

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

*Fenomenologia Crítica em Sistemas
Magnéticos Reentrantes*

Claudia Maria Haetinger

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

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

Porto Alegre

2010

De tudo ficaram três coisas:

*A certeza de que estamos começando,
A certeza de que é preciso continuar e
A certeza de que podemos ser interrompidos
antes de terminar
Fazer da interrupção um caminho novo,
Fazer da queda um passo de dança,
Do medo uma escola,
Do sonho uma ponte,
Da procura um encontro,
E assim terá valido a pena existir!*

Fernando Sabino

Agradecimentos

- ao Dr. Júlio V. Kunzler, pela orientação na iniciação científica
- ao Dr. Paulo Pureur Neto, pela amizade e confiança depositada em mim, e pelo exemplo profissional de que na Ciência todo trabalho que fizermos merece ser bem feito;
- ao Professor Dr. Jacob Schaf sua atenção e colaborações a este trabalho;
- Ao Dr. Luis Ghivelder e Dr. Rafael S de Freitas pela amizade e acolhida em seu laboratório durante o meu estágio na UFRJ. E posteriormente pelas discussões e colaborações a este trabalho;
- aos velhos e novos integrantes do grupo de Resistividade (Rosângela, Pedro, Marco, Arlei, Valdemar, Olinda ..e Jorge, Fabiano, Lucas...);
- ao Luiz Antônio (lab. Criogênia) e Danilo (lab. Vácuo) pela amizade e boa vontade;
- aos integrantes da oficina Mecânica pela confecção de peças , em particular ao meu amigo Paulinho;
- ao pessoal da biblioteca por realizar seu trabalho com dedicação;
- aos amigos as vezes distantes, mas que sempre estiveram presentes: Edilson, Raquel, Luciana, Orlando e Fabrício;
- à minha amiga Cláudia Winge agradeço por sempre estar ao meu lado em todos os momentos;
- aos meus pais Claudio e Teresa que sempre dedicaram sua vida a família, e que nunca mediram esforços para oferecer-me a melhor educação;
- à minha madrinha Lucinda que de muitas formas participou na minha educação;
- E a minha grande família (Max, Dani, Vanessa, Tanise, Marc, Paula, Günther, Giovanni, ..) pelo apoio e carinho

A minha Mãe, com amor

por acreditar que o caráter de uma pessoa
se revela não nas aparências, mas em suas ações.

Abstract

In this work we report an experimental study of the critical phenomenology near the Curie temperature, T_c , of re-entrant magnetic systems. In these systems, an intermediate ferromagnetic-like state occurs between the high-temperature paramagnetic phase and the spin glass-like ground state. The metallic alloys $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ were prepared. The amorphous $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$ were also studied. The following properties were carefully measured in the temperature range encompassing T_c : magnetization, AC susceptibility, electrical resistivity and specific heat. Several methods were employed for extracting the static critical exponents α , β , γ e δ . As a rule, the values obtained for these exponents are intermediate between those expected for 3D-Heisenberg ferromagnets and those experimentally observed in spin glass transitions. We conclude that disorder and frustration, that are basic ingredients to characterize the magnetic ordering in the re-entrant materials, are relevant to explain the critical behavior of these systems near the ferromagnetic transition.

Resumo

Neste trabalho apresentamos um estudo experimental sobre a fenomenologia crítica nas proximidades da temperatura de Curie, T_c , de sistemas magnéticos reentrantes. Tais sistemas se caracterizam pela ocorrência de uma fase intermediária, com ordenamento do tipo ferromagnético, entre o estado paramagnético de alta temperatura e um estado fundamental tipo vidro-de-spin. Preparamos amostras das ligas cristalinas $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Estudamos também fitas amorfas $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$. Medidas detalhadas em torno de T_c foram feitas das seguintes propriedades: magnetização, susceptibilidade AC, resistividade elétrica e calor específico. Diversos métodos de análise dos resultados foram empregados para obtenção dos expoentes críticos estáticos α , β , γ e δ . De modo geral os expoentes obtidos mostram valores intermediários entre aqueles preditos pelo modelo de 3D-Heisenberg no caso ordenado e os valores típicos de uma transição vidro-de-spin. Concluimos que a desordem e frustação, que caracterizam o ordenamento magnético dos materiais reentrantes, são relevantes ao comportamento crítico nas vizinhanças de transição ferromagnética nestes sistemas.

Apresentação

Os sistemas magnéticos desordenados tem sido estudados com grande interesse pela comunidade científica nas últimas décadas. Uma classe de grande importância dentre estas materias são os sistemas magnéticos reentrantes. Estes sistemas se caracterizam pela ocorrência de uma fase intermediária, com ordenamento do tipo ferromagnético, entre o estado paramagnético de alta temperatura e uma fase tipo vidro-de-spin em baixas temperaturas. Este comportamento resulta do congelamento aleatório das componentes transversais do momento magnético abaixo de uma temperatura característica T_g , preservando o ordenamento ferromagnético da componente longitudinal. Assim como os vidro-de-spin canônicos, os sistemas reentrantes também são caracterizados pela presença de desordem não-trivial, ou seja, desordem acompanhada de frustração resultante da competição entre interações conflitantes.

Assim, fica evidente o interesse e a necessidade de um estudo abrangente que permita descrever detalhadamente a termodinâmica nas proximidades da transição ferromagnética destes sistemas, bem como chegar ao entendimento dos efeitos da desordem e da frustração na sua fenomenologia crítica. Tais conhecimentos são importantes para obter uma melhor compreensão dos mecanismos que levam à estabilização de uma fase reentrante, tipo vidro-de-spin em baixas temperaturas.

Este trabalho é direcionado ao estudo experimental fenomenologia crítica nas proximidades da transição de fase para-ferromagnética dos sistemas magnéticos reentrantes de ligas cristalinas formado por $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, e fitas amorfas $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$. Neste estudo, usamos as técnicas de magnetização, susceptibilidade AC, calor específico e resistividade elétrica.

Esta tese está organizada da seguinte forma:

No Capítulo 1 apresentamos uma revisão das principais propriedades física dos sistemas magnéticos reentrantes em que a fase intermediária é do tipo ferromagnética. Abordamos também os principais modelos teóricos propostos para sua descrição.

No Capítulo 2 apresentamos uma abordagem sobre a fenomenologia crítica em transições de fase magnéticas. Inicialmente são introduzidas as definições de transição de fase e dos expoentes críticos que as caracterizam. Segue uma discussão com as previsões da teoria da campo médio. Por fim são abordados as teorias para sistemas ordenados e desordenados.

No Capítulo 3 são descritos os detalhes relacionados com as técnicas experimentais e operação dos equipamentos de resistividade elétrica, magnetização, calor específico e susceptibilidade AC.

No Capítulo 4 é descrito o processo de preparação da amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, bem como os processos de obtenção dos dados de experimentais para as várias técnicas utilizadas. É feita também a obtenção do fator desmagnetizante e são descritas as análises realizadas através dos métodos Arrot-Noakes, Kouvel-Fisher e de scaling para a obtenção dos expoentes críticos.

No Capítulo 5 são descritos os processos de preparação das amostras $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Então, são seguidos os mesmos passos do capítulo 4.

No Capítulo 6 são estudadas as amostras amorfas $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$. Discute-se obtenção dos dados de susceptibilidade AC e magnetização. Os resultados obtidos são discutidos.

No Capítulo 7 apresentamos as principais conclusões obtidas com base no presente trabalho experimental, e são feitas comparações com resultados existentes na literatura de forma resumida.

Sumário

1. Comportamento Experimental e Teórico de Sistemas Magnéticos Reentrantes	1
1.1 Introdução	1
1.2 Propriedades Físicas dos Sistemas Magnéticos Reentrantes	2
1.2.1 Magnetização	2
1.2.2 Susceptibilidade AC	4
1.2.3 Diagramas de Fases Magnéticas	8
1.2.4 Despolarização de Nêutrons	10
1.2.5 Espectroscopia Mössbauer	11
1.2.6 Ressonância Ferromagnética	13
1.2.7 Resistividade Elétrica e Magnetoresistência	17
1.3 Modelos Teóricos para Sistemas Magnéticos Reentrantes	22
2. Fenômenos Críticos em Transições de Fase Magnéticas	26
2.1 Transições de Fase	26
2.2 Expoentes Críticos para Transições de Fases Magnéticas	28
2.3 Previsões da Teoria de Campo Médio para os Expoentes Críticos	32
2.3.1 Teoria de Landau	35
2.4 Expoentes Críticos para Sistemas Ordenados	37
2.5 Expoentes Críticos para Sistema Desordenados	39

3. Técnicas Experimentais	44
3.1 Resistividade Elétrica	44
3.1.1 Criostato	44
3.1.2 Montagem Eletrônica	45
3.1.3 Procedimento de Medida	47
3.2 Magnetização DC	49
3.3 Calor Específico	51
3.4 Susceptibilidade AC	54
4. Sistema Magnético Reentrante $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	55
4.1 Preparação das Amostras	55
4.2 Magnetização	56
4.3 Fator Desmagnetizante	57
4.4 Fator desmagnetizante para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	63
4.5 Resistividade Elétrica e Magnetoresistência	64
4.6 Susceptibilidade AC	64
4.7 Calor Específico	67
4.8 Determinação Experimental dos Expoentes Críticos	67
4.8.1 Análise com o Método de Arrot-Noakes	69
4.8.2 A Determinação do Expoente δ	71
4.8.3 Análise através do Método de Kouvel-Fisher	71
4.8.4 A Obtenção do Expoente γ	73
4.8.5 A Determinação do expoente β	73
4.8.6 O Método de Scaling	79
4.8.7 A Determinação do Expoente Crítico α	79
4.9 Discussão do Comportamento dos Expoentes Críticos	82
5. Sistemas Magnéticos Reentrantes $Ni_{1-x}Mn_x$	86
5.1 Preparação das Amostras	86

5.2	Magnetização	87
5.3	Fator Desmagnetizante	89
5.4	Resistividade Elétrica e Magnetoresistência	91
5.5	Susceptibilidade AC	93
5.6	Calor Específico	96
5.7	Determinação Experimental dos Expoentes Críticos	96
5.7.1	Análise com Método de Arrot-Noakes	97
5.7.2	A Determinação do Expoente δ	98
5.7.3	Análise através do Método de Kouvel-Fisher	98
5.7.4	O Método de Scaling	106
5.7.5	A Determinação do Expoente Crítico α	107
5.8	Resumo sobre o Comportamento Crítico nas Ligas $Ni - Mn$	109
6.	Sistemas Magnéticos Reentrantes $Fe_{1-x}Zr_x$	111
6.1	Preparação das Amostras	111
6.2	Magnetização	112
6.3	Susceptibilidade AC	113
6.4	Determinação Experimental dos Expoentes Críticos	116
6.4.1	Análise através do Método de Kouvel-Fisher	116
6.4.2	A Obtenção do Expoente γ	116
6.4.3	A Determinação do Expoente β	119
6.4.4	A Determinação do Expoente δ	119
6.5	Comportamento dos Expoentes Críticos nas Ligas $Fe - Zr$	121
7.	Conclusões	123
	Referências Bibliográficas	128
	Apêndice	139

