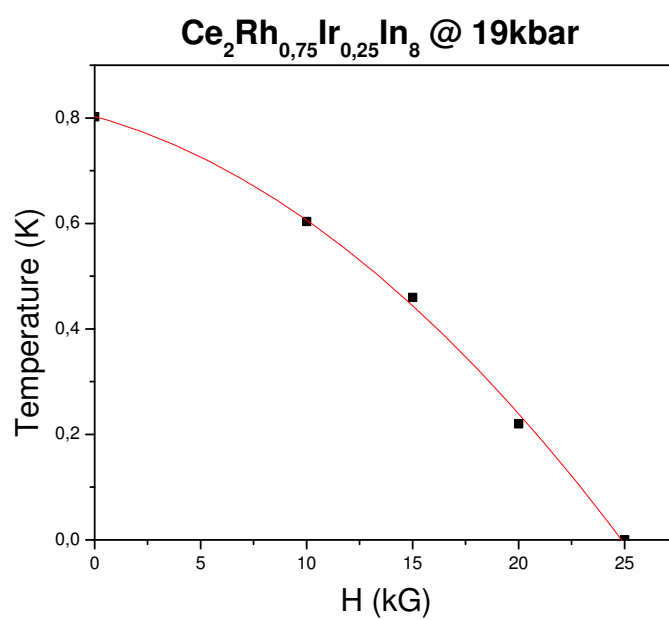


Figura 4.5: HxT para $x=0.25$ a 19kbar.

4.3

Amostra com $x=0,60$

4.3.1

Diagrama de fases da amostra com $x=0.60$

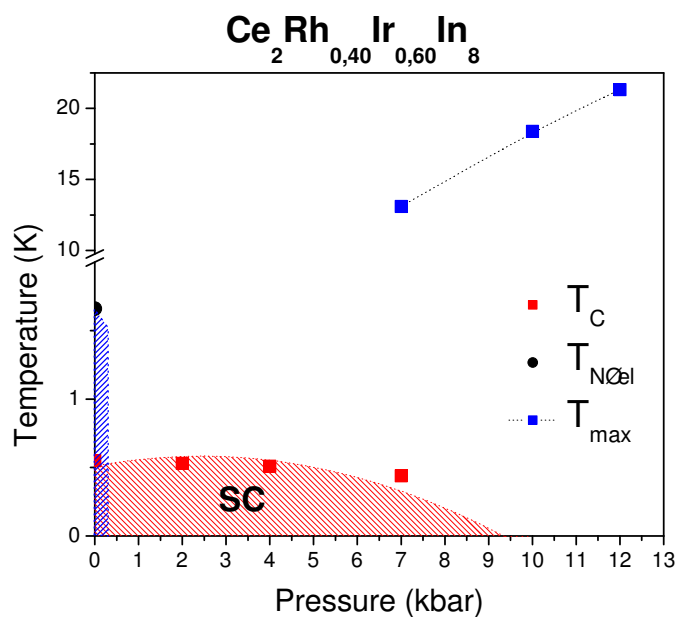


Figura 4.6: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura com $x=0.60$.

A figura 4.6 mostra um domo supercondutor com máximo em torno de 3kbar. A temperatura de Néel a pressão ambiente foi obtida da literatura (ref Moreno).

O valor do máximo da resistividade parece aumentar linearmente com a pressão, em claro contraste com as outras amostras. Os valores plotados no diagrama estão listados na tabela 3.4.

4.4

Amostra com $x=0,75$

4.4.1

Diagrama de fases da amostra com $x=0.75$

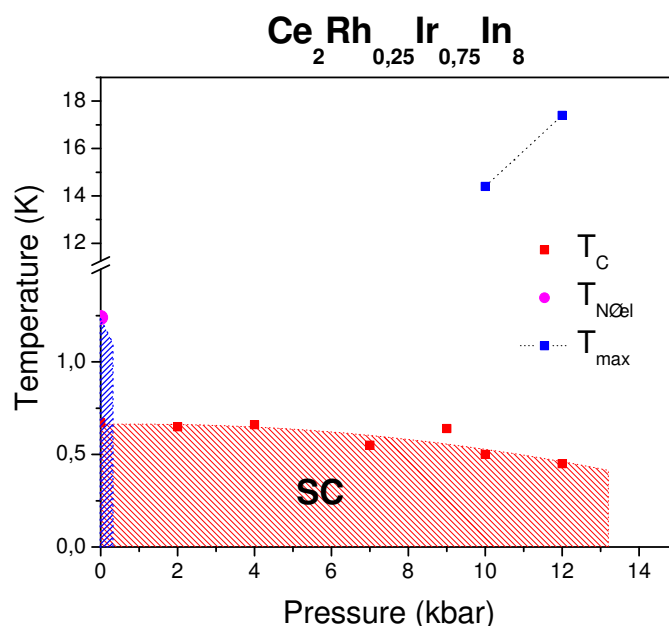


Figura 4.7: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura com $x=0.75$.

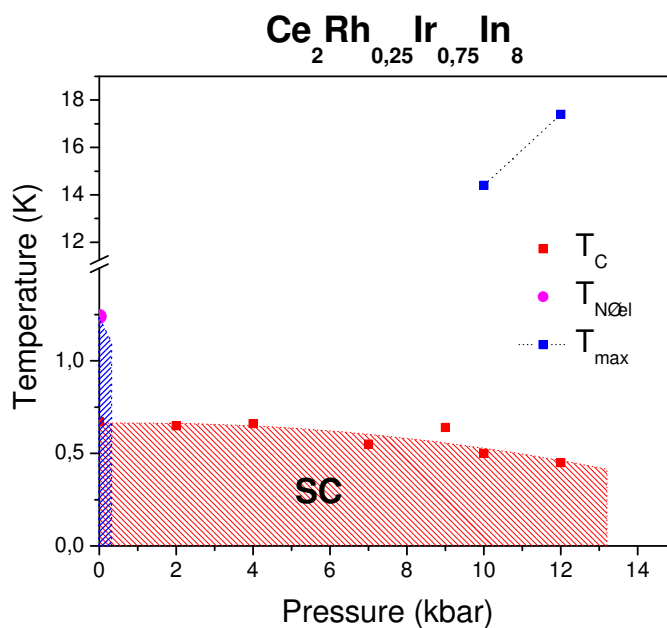
O diagrama mostra que o domo supercondutor atinge valores de pressão mais elevados que os atingidos pela amostra com $x=0,60$. Mostra também que a temperatura do máximo de resistividade varia com a pressão de maneira análoga à da amostra com $x=0,60$.

O valor de T_{Neel} à pressão ambiente foi obtido da literatura. Infelizmente, sua evolução com a pressão aplicada não pode ser observada.

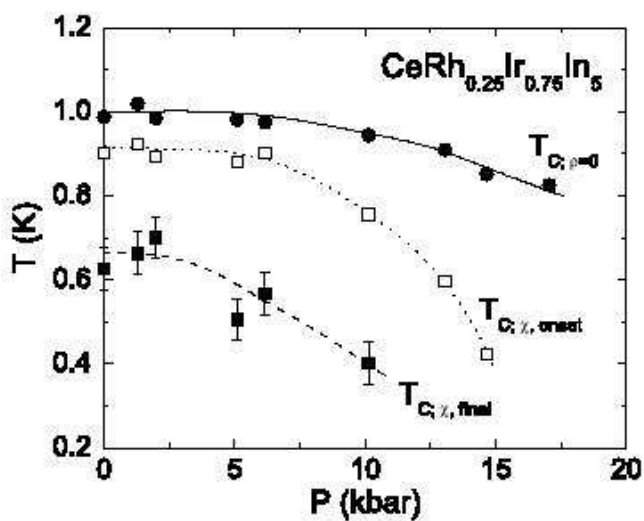
Os dados exibidos no diagrama estão listados na tabela 3.5.

Comparando-se o diagrama 218 com $x=0,75$ com o diagrama 115 de mesma concentração é possível notar que a temperatura da transição supercondutora é 75% menor no composto 218 que no composto 115. Nota-se, ainda, que ambos os compostos são supercondutores à pressão ambiente.

Os diagramas mostram, também, que nos dois compostos a redução de T_c com a aplicação de pressão é de aproximadamente 20% nos primeiros 15kbar.



4.8(a): $Ce_2Rh_{0.25}Ir_{0.75}In_8$



4.8(b): $CeRh_{0.25}Ir_{0.75}In_5$

Figura 4.8: Comparação entre os diagramas dos compostos $Ce_2Rh_{0.25}Ir_{0.75}In_8$ e $CeRh_{0.25}Ir_{0.75}In_5$. Ref. (63).