A. 139

Lista de Figuras

1.1	Magnetização na liga $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ como função da temperatura.	3
1.2	Ciclos de histerese para várias ligas $Ni_{1-x}Mn_x$ [5]	4
1.3	Componentes real e imaginária da susceptibilidade AC para diversas frequências no sistema reentrante $Pd_{0.92}Fe_{0.015}Mn_{0.65}$	6
1.4	Componente real da susceptibilidade χ' versus a temperatura para amostra de $Ni_{77.5}Mn_{22.5}$, para várias amplitudes do campo magnético DC [17].	7
1.5	Componentes real χ' e imaginária χ'' da susceptibilidade AC para uma liga NiMn obtidas segundo os procedimentos ZFC e FC com um campo DC externo aplicado $h_a = 35$ Oe [17].	7
1.6	Diagrama de fase magnética para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$	8
1.7	Diagrama de fases magnéticas para o sistema $Ni_{1-x}Mn_x$	9
1.8	Diagramas de fase magnética para (a) o isolante $Eu_{1-x}Sr_{1-x}S$ e (b) o amorfo $(Fe_xMn_{1-x})P_{16}B_6Al_3$	10
1.9	Despolarização de nêutrons $P(\lambda)$ em função do comprimento de onda λ para as amostras (a) $Ni_{1-x}Mn_x$ [35] e (b) $Fe_{1-x}Mn_x$ [24].	11
1.10	Campo hiperfino médio, H_{hf} , para Fe determinado por efeito Mössbauer e campo de ressonância de spin eletrônico H_r , na liga AuFe [27].	12
1.11	Arranjo experimental da ressonância ferromagnética [30].	14
1.12	Campo de Anisotropia obtido por medidas de ressonância ferromagnética como função da temperatura para uma amostra de $Ni_{79}Mn_{21}$ [31].	15
1.13	Campo de ressonância ferromagnética como função da temperatura para uma amostra de $Ni_{74}Mn_{26}$ [32].	16

1.14	Campo de ressonância ferromagnética em função da temperatura temperatura para uma amostra de $Au_{83}Fe_{17}$ [34]. A mostra esférica é representada por \bullet , disco magnetizado paralelamente ao plano por Δ , e disco com magnetização perpendicular ao plano por ∇	17
1.15	Resistividade do sistema $Ni_{1-x}Mn_x$ em função da concentração de Mn para temperaturas de 4.2 e 295 K [36].	18
1.16	Resistividade elétrica em função da temperatura para amostras de $Ni_{1-x}Mn_x$, sendo $x=0.21, 0.25, \text{ e } 0.28$ [36].	19
1.17	Medidas de magnetoresistência longitudinal($\Delta\rho_{\parallel}/\rho_0$), transversal($\Delta\rho_{\perp}/\rho_0$) e isotrópico(representado pela curva pontilhada) em função do campo magnético para amostra $Ni_{79}Mn_{21}$ [36].	19
1.18	Resistividade Residual $\Delta\rho_o$ para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$ em função da temperatura, para $x=1, 2, 5 \text{ e } 8\text{at}\%$ [41]	20
1.19	Resistividade residual $\Delta\rho_o$ em função da temperatura para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$ para $x=12, 17 \text{ e } 22 \text{ at}\%$ [41].	21
1.20	Derivada do coeficiente da resistividade em relação à temperatura, para sistema $Au_{1-x}Fe_x$ onde $x=12, 17 \text{ e } 22 \text{ at}\%$ [41].	22
1.21	Diagramas de fase magnética para os modelos de Sherrington-Kirkpartick (a) e Gabay-Toulouse (b)	24
1.22	Comportamento das componentes do spin no modelo de Gabay-Toulouse.	25
2.1	Diagrama de fase campo magnético versus temperatura num sistema ferromagnético.	27
2.2	Diagrama de fase magnetização versus temperatura num sistema ferromagnético.	28
2.3	Calor específico versus temperatura de um ferromagneto nas vizinhanças da temperatura crítica.	29
2.4	(a)Comportamento de partícula única para um sistema magnético, e (b)comportamento coletivo.	35

2.5	(a) Potencial Termodinâmico de Landau em função do parâmetro de ordem para $T > T_c$, (b) e para $T < T_c$ [50].	38
2.6	Rede quadrada com ligações de sinais aleatórios para os vizinhos mais próximos. Ligações ferromagnéticas estão representadas por (+), ligações antiferromagnéticas por (-). (a) quadrado não frustrado. Nesta configuração podemos orientar os momentos de forma satisfazer todas as ligações. (b) quadrado frustrado. Neste caso, se os momentos forem orientados apenas para cima ou para baixo na página, é impossível satisfazer simultaneamente todas as ligações. (c) e (d) Configurações de equilíbrio de um quadrado frustrado onde os momentos podem se orientar em qualquer direção, característico das interções de troca.	43
3.1	Sistema criogênico com bobina de cobre para medidas de magnetotransporte em baixos campos.	46
3.2	Esquema de montagem eletrônica utilizada nas medidas de magnetotransporte.	47
3.3	Representação esquemática da configuração dos contatos elétricos numa amostra típica para medida de resistividade.	48
3.4	Vara de medidas e estrutura do criotato com os componentes magnéticos.	50
3.5	Representação esquemática do calorímetro.	53
4.1	Magnetização como função da temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ medida através dos procedimentos ZFC e FC.	57
4.2	Magnetização como função do campo magnético aplicado para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ em diferentes temperaturas.	58
4.3	(a)As linhas de campo magnético H e campo desmagnetizante H_d ; (b) linhas de indução $B = -H_d + 4\pi M$	58
4.4	Algumas formas geométricas de amostra utilizadas para o cálculo do fator desmagnetizante, sendo elas elipsoide geral, prolato, oblato, e disco.[71]	60

4.5	Fatores desmagnetizantes para elipsóides prolato, oblato e para cilindros com permeabilidade(μ) assumindo valores entre 5 e ∞ . O campo magnético é aplicado paralelamente ao eixo maior da amostra [69].	62
4.6	Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado a temperatura constante para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. A reta pontilhada representada de um ajuste linear do tipo $M=aH+b$	63
4.7	Resistividade elétrica como função da temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.	65
4.8	Derivada da resistividade em relação à temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	65
4.9	Componente real da susceptibilidade AC da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ como função da temperatura em diversas frequências.	66
4.10	Componente imaginária da susceptibilidade AC da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ como função da temperatura em diversas frequências.	67
4.11	Calor específico como função da temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.	68
4.12	Derivada do calor específico em relação à temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	68
4.13	Ajuste de Arrot-Noakes para liga de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados entre 100 e 500 Oe, correspondente ao primeiro conjunto de medidas realizado.	70
4.14	Ajuste de Arrot-Noakes para amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados entre 100 a 500 Oe. As experiência correspondente ao segundo conjunto de medidas realizado, após o recozimento da amostra em temperatura ambiente por um ano. . . .	71
4.15	Gráfico logaritmico de magnetização versus campo magnético na isoterma crítica da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	72
4.16	(a) Susceptibilidade em função da temperatura obtida através da eq.2.19 para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.(b) Derivada da susceptibilidade em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel Fisher, eq.4.10, para a susceptibilidade paramagnética do $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	74

4.17	Gráfico de Kouvel-Fisher para medidas de susceptibilidade AC para amostra de AuFe.	76
4.18	Ajuste da magnetização versus campo magnético entre 100 e 300 Oe para temperatura constante de 162 K.	77
4.19	Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ medida no campo interno $H_i=300$ Oe. O campo interno é obtido conforme explicado no texto.	78
4.20	Scaling da magnetização para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	80
4.21	Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas vizinhanças da temperatura de Curie. A linha pontilhada corresponde a um ajuste com a equação 5.2.	81
5.1	Magnetização em função da temperatura para amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ medida segundo os procedimentos ZFC e FC.	87
5.2	Magnetização em função da temperatura para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, medida segundo os procedimentos ZFC e FC.	88
5.3	Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado . . .	90
5.4	Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado a temperatura constante para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$	91
5.5	Resistividade elétrica em função da temperatura para diferentes valores do campo magnético aplicado para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. O campo é aplicado paralelamente à corrente.	92
5.6	Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	93
5.7	Componente real susceptibilidade AC para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ em função da temperatura em diferentes frequências.	94
5.8	Medida da componente imaginária como função da temperatura para amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, nas frequências indicadas	95
5.9	Medidas da componente real da susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ nas frequências indicadas.	95

5.10	Medidas da componente imaginária da susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. As frequências e a amplitude do campo AC estão indicadas.	96
5.11	Calor específico como função da temperatura para amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.	97
5.12	Ajuste de Arrot-Noakes para amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados de 100 a 500 Oe. .	98
5.13	Gráfico logaritmico de magnetização versus campo magnético da isoterma crítica para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	99
5.14	(a) Susceptibilidade DC em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.(b) Derivada da susceptibilidade DC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel Fisher, eq.4.10, para a susceptibilidade DC paramagnética do $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	100
5.15	Gráfico de Kouvel-Fisher para medidas de susceptibilidade AC para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	103
5.16	Gráfico de Kouvel-Fisher para medidas de susceptibilidade AC para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$	105
5.17	Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ medida no campo interno $H_i=400$ Oe. O campo interno é obtido conforme explicado no texto.	106
5.18	Scaling da magnetização para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados de 100 a 500 Oe. .	107
5.19	Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ nas vizinhanças da temperatura de Curie na presença de campo magnético aplicado de 75 Oe. A linha corresponde a um ajuste com a equação 5.20. .	108
6.1	Magnetização em função da temperatura para amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$ medida segundo o procedimento FC. O campo magnético aplicado de $H=50$ Oe. .	112
6.2	Componentes real e imaginária para a susceptibilidade AC para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	114

6.3	Componentes real e imaginária para a susceptibilidade AC para a amostra $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$	115
6.4	Gráfico de Kouvel-Fisher para medidas de susceptibilidade AC para amostra de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	117
6.5	Gráfico de Kouvel-Fisher para medidas de susceptibilidade AC para amostra de $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$	118
6.6	Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, medida no campo magnético $H=100$ Oe.	120
6.7	Gráfico do logaritmo da magnetização versus campo magnético para a isoterma crítica da amostra de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	120