4.5
Amostra com $x=0,80$

4.5.1
Diagrama de fases da amostra com $x=0.80$

O diagrama de fases, apesar de não exibir informações muito significativas para estas amostras, revela um comportamento crescente da temperatura do máximo da resistividade elétrica com a pressão. Os valores expostos no diagrama se encontram na tabela 3.8.2.

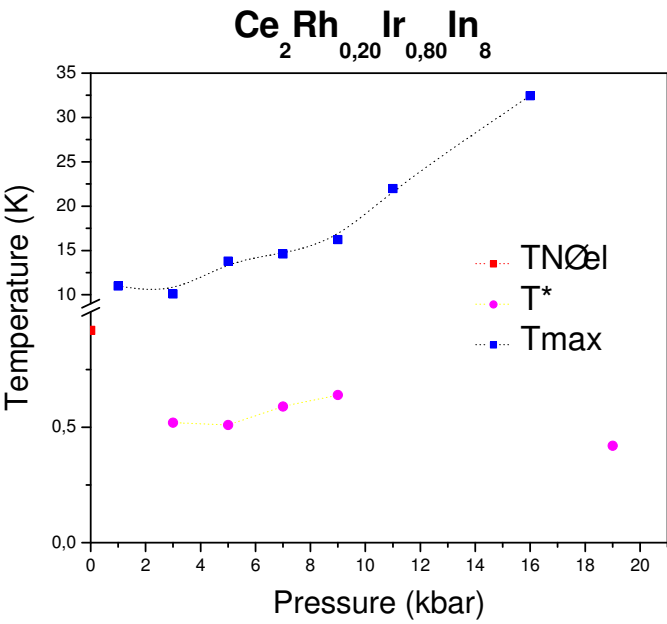


Figura 4.9: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura com $x=0.80$.

4.6

Amostra com $x=0,95$

4.6.1

Diagrama de fases da amostra com $x=0.95$

A ausência de transições magnéticas ou supercondutoras deixa este diagrama pouco interessante, porém o comportamento da temperatura do máximo da resistividade, aumentando a taxa de variação com a pressão a partir de 9kbar pode ser comparado a outras amostras, onde uma variação análoga estava relacionada ao surgimento de supercondutividade.

Os valores expostos no diagrama se encontram na tabela 3.7.

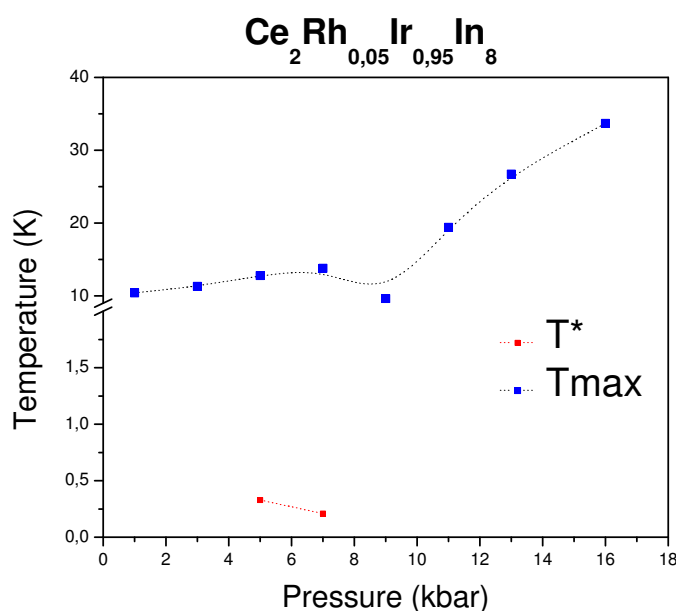


Figura 4.10: Diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura com $x=0.95$.

4.7

Diagrama de fases pressão-composição-temperatura do composto $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$.

Os dados anteriores permitem a elaboração de vários diagramas de fases a pressões constantes. Nem todas as amostras, no entanto, foram medidas sob as mesmas pressões, dificultando a exposição dos dados sem a utilização de recursos tridimensionais.

Afim de facilitar a visualização e levando em conta que o erro na estimativa da pressão foi de aproximadamente um kilobar, alguns dados estão expostos no diagrama abaixo em pressões até um kilobar fora da pressão em que foram medidos.

O diagrama obtido revela a presença de duas fases supercondutoras, possivelmente distintas, na série $CeRh_{1-x}Ir_xIn_8$ e coloca este composto como o quarto férmion pesado conhecido a apresentar esta característica.

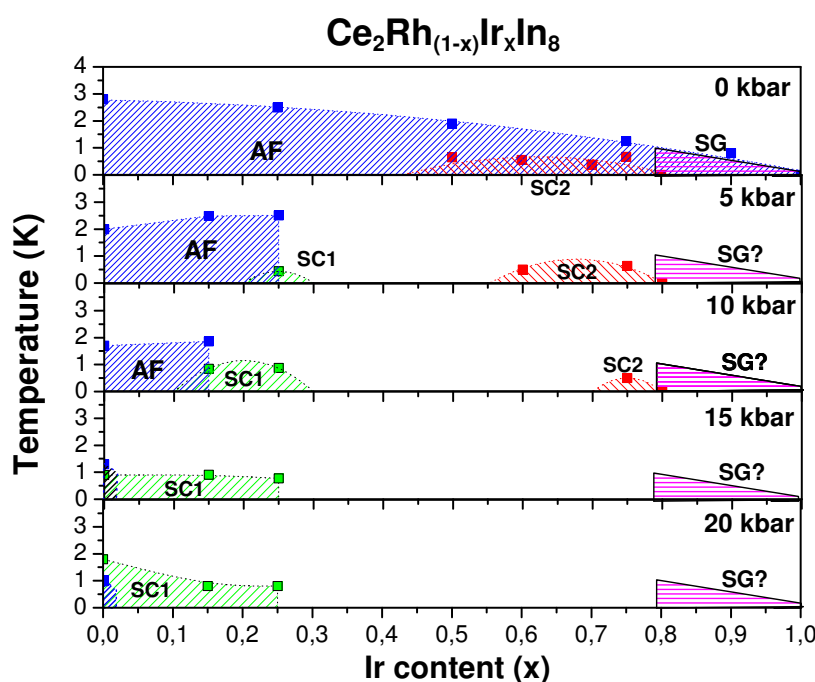


Figura 4.11: Diagrama de fases obtido.

No diagrama da figura 4.11 pode-se observar que a transição antiferromagnética responde à pressão aplicada ocorrendo em concentrações proporcionalmente menores de irídio.

Observa-se, também, que fase supercondutora induzida por pressão parece estar relacionada com a pressão onde T_{Neel} deixa de ser identificável nas medidas de resistividade.

No diagrama, a fase supercondutora à pressão ambiente é inibida pela aplicação de pressão e desaparece completamente em pressões superiores a 10kbar.

Quanto ao estado supercondutor, ele não se manifesta em valores de x maiores ou iguais a 0,8.

As observações acima sugerem as seguintes hipóteses:

1. O domo supercondutor à pressão ambiente pode estar sediando dois tipos de fases supercondutoras coexistentes.
2. A fase SC induzida por pressão seria mediada por flutuações magnéticas e a composição de pressão e concentração de irídio parece favorecê-la.
3. A fase supercondutora em torno de $x=0,75$ pode ter origem magnética com simetria diferente da primeira. Pode, também, estar relacionada com flutuações de valência, como no caso do composto $CeCu_2Si_2$.

Uma comparação dos diagramas pressão-composição-temperatura dos compostos 115 e 218 é feita na figura 4.12.

A comparação entre os dois diagramas sugere que a supressão completa da fase supercondutora, nos compostos 218, em valores maiores que $x > 0,75$ pode estar relacionada com um estado tipo vidro de spin reportado na literatura (59) em torno do Ce_2IrIn_8 e caracterizado por forte desordem magnética.

Pode-se sugerir, também, que nas duas famílias de compostos a aplicação de pressão parece favorecer o surgimento do estado supercondutor no lado rico em ródio.

Nas duas famílias de compostos a pressão aplicada desfavorece a ordem magnética, levando a pressão crítica onde a ordem se extingue para valores menores.