Lista de Tabelas

1.1	Exemplos típicos de sistemas ferromagnéticos reentrantes.	5
2.1	Tabela de expoentes críticos para modelos tradicionais [45].	39
2.2	Valores experimentais e teóricos dos expoentes críticos para sistemas ferromagnéticos amorfos [59] e cristalinos . Os expoentes $\delta_{calc.}$ e $\alpha_{calc.}$ são calculados através das relações de scaling $\delta = 1 + (\gamma/\beta)$ e $\alpha = 2(1 - \beta) - \gamma$	41
4.1	Fator desmagnetizante, $\frac{N}{4\pi}$ para disco e elipsóides magnetizados ao longo do eixo maior [69].	61
4.2	O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. Os resultados se referem ao primeiro conjunto de medidas.	75
4.3	Valores do expoente crítico γ obtidos através da técnica de Kouvel-Fisher para as medidas de susceptibilidade AC em diferentes frequências e $h_a = 5$ Oe para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$	75
4.4	Valores do expoente crítico α obtidos através da análise da derivada $d\rho/dt$ para as medidas de resistividade elétrica na amostra de AuFe.* a média é somente para os campos de 0 e 150 Oe.	81
4.5	Expoentes críticos pra o sistema reentrante $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ determinado neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais e previsões teóricas	83
5.1	O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	101
5.2	O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	102

5.3	O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$	102
5.4	Valores do expoente crítico α obtidos através da análise da derivada $d\rho/dt$ para as medidas de resistividade elétrica nas amostras $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	108
5.5	Expoentes críticos para os sistemas reentrantes $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ determinado neste trabalho.	109
6.1	O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema .	118
6.2	O expoente crítico β obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema. .	119
6.3	Expoentes críticos para os sistemas reentrantes $Fe_{1-x}Zr_x$ determinadas neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais da literatura. As médias reportadas na última linha referem-se apenas às medidas do presente trabalho.	122
7.1	Expoentes críticos para os sistemas reentrantes determinado neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais e previsões teóricas.(a)estima através das relações de scaling,(b)obtida através da derivada $d\rho/dT$ e utilizado o resultado nas relações Rushbooke, e Griffiths.(c) derivada do calor específico	124

Capítulo 1

Comportamento Experimental e Teórico de Sistemas Magnéticos Reentrantes

1.1 Introdução

Há vários anos, o estudo de sistemas magnéticos desordenados tem despertado grande interesse entre os especialistas em magnetismo. Em especial, um esforço significativo tem sido feito na investigação sobre a fenomenologia crítica destes sistemas.

Uma classe particularmente interessante dentre os magnetos desordenados é aquela representada pelos chamados sistemas reentrantes [1], nos quais os átomos magneticamente interagentes se distribuem aleatoriamente numa matriz sólida. Os sistemas reentrantes apresentam um certo grau de frustração, que resulta de interações de troca conflitantes. A frustração está associada à desordem química e estrutural. Esses sistemas se caracterizam por apresentar uma transição de fase tipo para-ferromagnética (ou para-antiferromagnética), seguida, em temperaturas mais baixas, por uma transição análoga àquela dos vidros-de-spin, a qual se manifesta na presença de campos magnéticos fracos ou moderados. Este comportamento, aparentemente paradoxal, tem motivado intensos esforços de investigação. De fato, as propriedades magnéticas dos sistemas reentrantes no estado tipo vidro-de-spin de baixas temperaturas (supostamente de menor entropia) revelam de forma mais nítida os efeitos de desordem que na fase intermediária tipo ferro ou antiferromagnética.

Em 1979, Coles e col. [2] apresentaram um estudo sistemático em ligas de Au-Fe, dando início às investigações experimentais em sistemas reentrantes. Desde então, diversos outros sistemas desse tipo foram descobertos, abrangendo uma ampla variedade de materiais que inclui ligas metálicas poli- e monocristalinas, amorfos metálicos e diversos isolantes. Em geral, os reentrantes apresentam uma fase intermediária ferromagnética, existindo, todavia, poucos casos onde essa fase é antiferromagnética, como por exemplo a solução sólida $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$ [3].

Do ponto de vista teórico, o estudo dos reentrantes apresenta as dificuldades típicas de sistemas que envolvem a presença de desordem e competição entre interações. Binder e Young [1] e Fisher e Hertz [4] revisam as principais linhas teóricas que propõem uma descrição mais detalhada sobre o assunto, como veremos adiante.

Uma ampla variedade de técnicas experimentais macro e microscópicas tem sido utilizadas no esforço de compreender o comportamento dos sistemas magnéticos reentrantes. Porém, um aspecto ainda insuficientemente estudado refere-se ao comportamento crítico destes sistemas nas proximidades da transição para-ferromagnética. Adiante, apresentaremos um resumo dos principais resultados existentes na literatura, obtidos através de técnicas de magnetização, susceptibilidade AC e DC, espectroscopia Mössbauer, ressonância magnética, despolarização de nêutrons, resistividade elétrica e magneto-resistência. Enfatizaremos os resultados obtidos nas vizinhanças da temperatura de Curie, T_c .

1.2 Propriedades Físicas dos Sistemas Magnéticos Reentrantes

1.2.1 Magnetização

Kouvel e col. [5] e Senoussi e col. [6] apresentam extensos estudos experimentais da magnetização de sistemas reentrantes, onde analisam em detalhe o comportamento destes sistemas nas proximidades das fronteiras para-ferromagnética e ferromagnética-vidro de spin do diagrama de fase.

As medidas de magnetização em função da temperatura são obtidas segundo dois

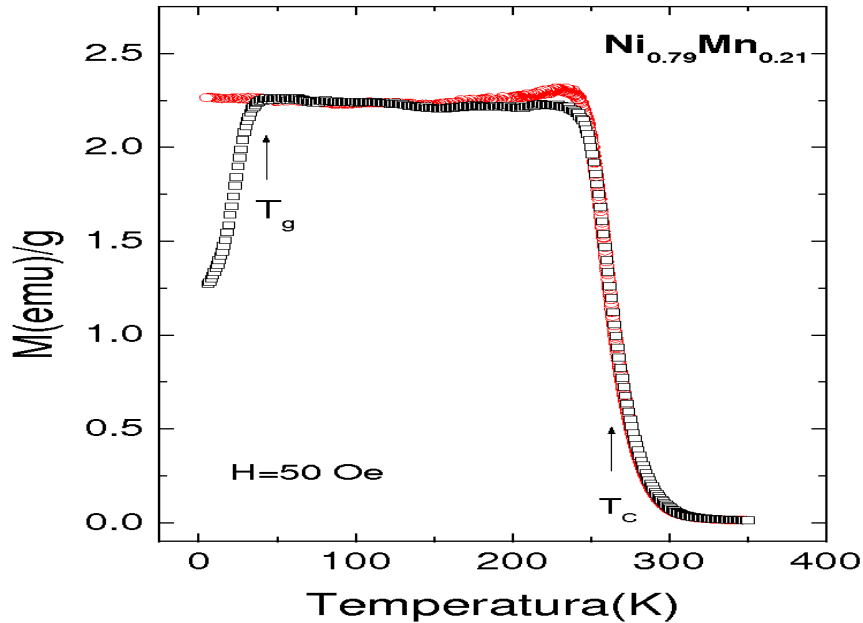


Fig. 1.1: Magnetização na liga $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ como função da temperatura medida segundo os procedimentos FC e ZFC [10].

procedimentos padrão, conhecidos como “zero field cooled” (ZFC) e “field cooled” (FC). No processo ZFC a amostra é resfriada na ausência de campo magnético, o qual é aplicado somente quando a temperatura atinge o limite inferior da medida, abaixo da temperatura de congelamento vidro de spin, T_g . A amostra é então lentamente aquecida e a magnetização ZFC cresce até que a temperatura T_g é alcançada (ver Figura 1.1). No procedimento FC, a magnetização é medida na presença de campo aplicado enquanto a temperatura é diminuída. Em temperaturas inferiores de T_g as respostas ZFC e FC são claramente distintas, tal como mostra a Figura 1.1. Em temperaturas superiores a T_g a resposta magnética do sistema se manifesta pelo surgimento de uma magnetização espontânea, tal como em um ferromagneto clássico. Acima de T_g , a magnetização tem um valor aproximadamente constante, correspondente ao limite imposto pelo campo desmagnetizante. Ao alcançar as vizinhanças da temperatura de Curie, T_c , a magnetização diminui abruptamente, quando então o sistema passa por uma transição de fase de um estado ferromagnético ordenado para a fase paramagnética (ver Figura 1.1).

Nota-se que a magnetização ZFC não é reversível frente à ciclagem térmica. A resposta FC é aproximadamente reversível. Acredita-se que o sistema “re-entra” para uma

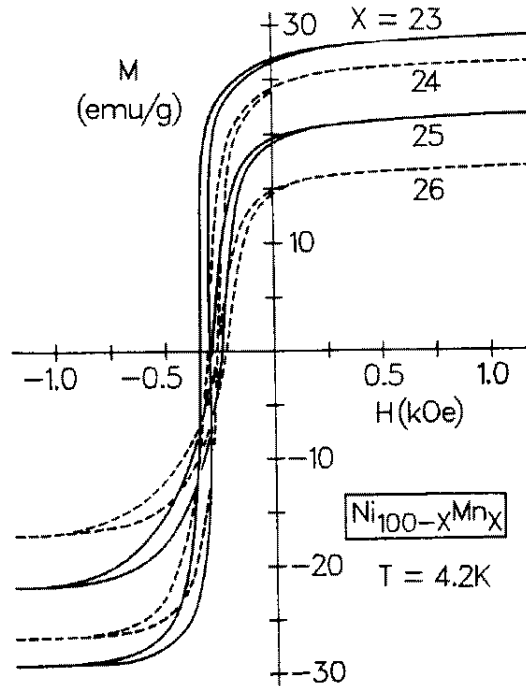


Fig. 1.2: Ciclos de histerese para várias ligas $Ni_{1-x}Mn_x$ [5]

fase do tipo vidro-de-spin em $T = T_g$, e em razão da frustração, ocorre o congelamento dos spins em direções aleatórias, de modo que a magnetização resultante em campo aplicado nulo será nula [1].

A Figura 1.2 mostra ciclos de histereses deslocados na magnetização FC em temperaturas inferiores a T_g , para ligas de Ni-Mn com várias concentrações de Mn [5]. Este comportamento é típico de vidro de spin e deve-se à anisotropia unidirecional obtida após o congelamento FC [9].

Na tabela 1.1 são listados alguns ferromagnetos reentrantes, com suas temperaturas de Curie (T_c) e congelamento (T_g) características.

1.2.2 Susceptibilidade AC

Em um trabalho publicado em 1980, Maartense e Williams [7] estudaram a transição ferro-paramagnética em amostras de Au-Fe através de medidas de susceptibilidade AC, observando a presença de um máximo na componente real da susceptibilidade em temperaturas correspondentes à temperatura de Curie, sendo que a intensidade deste pico é

Sistema	Tipo	$T_C(K)$	T_g	Referência
$Ni_{0.79}Mn_{0.21}$	liga	265	45	[10]
$Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	liga	225	50	[10]
$Ni_{0.77}Mn_{0.23}$	liga	160	65	[11]
$Au_{0.81}Fe_{0.19}$	liga	180	50	[10]
$Fe_{0.91}Zr_{0.11}$	amorfo	210	70	[10]
$Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	amorfo	180	50	[10]
$Fe_{0.7}Al_{0.3}$	monocristal	520	80	[11]
$Cu_{0.74}Fe_{0.26}$	liga	240	40	[12]
$Pd_{0.92}Fe_{0.015}Mn_{0.05}$	liga	28	4	[13]
$(Fe_{0.2}Ni_{0.8})_{75}P_{16}B_6Al_3$	amorfo	92	15	[16]
$Eu_{0.6}Sr_{0.4}S$	isolante	7	1	[15]

Tab. 1.1: Exemplos típicos de sistemas ferromagnéticos reentrantes.

inversamente proporcional ao campo magnético aplicado.