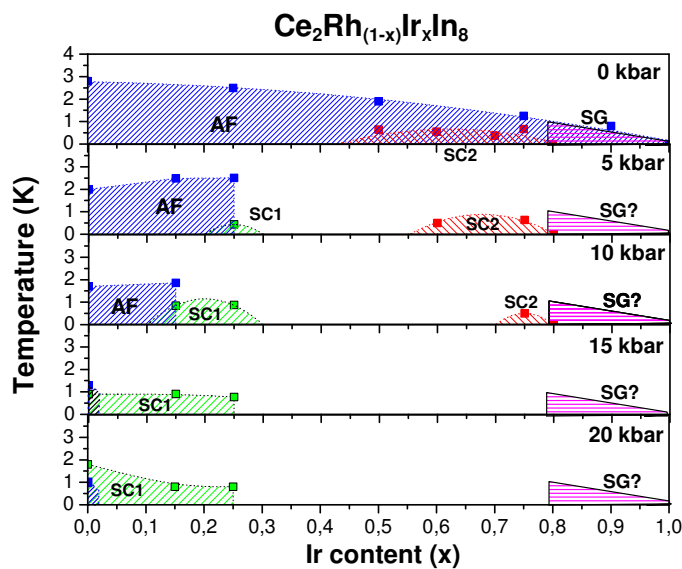
O domo supercondutor à pressão ambiente, à semelhança dos compostos 115 pode conter dois tipos de ordem supercondutora coexistentes. Neste caso a aplicação de pressão faria com que a fase relacionada à extinção da ordem magnética migrasse para valores de x menores no diagrama 218.

4.8

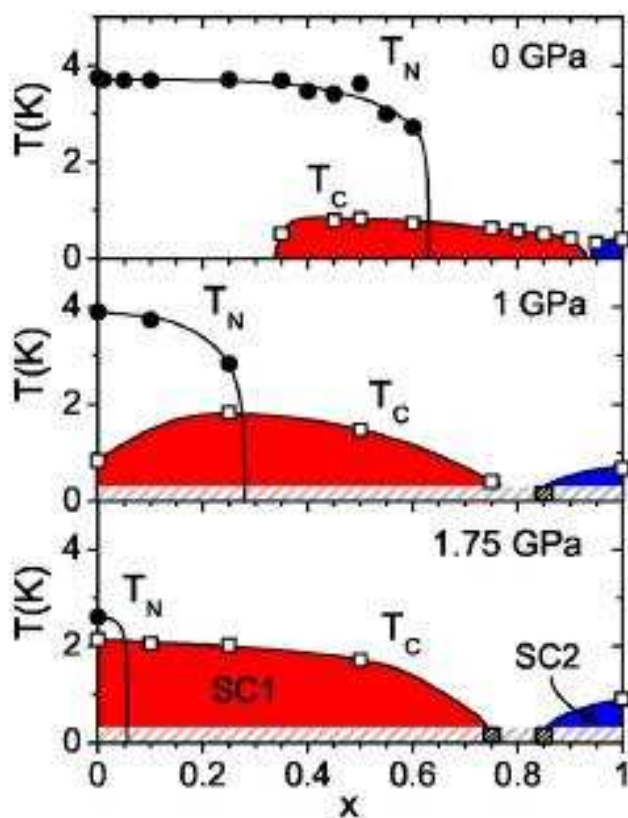
Sobre a possibilidade de contaminação dos 218 por 115

Comparando o diagrama obtido dos compostos 218 com o diagrama dos 115 nota-se que as temperaturas críticas por concentração são muito diferentes.

Levando-se em conta que as medidas volumétricas realizadas nos compostos puros 218 confirmam a supercondutividade, não haveria motivo para os compostos dopados 218 não possuírem supercondutividade volumétrica.



4.12(a): $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$



4.12(b): $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$

Figura 4.12: Comparação entre os diagramas pressão-composição-temperatura dos compostos $Ce_2Rh_{1-x}Ir_xIn_8$ e $CeRh_{1-x}Ir_xIn_5$.

Além disto, regiões de mesma concentração apresentam comportamentos diferentes em cada diagrama. O lado irídio puro também é diferente nos 115 e nos 218.

4.9

Expoentes obtidos nos diagramas

Uma análise dos expoentes obtidos nos dados utilizados para compor os diagramas de fases é apresentada abaixo. Antes, porém, é descrito o método para obtenção destes expoentes:

1. A resistência residual de cada curva resistividade x temperatura foi determinada da melhor maneira possível, por extrapolação do comportamento em temperaturas acima da transição.
2. A resistência residual foi subtraída dos dados e o logaritmo do resultado foi plotado contra o logaritmo da temperatura.
3. Janelas sucessivas de n pontos (n menor que 15) foram extraídas dos dados e uma regressão linear foi realizada em cada janela. O parâmetro angular e o valor de r^2 foram extraídos das regressões e replotados contra os dados para verificação.