Trabalhos posteriores em sistemas $Pd_{0.92}Fe_{0.015}Mn_{0.65}$ [13] analisaram as componentes real e imaginária da susceptibilidade AC como função da frequência, revelando a presença de anomalias marcantes nas temperaturas correspondentes a T_c e T_g (ver Figura 1.3).

Um estudo sistemático de ligas de $Ni_{1-x}Mn_x$ com concentrações $x = 0.225$ e $x = 0.23$ foi feito por Kunkel e col. [17], em que as medidas de susceptibilidade foram feitas em frequência fixa, variando-se apenas a amplitude do campo magnético DC e a temperatura. Um exemplo dos resultados obtidos é mostrado na Figura 1.4 onde a componente real da susceptibilidade apresenta uma estrutura de três picos em função da temperatura. O primeiro pico ocorre por volta de 175 K, e está associado à temperatura de Curie T_c , onde ocorre a transição para-ferromagnética. Os outros dois picos se localizam na região próxima à temperatura de reentrância, a qual é obtida por medidas de magnetização. Da mesma forma que para as ligas de Au-Fe, a posição e intensidade desses picos são dependentes da magnitude do campo DC aplicado. Os autores ainda discutem a possível dependência da posição dos picos com o campo magnético em termos da existência de linhas de Gabay-Toulouse [18] e de Almeida-Touless [19]. Este mesmo trabalho ainda analisa medidas de susceptibilidade como função da temperatura obtidas segundo os procedimentos ZFC e FC discutidos acima.

A Figura 1.5 apresenta as componentes real e imaginária da susceptibilidade para

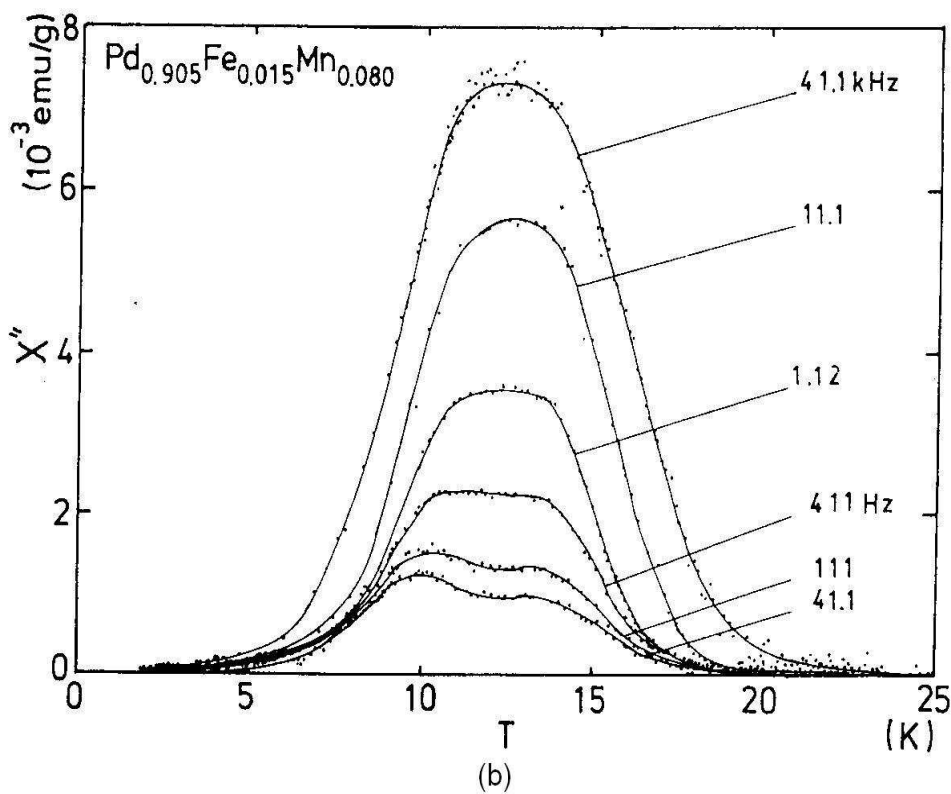
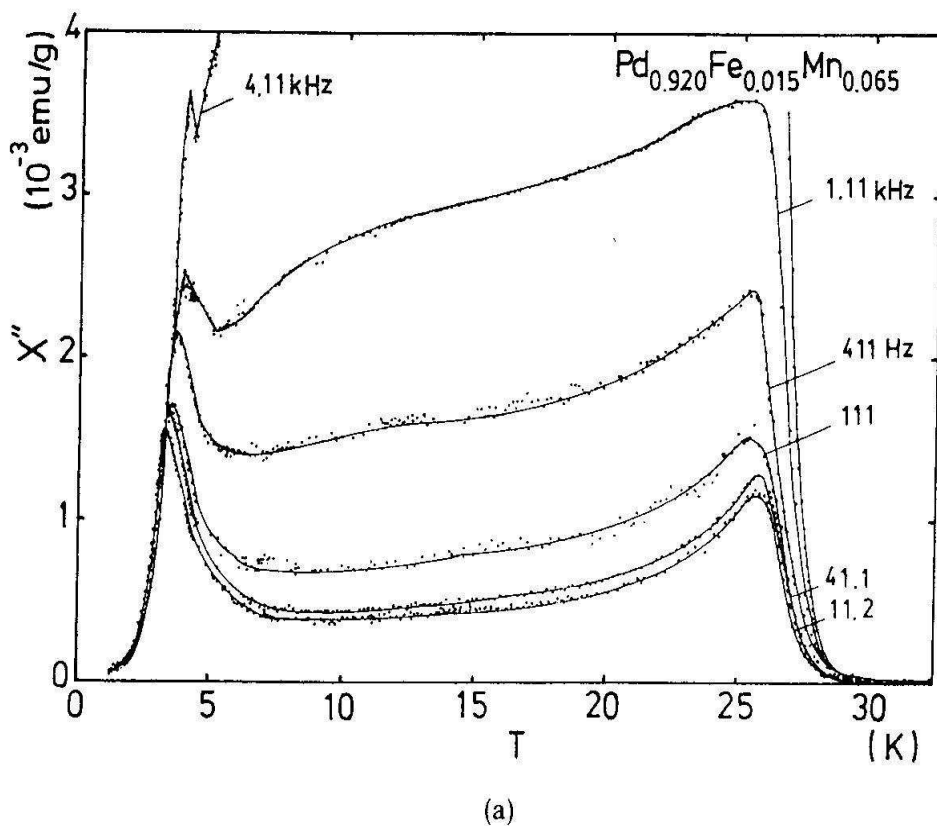


Fig. 1.3: Componentes real e imaginária da susceptibilidade AC para diversas frequências no sistema reentrante $Pd_{0.92}Fe_{0.015}Mn_{0.065}$ [13].

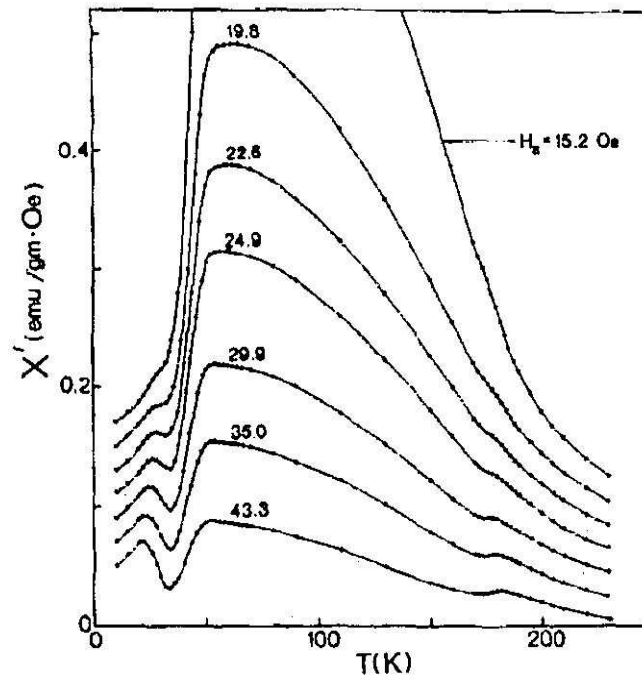


Fig. 1.4: Componente real da susceptibilidade χ' versus a temperatura para amostra de $Ni_{77.5}Mn_{22.5}$, para várias amplitudes do campo magnético DC [17].

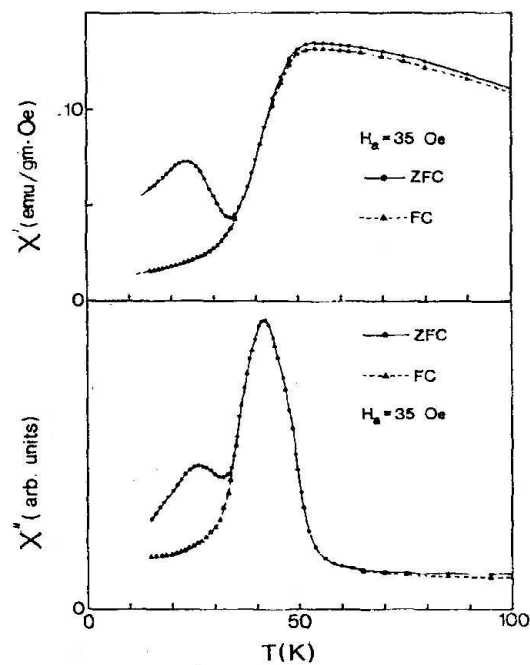


Fig. 1.5: Componentes real χ' e imaginária χ'' da susceptibilidade AC para uma liga $NiMn$ obtidas segundo os procedimentos ZFC e FC com um campo DC externo aplicado $h_a = 35$ Oe [17].

liga de NiMn quando um campo DC, $h_a=35$ Oe, é aplicado. Observa-se que as medidas obtidas segundo os procedimentos ZFC e FC se separam em temperaturas próximas de 30 K. Este comportamento é também observado nas medidas de magnetização.

1.2.3 Diagramas de Fases Magnéticas

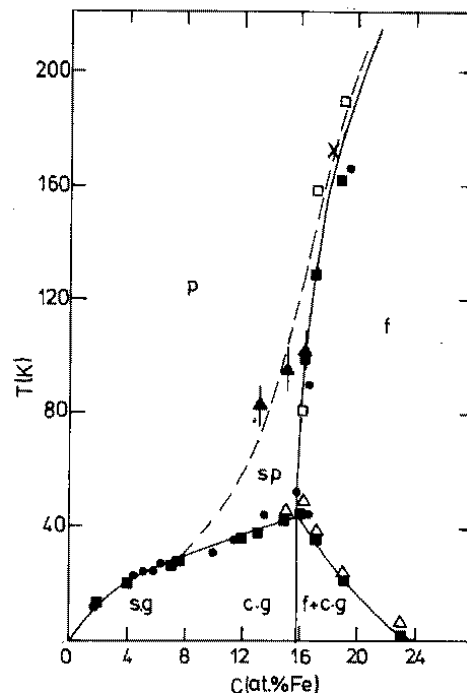


Fig. 1.6: Diagrama de fase magnética para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$ [2].

Nos vidros-de-spin simples, as interações ferromagnéticas e antiferromagnéticas ocorrem com igual intensidade e probabilidade, de forma que o sistema evolui de uma fase paramagnética diretamente para um estado em que os spins congelam apontando em direções aleatórias. Nos sistemas reentrantes, por outro lado, ocorre um desequilíbrio nas interações, de modo que o sistema alcança o estado de vidro-de-spin passando por uma fase intermediária com características ferro- ou antiferromagnéticas. A reentrância de um ou outro tipo resulta quando a concentração do elemento magnético é adequadamente alterada a partir da região onde se observa o comportamento de vidro-de-spin simples. Um exemplo típico é dado pelo diagrama de fase da Figura 1.6 para o sistema Au-Fe. Neste diagrama (obtido por Coles e col. [2] através de medidas de susceptibilidade AC,

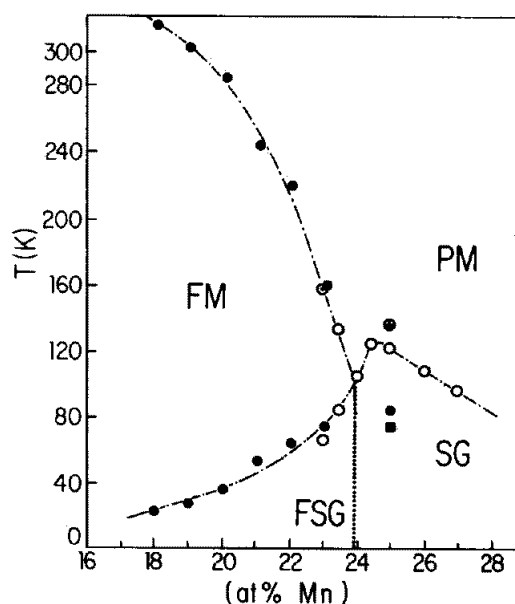


Fig. 1.7: Diagrama de fases magnéticas para o sistema $Ni_{1-x}Mn_x$ [20].

espectroscopia Mössbauer e ressonância de spin eletrônico) três fases magnéticas diferentes podem ser claramente identificadas. Para baixas concentrações de Fe (abaixo de 13%), o sistema evolui da fase paramagnética (p) para um estado fundamental vidro-de-spin (sg e cg), enquanto que para concentrações de Fe acima de 26%, observa-se uma transição do estado paramagnético diretamente para a fase ferromagnética (f).

No intervalo de concentrações de Fe entre 13% e 24% o sistema apresenta uma transição para-ferromagnética, porém em baixas temperaturas o sistema reentra para um estado desordenado ($f + cg$) tipo vidro-de-spin. Os autores diferenciam as fases reentrante e vidro-de-spin, porém o comportamento de várias propriedades medidas nos dois estados é similar. Outros exemplos de diagramas de fases magnéticas para sistemas reentrantes são mostrados nas Figuras 1.7 e 1.8.

Sommer e col. [20] [21] obtiveram o diagrama de fases para ligas de Ni-Mn mostrado na Figura 1.7. O resultado é qualitativamente similar ao observado nas amostras de Au-Fe, exceto pela dependência oposta na variação da concentração do soluto. Este comportamento é esperado considerando-se que, neste caso, o elemento majoritário no estado puro é um ferromagneto. Nota-se que para concentrações de Mn entre 18% e 24%, a fase ferromagnética intermediária evolui para um estado fundamental do tipo de vidro-de-spin.

A Figura 1.8 [22] mostra o diagrama de fases para dois sistemas: o isolante $Eu_xSr_{1-x}S$

e o amorfo metálico ($\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{P}_{16}\text{B}_6\text{Al}_3$). A similaridade entre as Figuras 1.6, 1.7 e 1.8 constitui a evidência experimental mais contundente da real existência de uma classe de sistemas magnéticos com comportamento reentrante.

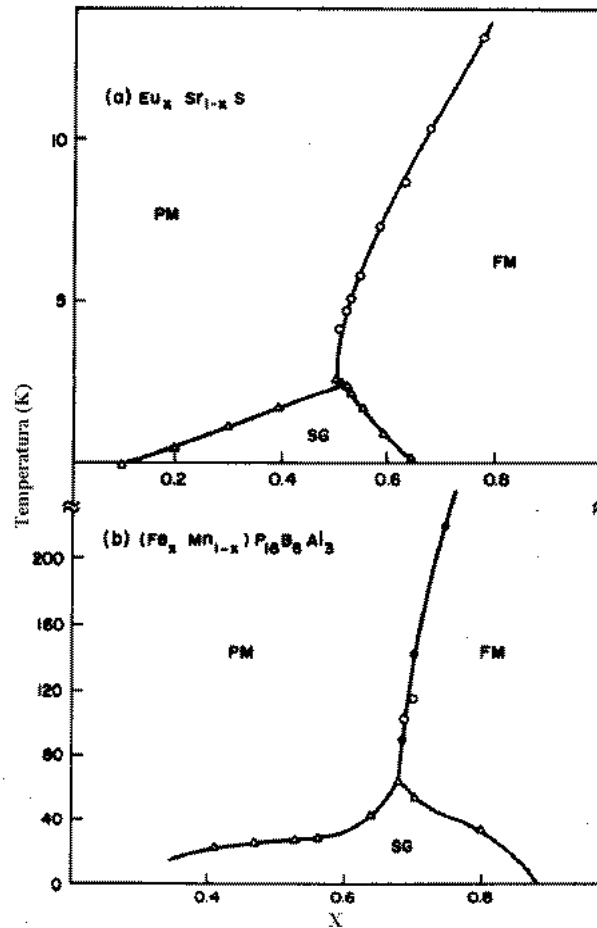


Fig. 1.8: Diagramas de fase magnética para (a) o isolante $\text{Eu}_{1-x}\text{Sr}_{1-x}\text{S}$ e (b) o amorfo $(\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x})\text{P}_{16}\text{B}_6\text{Al}_3$ [22].

1.2.4 Despolarização de Nêutrons

A técnica de despolarização de nêutrons fornece informações relevantes sobre a inhomogeneidade da indução magnética dentro de domínios ferromagnéticos, bem como sobre a dimensão média dos mesmos.

Na Figura 1.9 estão mostradas as medidas de despolarização de nêutrons $P(\lambda)$ em função do comprimento de onda λ para as amostras $\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x$ [23] [25] e $\text{Fe}_{1-x}\text{Mn}_x$ [24].

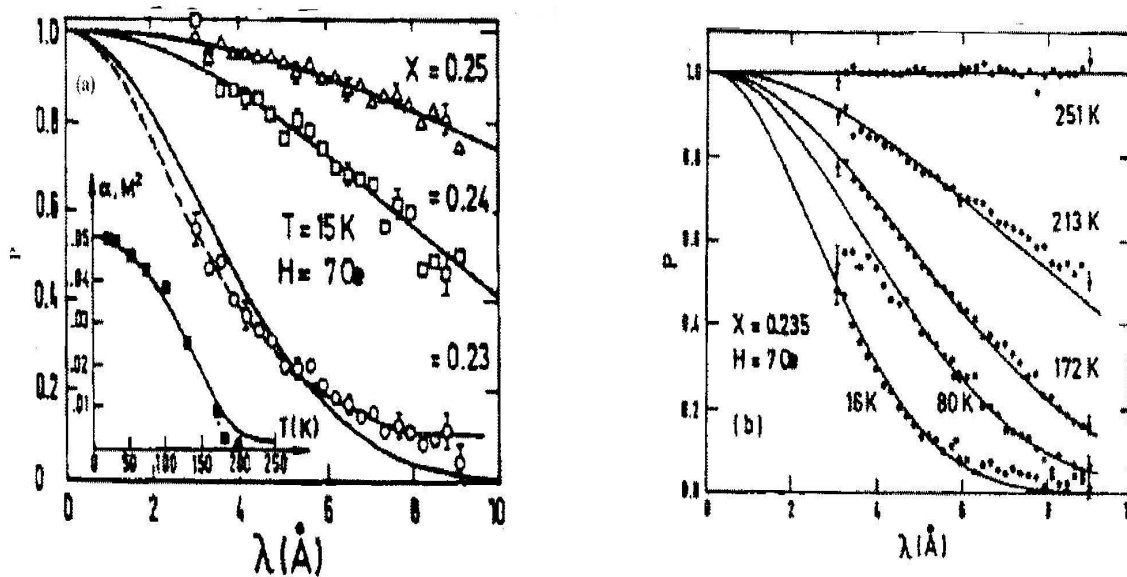


Fig. 1.9: *Despolarização de nêutrons $P(\lambda)$ em função do comprimento de onda λ para as amostras (a) $Ni_{1-x}Mn_x$ [35] e (b) $Fe_{1-x}Mn_x$ [24].*

É interessante notar o comportamento similar da despolarização nos dois sistemas. Endoh e col. [23] [25] comprovaram a existência de uma estrutura de domínios na amostra de Ni-Mn. O tamanho dos domínios varia de 14 a $50\mu m$ em função da concentração de manganês ($0.23 < x < 0.25$). Porém, para concentrações maiores do que $x=0.25$ nenhuma estrutura de domínios foi detectada.

Outro fato a ressaltar nestes resultados é que o uso da técnica ZFC (aplicação de um campo magnético após o resfriamento) proporciona um aumento no tamanho médio dos domínios na temperatura de 75 K. Por outro lado, o mesmo procedimento ZFC em $T=15$ K, não promove o mesmo efeito nos domínios. Entretanto, quando realizada uma medida FC com mesmo campo magnético, em $T=15$ K o tamanho médio dos domínios apresenta um acréscimo. Assim, foi observado que a técnica de despolarização de nêutrons no $Ni_{1-x}Mn_x$ apresenta uma certa dependência com os procedimentos de medidas ZFC e FC. Porém, para as amostras de AuFe e FeAl [23] não se nota nenhuma modificação entre medidas obtidas segundo os procedimentos ZFC e FC.