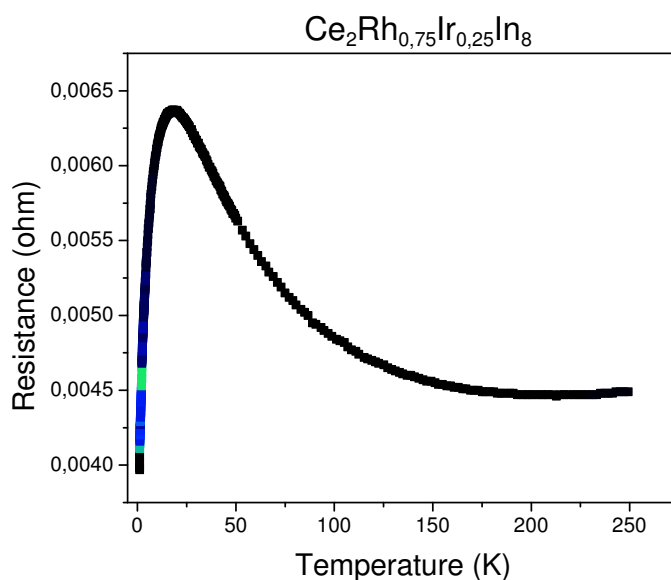


Figura 4.13: Curva representativa RxT com escalas lineares nos dois eixos mostrando as regiões onde os expoentes foram identificados.

4. Códigos de cores foram gerados para cada ponto experimental baseados no expoente encontrado. Três cores foram escolhidas para representar os

três expoentes críticos representativos: azul para o expoente 1, verde para 1,5 e vermelho para 2. A intensidade de cada cor foi modulada por uma gaussiana centrada em torno do expoente e com largura a meia altura igual a 0,08.

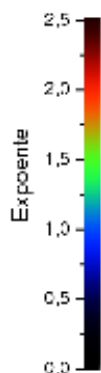


Figura 4.14: A legenda de codificação dos expoentes.

5. Após codificar todas as curvas dos diagramas, elas foram plotadas sobre ele usando o software Origin, usando a pressão como coordenada x, temperatura como coordenada y e o código calculado para definir a cor do ponto. O resultado pode ser visto na figura 4.17. A cor preta foi usada onde os expoentes não se aproximaram dos valores representativos.

Os diagramas obtidos seguem abaixo:

Pode-se notar que a região sobre os domos supercondutores apresenta cor predominante azul, caracterizando uma dependência aproximadamente linear da resistência elétrica com a temperatura.

Esta dependência sugere que flutuações de spin quase 2D relacionadas a um ponto crítico quântico AF estariam mediando a supercondutividade neste composto.

Pode-se notar, também, uma predominância da cor verde imediatamente abaixo da transição magnética no diagrama para a amostra com $x=0.15$, na região de pressão onde a supercondutividade não se manifestou ainda. O motivo pelo qual o expoente 1,5 estaria relacionado à ordem magnética AF deve ser investigado.

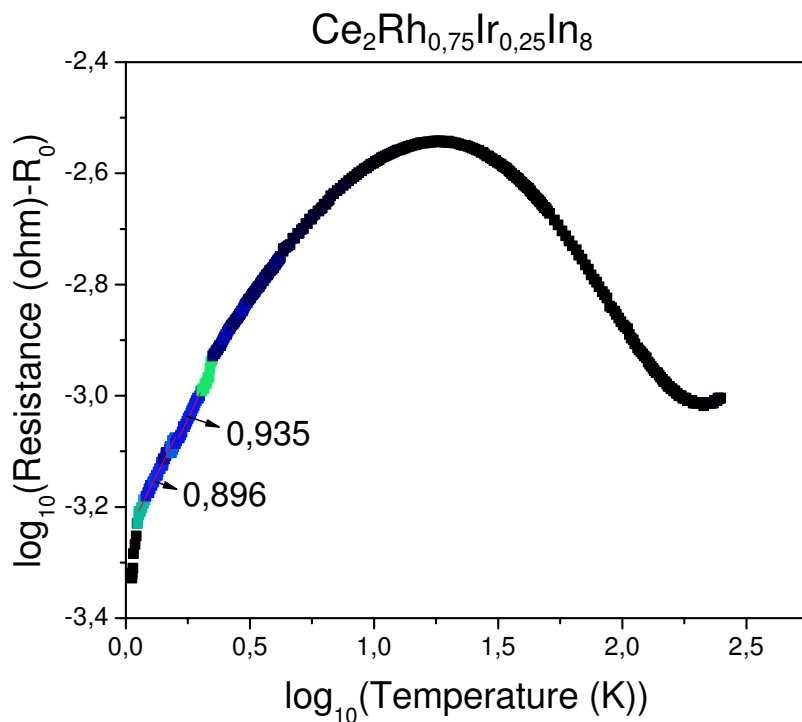


Figura 4.15: A mesma curva da figura 4.13, agora em escala logarítmica.