1.2.5 Espectroscopia Mössbauer

A espectroscopia Mössbauer é uma técnica ressonante baseada no fato de que um núcleo incorporado a uma matriz sólida poderá emitir ou absorver fótons sem perda de energia

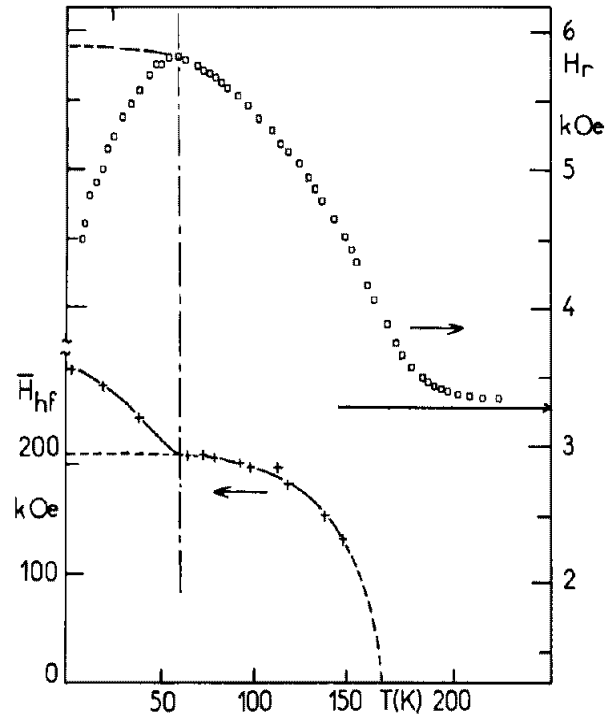


Fig. 1.10: Campo hiperfino médio, H_{hf} , para Fe determinado por efeito Mössbauer e campo de ressonância de spin eletrônico H_r , na liga AuFe [27].

devido a efeitos de recuo na rede.

Através da comparação com espectros de materiais conhecidos, essa técnica permite determinar o campo hiperfino, a natureza e a proporção relativa das fases presentes e identificar os portadores da magnetização.

Varret e col. [26] realizaram medidas de campo hiperfino H_{hf} por efeito Mössbauer na ausência de campo magnético em ligas de AuFe. Estes resultados, apresentados na Figura 1.10, mostram que abaixo de T_c ocorre uma certa distribuição de campos hiperfinos, porém seu valor médio segue o comportamento esperado para um ferromagnético clássico. No entanto, para temperaturas abaixo de T_g (que está delimitada por uma linha vertical na Figura 1.10 nas proximidades de 55 K) ocorre um aumento anômalo do campo hiperfino médio. A linha pontilhada na Figura 1.10 descreve o comportamento esperado para um ferromagneto clássico. Essa anomalia é interpretada como o resultado de um aumento efetivo na magnitude do spin causado por um “canting”, isto é, um congelamento aleatório das componentes transversais do momento magnético microscópico em temperaturas inferiores a T_g .

Na Figura 1.10 estão representadas medidas campo hiperfino médio para o Fe e

campo de ressonância H_r para amostra de AuFe realizadas por Campbell e Senoussi [27]. Observa-se que, para temperaturas acima de T_g , o comportamento de H_r concorda com as medidas de campo hiperfino através do efeito Mössbauer. No entanto para temperaturas abaixo de T_g (nas proximidades de 55 K) ocorre um decréscimo no campo de ressonância ferromagnética H_r . Acredita-se que abaixo de T_g o campo de anisotropia torne-se relevante, uma vez que ocorre um congelamento nas componentes transversais do momento magnético. Sendo H_r definido por

$$H_r = \frac{\omega}{\gamma} + 4\pi M - H_a, \quad (1.1)$$

onde M é a magnetização da amostra, $\gamma = g\mu/\hbar$ é o fator giromagnético, ω é a frequência do espectômetro, e H_a é o campo de anisotropia, torna-se claro através que o aumento do campo de anisotropia tende a diminuir o campo de ressonância ferromagnética. Este fato não ocorre acima de T_g pois nesta região os spin estão orientados paralelamente com o campo externo e portanto, o campo de anisotropia é zero. Comportamento similar ocorre em outros sistemas reentrantes, tais como Cu-Fe e Fe-Zr [28].

1.2.6 Ressonância Ferromagnética

A idéia básica de um experimento de ressonância ferromagnética consiste em aplicar um campo de micro-ondas sobre uma amostra já sob o efeito de um campo magnético estático H_o e estudar as linhas de absorção ressonante. O campo magnético gerado pela radiação de micro-ondas é orientado perpendicularmente à direção do campo estático, de modo que este tende a perturbar os spins e desviá-los da posição de equilíbrio. Quando a frequência da radiação se aproxima da frequência do modo uniforme, o campo de ressonância ferromagnética H_r produz um movimento de precessão dos spins e a amostra absorve energia da radiação (ver Figura 1.11).

Neste experimento a amostra poderá ser colocada no porta-amostra com a dimensão mais longa paralela ao campo magnético estático (H_o) (denominada configuração paralela), ou com a dimensão mais curta (denominada configuração perpendicular). Podemos descrever a frequência de radiação através das equações de Kittel [29]:

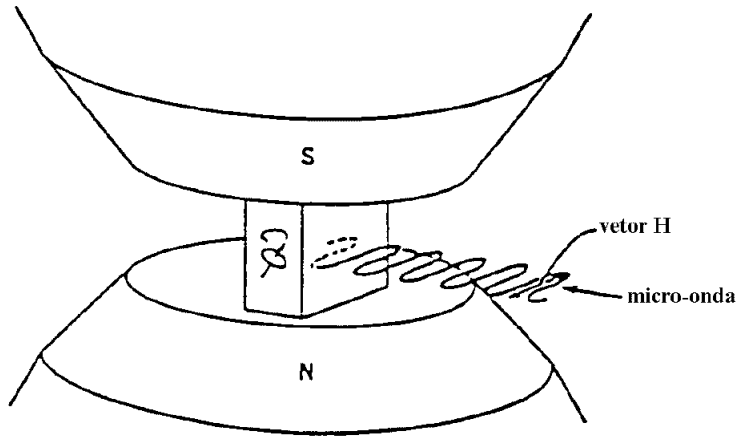


Fig. 1.11: Arranjo experimental da ressonância ferromagnética [30].

$$\left(\frac{\omega}{\gamma}\right)^2 = (H_r + H_a)(H_r + H_a + \eta M) \quad (1.2)$$

para a geometria paralela, e

$$\frac{\omega}{\gamma} = H_r + H_a - \eta M \quad (1.3)$$

para a geometria perpendicular. Nas equações 1.2 e 1.3, M é a magnetização correspondente ao campo interno de ressonância (H_r), $\gamma = g\mu/\hbar$ é o chamado fator giromagnético, e η é o fator desmagnetizante. Através desta técnica podemos determinar a região de existência do ferromagnetismo e a presença de campo de anisotropia unidirecional induzida (H_a) pelo resfriamento na presença de campo magnético.

Öner e col. [31] estudaram o comportamento magnético de amostras $\text{Ni}_{0.79}\text{Mn}_{0.21}$ através desta técnica, calculando o campo de anisotropia pelas equações de Kittel, eq.1.3 e eq.1.2, e comprovaram que, para medidas realizadas utilizando o método ZFC, o campo de anisotropia cresce até temperaturas próximas a $T_g=35$ K. Acima desse valor a fase ferromagnética é predominante e o campo de anisotropia se torna muito menor que o campo de ressonância. Por outro lado, quando a medida é realizada através do método FC, H_a é constante na faixa de temperatura entre 150-80 K devido à fase ferromagnética e ao efeito do campo desmagnetizante, e quando a temperatura se aproxima de T_g , o campo

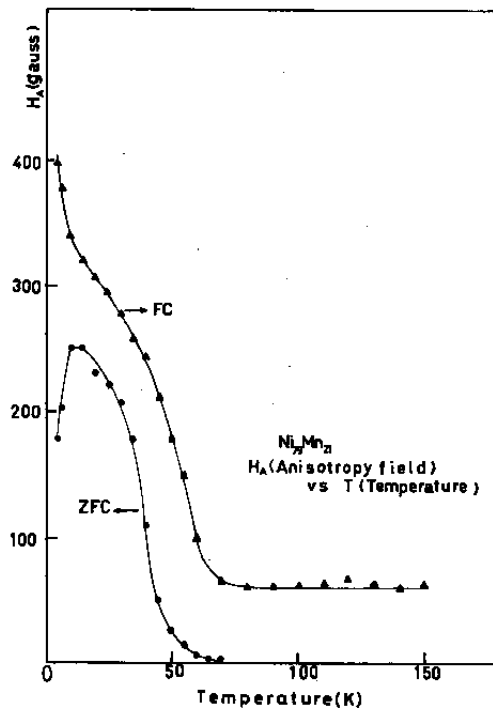


Fig. 1.12: Campo de Anisotropia obtida por medidas de ressonância ferromagnética como função da temperatura para uma amostra de $Ni_{79}Mn_{21}$ [31].

de anisotropia cresce até atingir seu valor máximo de 400 Gauss (ver Fig 1.12).

Huderquint e col. [32] [33] apresentam resultados de ressonância ferromagnética em amostras de $Ni_{1-x}Mn_x$ com concentrações $x = 0.26$ e 0.21 através de medidas realizadas na geometria paralela e perpendicular. Na Fig 1.13 é mostrado o comportamento do campo de ressonância ferromagnética para a amostra de $Ni_{74}Mn_{26}$. A curva experimental apresenta o sinal correspondente ao ferromagnetismo até atingir a temperatura de $T_g = 40$ K, tanto para a geometria paralela quanto perpendicular. Acima dessa temperatura, os efeitos de anisotropia se tornam evidentes, diminuindo o campo de ressonância.

Analisando as equações de Kittel, vemos que a frequência de ressonância depende também da forma e da orientação da amostra relativa ao campo magnético aplicado (H_a), através da influência do campo desmagnetizante. Sarkissian [34] estudou o comportamento do campo de ressonância ferromagnética para diferentes formas geométricas no sistema reentrante $Au_{83}Fe_{17}$ com o intuito de quantificar a influência da forma. A Fig 1.14 apresenta medidas do campo de ressonância ferromagnética como função da temperatura para três amostras com as formas geométricas distintas. Uma das amostras possui forma de esfera,

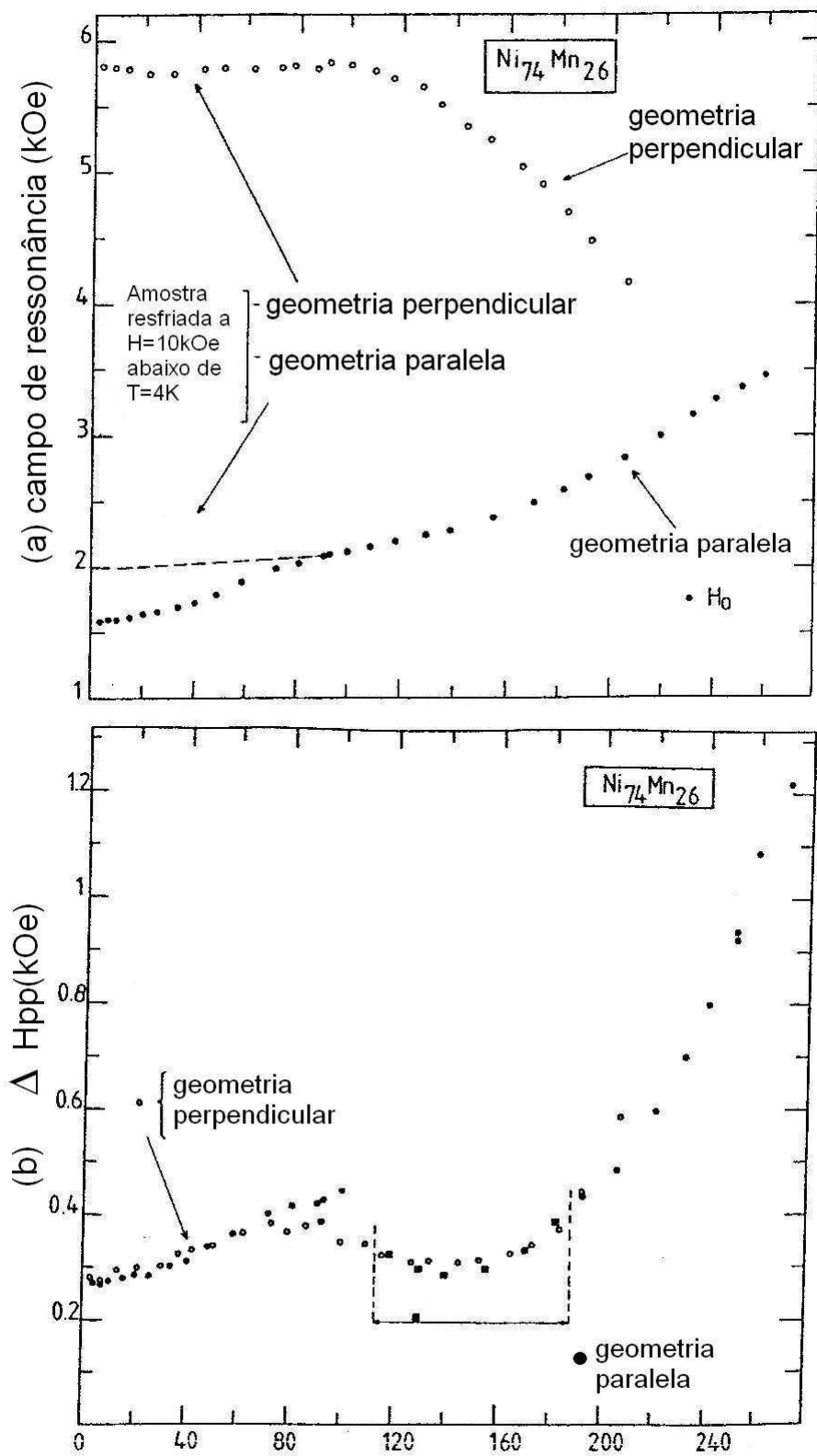


Fig. 1.13: Campo de ressonância ferromagnética como função da temperatura para uma amostra de $Ni_{74}Mn_{26}$ [33].

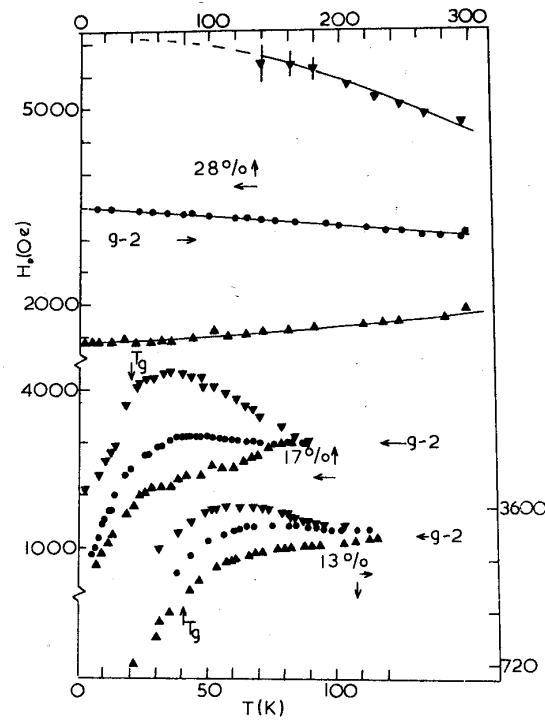


Fig. 1.14: Campo de ressonância ferromagnética em função da temperatura para uma amostra de $Au_{83}Fe_{17}$ [34]. A mostra esférica é representada por ●, disco magnetizado paralelamente ao plano por Δ, e disco com magnetização perpendicular ao plano por ▽.

e outras duas possuem forma de disco. Numa destas o campo é aplicado paralelamente ao plano e no outro perpendicular ao plano do disco. Nota-se que a forma geométrica que apresenta menor campo desmagnetizante é aquela de um disco magnetizado perpendicularmente ao plano, onde tanto o campo ressonância quanto o campo de anisotropia apresentam seus valores máximos. Também podemos ver que a fase ferromagnética é predominante até valores próximos a 20K.

1.2.7 Resistividade Elétrica e Magnetoresistência

Na Figura 1.15 são mostradas medidas de resistividade elétrica (ρ) em função da concentração de manganês para amostras do tipo $Ni_{1-x}Mn_x$ [35]. Essas medidas foram feitas em temperaturas de 4.2 K, 77 K e 295 K, para concentrações de Mn na faixa $0 < x < 33\%$. Observa-se que a resistividade cresce de forma monotônica com a concentração de Mn, o que levou os autores a considerar que, mesmo quando o limite da fase reentrante é ul-

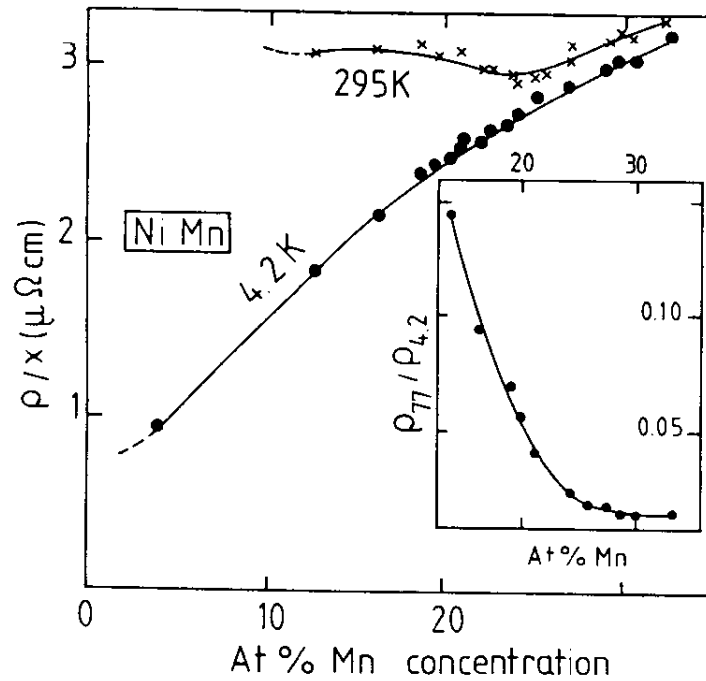


Fig. 1.15: Resistividade reduzida para o sistema $Ni_{1-x}Mn_x$ em função da concentração de Mn para temperaturas de 4.2 e 295 K. [36].

trapassado ($x = 0.24$), as correlações magnéticas de curto alcance persistem. Senoussi e col. [36] realizaram medidas de resistividade elétrica $\rho(T)$ em função da temperatura para amostras de $Ni_{1-x}Mn_x$ com $x = 0.21, 0.26, 0.28$. Para as concentrações de 0.26 e 0.28 (ver Figura 1.16) é observado o aparecimento de um efeito de localização (na forma de um mínimo na curva $\rho(T) \times T$) próximo de 3.5 e 7.5 K, respectivamente. Os autores associam esse efeito ao limiar de transição de uma fase vidro-de-spin para um estado misto (ordem ferromagnética mais vidro-de-spin).

Medidas de magnetoresistência em amostras de $Ni_{1-x}Mn_x$ para concentrações $x = 0.21, 0.26, 0.28, 0.30$ foram feitas por Senoussi e col. [36] [37]. Observa-se que a amostra com $x = 0.21$ (ver Figura 1.17) apresenta uma forte anisotropia na magnetoresistência, indicando que o caráter ferromagnético é forte mesmo na fase reentrante. Para as demais concentrações, as características de vidro-de-spin são evidenciadas através de efeitos de histerese e irreversibilidade, pela dependência da resistividade com o campo externo ou ainda pelo efeito do tratamento térmico [38], um comportamento que é típico de vidros de spin como o Cu-Mn.

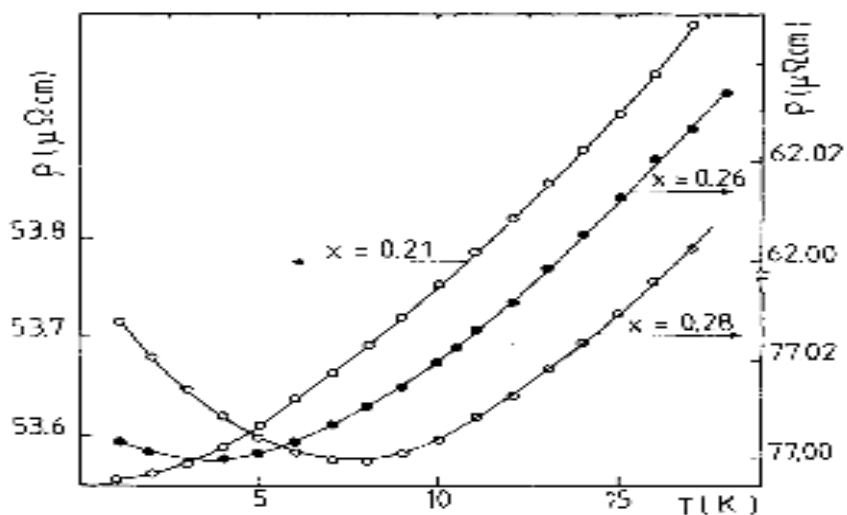


Fig. 1.16: Resistividade elétrica em função da temperatura para amostras de $\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x$, sendo $x=0.21, 0.25$, e 0.28 [36].

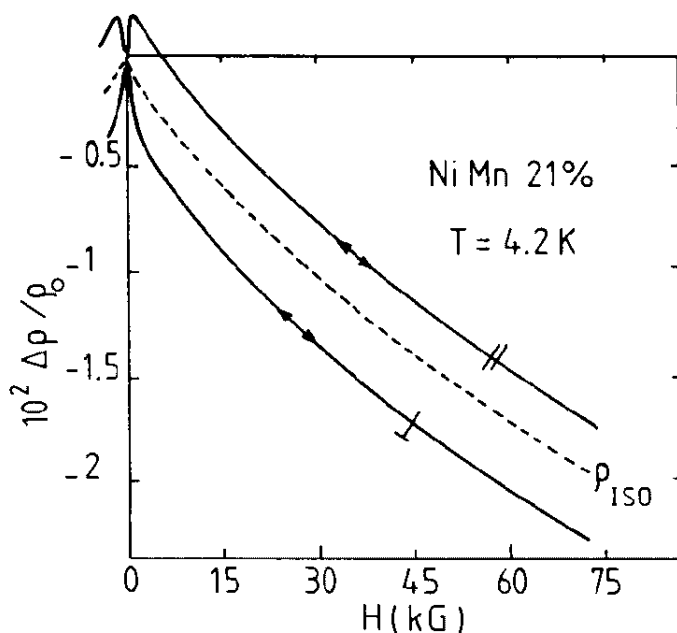


Fig. 1.17: Medidas de magnetoresistência longitudinal ($\Delta\rho_{\parallel}/\rho_0$), transversal ($\Delta\rho_{\perp}/\rho_0$) e isotrópico (representado pela curva pontilhada) em função do campo magnético para amostra $\text{Ni}_{79}\text{Mn}_{21}$ [36].