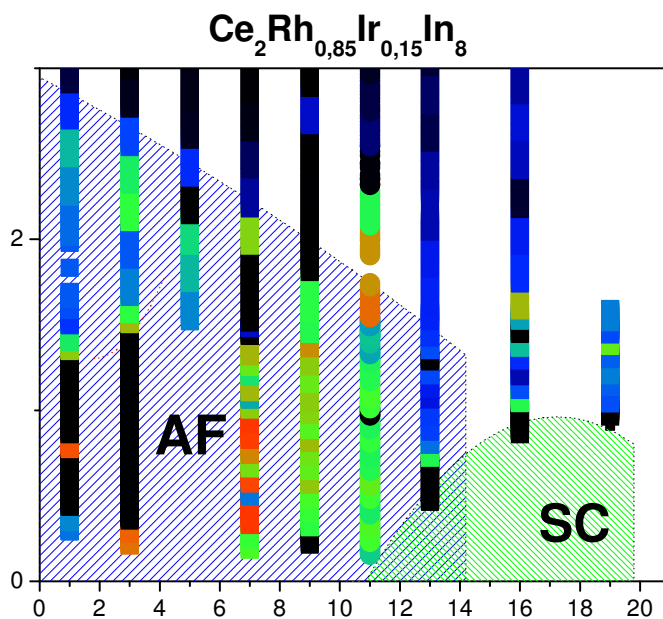


Figura 4.16: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.15$.

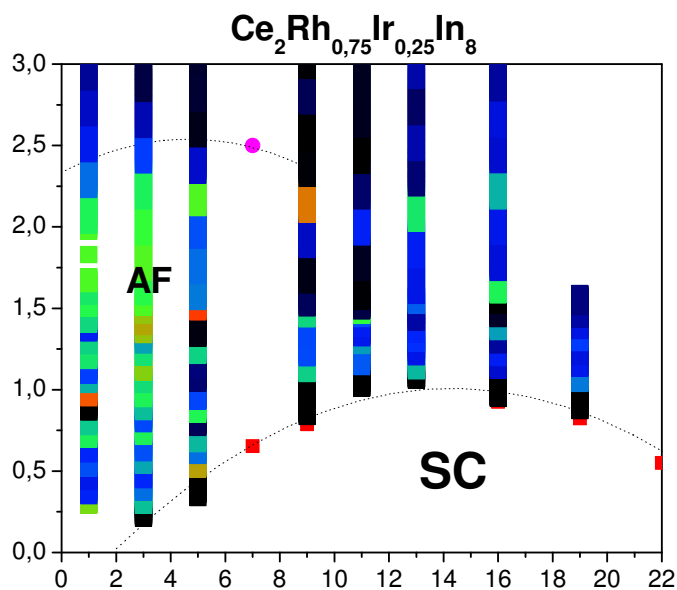


Figura 4.17: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.25$.

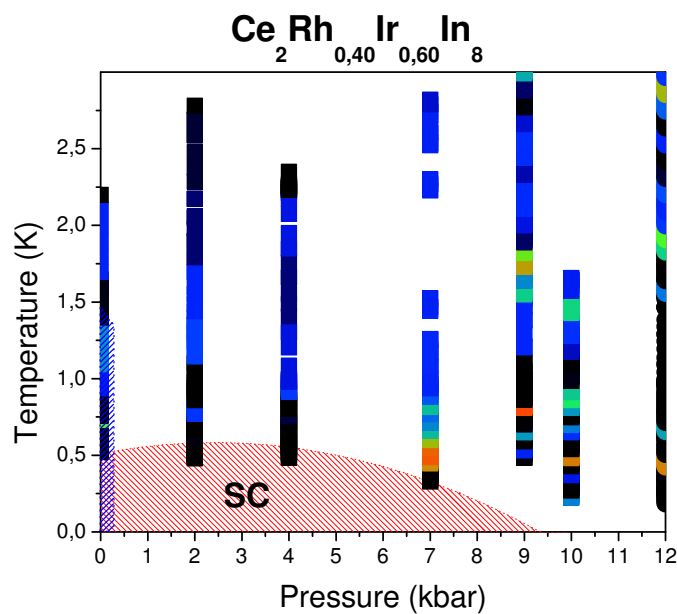


Figura 4.18: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.60$.

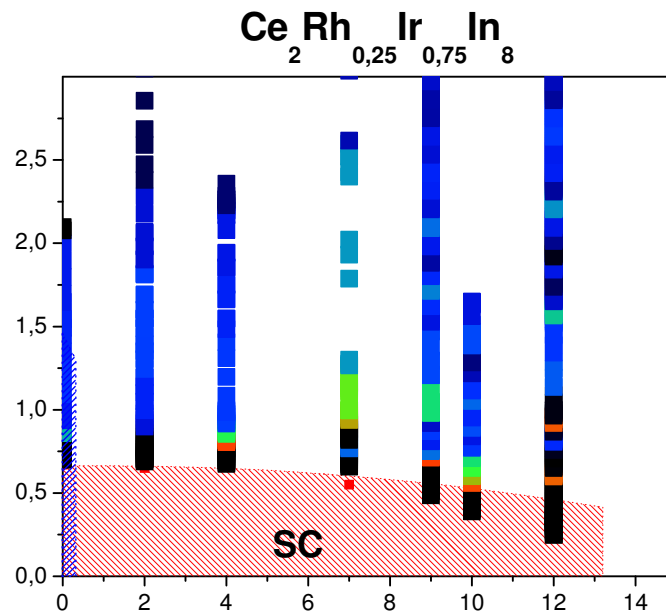


Figura 4.19: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.75$.

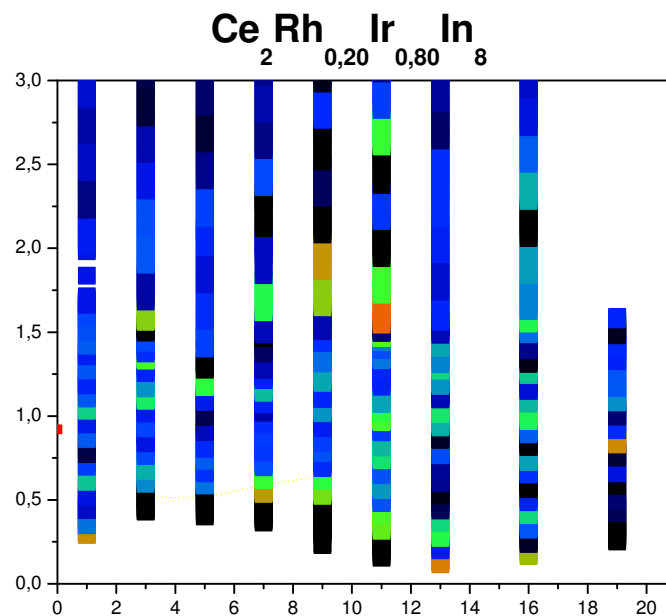


Figura 4.20: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.80$.

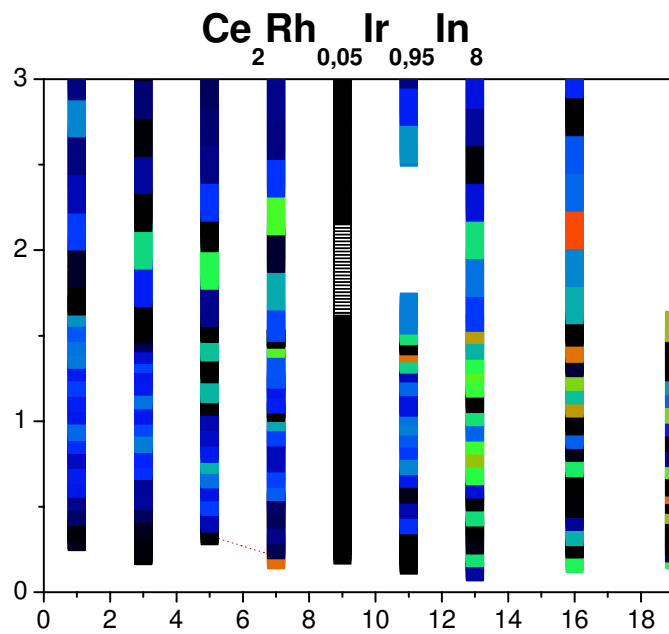


Figura 4.21: Expoentes encontrados no diagrama de fases resistividade-pressão-temperatura da amostra com $x=0.95$.