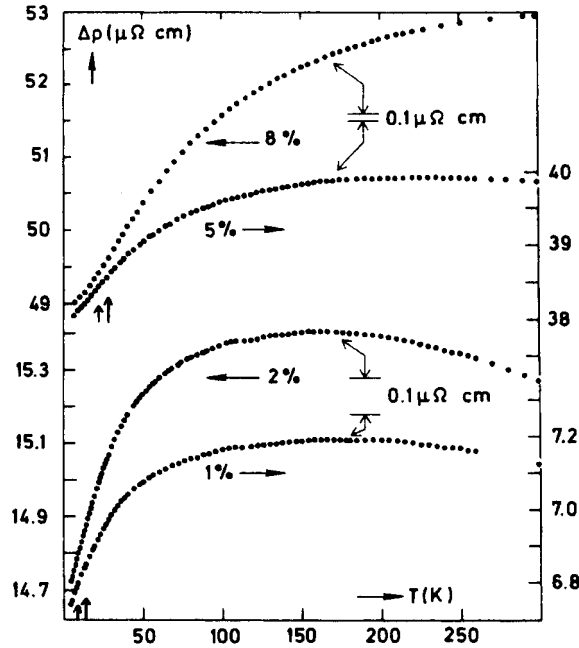


Fig. 1.18: Resistividade Residual $\Delta\rho_o$ para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$ em função da temperatura, para $x=1, 2, 5$ e $8\text{at}\%$ [41].

Senoussi e col. [36] estudaram ainda, na amostra $x = 0.21$, o processo de magnetização que ocorre dentro da fase reentrante. Essas medidas revelaram a existência de uma forte componente ferromagnética no ordenamento dos spins da amostra. Dentro da escala do livre caminho médio eletrônico, este ordenamento é homogêneo. Os autores também observaram que a amostra $x = 0.21$, cuja temperatura de Curie é $T_c = 275\text{K}$, apresenta um comportamento típico ferromagnético para temperaturas acima de 40K . Porém as medidas de magnetoresistência indicam que os comportamentos ferromagnético e vidro de spin coexistem para temperaturas abaixo de 130K .

Mydosh e col.[41] realizaram uma análise detalhada em medidas de resistividade elétrica para a série de ligas de Au-Fe com concentrações entre 0.5 e $22\text{-at}\%$ Fe, na faixa de temperatura entre 5 e 300K . A Figura 1.18 apresenta a dependência da resistividade residual $\rho(T \rightarrow 0) \equiv \Delta\rho_o$ com a temperatura para concentrações de 1 a $8\text{-at}\%$ Fe para liga de Au-Fe, a qual apresenta um regime de vidro-de-spin para estas concentrações. Podemos notar que o aumento da resistividade é proporcional em relação concentração de Fe na liga com a variação de temperatura, apresentando somente uma queda abrupta a baixas temperaturas.

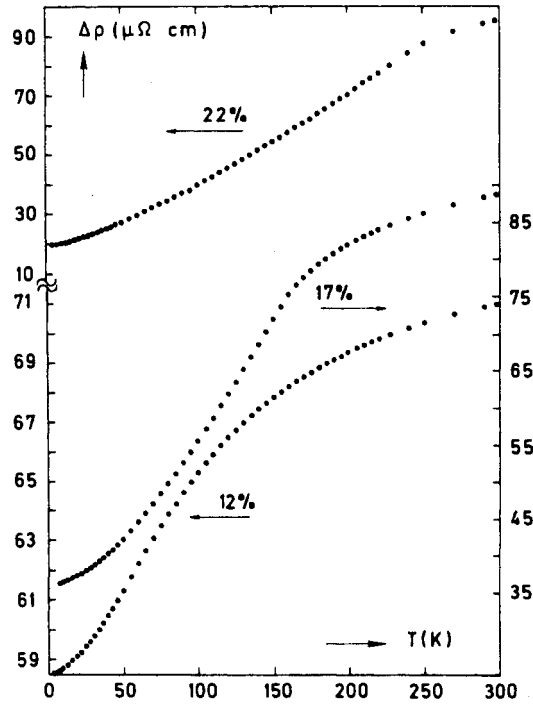


Fig. 1.19: Resitividade residual $\Delta\rho_o$ em função da temperatura para o sistema $Au_{1-x}Fe_x$ para $x=12, 17$ e 22 at% [41].

Para a concentração $c \simeq 10\text{at}\%Fe$, os autores descrevem a ocorrência de um regime de mictomagnetismo, o qual é caracterizado por agrupamentos magnéticos grandes “clusters” e sensibilidade á história magnética e térmica. Quando a concentração de Fe aproxima-se de $c \geq 15\text{at}\%Fe$ ocorre uma superposição (overlap) entre os agrupamentos magnéticos (“clusters”), de tal forma que a liga apresenta um regime ferromagnético inhomogêneo de longo alcance. A Figura 1.19 relaciona o comportamento da temperatura em relação $\Delta\rho$ para concentrações de 12, 17 e 22-at%Fe, onde a contribuição magnética é relevante para resitividade a baixas temperaturas, pois como visto à medida que a concentração aumenta $\Delta\rho$ diminui. O efeito de ordenamento magnético é claramente identificado para as concentrações 12 e 17-at%Fe pela inflexão nas curvas $\Delta\rho(T)$.

Na Figura 1.20 é apresentada a derivada do coeficiente da resistividade em relação à temperatura, em função desta última, para a liga Au-Fe nas concentrações 12, 17 e 22-at%. Nota-se que o aumento $d(\Delta\rho(T))/dT$ é proporcional ao aumento da concentração de Fe, e que $d(\Delta\rho(T))/dT$ não assume valores negativos mesmo quando este se aproxima da temperatura ambiente. A amostra com concentração 12-at%Fe apresenta um ponto máximo em T_g (indicado por uma seta na Figura 1.20), porém as demais concentrações

não apresentam nenhum pico nesta faixa de temperatura. Comparando esses resultados com a literatura vemos que as formas características dessas curvas são muito diferentes daquelas de sistemas ferromagnéticos típicos como PdFe [39] e PtFe [40], indicando que o comportamento não-sistemático de $\Delta\rho(T)$ para as amostras com concentrações 12, 17 e 22-at%Fe nas ligas de Au-Fe pode estar relacionado com um tipo de ferromagnetismo inhomogêneo em alta temperaturas, seguindo por um regime tipo vidro-de-spin em baixas temperaturas. Isto significa que o regime vidro-de-spin persiste em uma região de concentração de temperatura limitada abaixo de um regime ferromagnético.

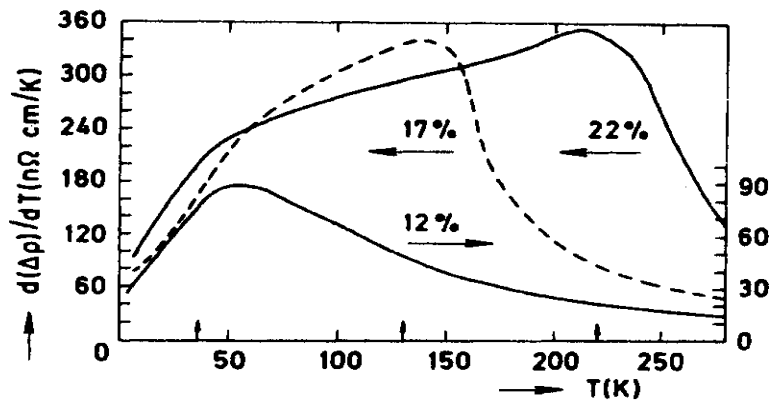


Fig. 1.20: Derivada do coeficiente da resistividade em relação à temperatura, para sistema $Au_{1-x}Fe_x$ onde $x=12, 17$ e 22 at% [41].

1.3 Modelos Teóricos para Sistemas Magnéticos Reentrantes

Duas abordagens teóricas distintas tem sido mais comumente usadas para explicar o comportamento magnético de sistemas reentrantes. O primeiro modelo, proposto por Coles e col. [2], sugere a coexistência de ordens do tipo ferromagnética (ou antiferromagnética) e vidro-de-spin em regiões distintas da amostra. O segundo modelo, originalmente estudado por Sherrington e Kirkpartick em 1975 [42], consiste em uma extensão natural da teoria de campo médio para vidros-de-spin. Nenhuma das duas descrições é inteiramente satisfatória. A ocorrência de uma fase intermediária com ordem ferro(ou antiferro) magnética de longo alcance nos sistemas reentrantes indica que a entropia é maior nesta

fase do que no estado desordenado tipo vidro-de-spin em baixas temperaturas. É essa a principal característica experimental, aparentemente paradoxal, que os modelos teóricos para os sistemas reentrantes tem encontrado dificuldades para explicar.

No modelo de coexistência de ordens ferromagnética e de vidro-de-spin, originalmente proposto para interpretar o comportamento de amostras Au-Fe, é usada a teoria de percolação. Admite-se que o sistema de spins se subdivide em agregados. No limiar de percolação, alcançando pela variação na concentração do átomo magnético, é formado um agregado infinito com ordem ferromagnética em $T = T_C$.

Supõe-se também que uma certa quantidade de agregados finitos de diferentes tamanhos sobrevive. Nestes, um ordenamento do tipo vidro-de-spin se estabelece em temperaturas inferiores a T_g . Um aspecto essencial deste modelo é que o ferromagnetismo de longo alcance pode ser perturbado, mas não desestabilizado, pelas interações com os agregados finitos onde os spins estão congelados em direções aleatórias.

De acordo com a teoria de campo médio, originalmente proposta por Sherrington e Kirkpartick (SK), não existe nenhuma distinção fundamental entre um vidro-de-spin simples, em geral formado por ligas diluídas, e os sistemas reentrantes. A descrição do modelo de SK parte de um Hamiltoniano de spins de Ising com a seguinte forma:

$$H = \sum_{i,j} J_{ij} S_i S_j - \sum_i h_i S_i, \quad (1.4)$$

onde, no primeiro termo, cada par de spins deve ser somado apenas uma vez, e no segundo termo é incluído o efeito de um campo local h_i . Os parâmetros de troca J_{ij} obedecem a uma distribuição Gaussiana do tipo:

$$P(J_{ij}) = \sqrt{\left(\frac{N}{2\pi\Delta J^2}\right)} \exp\left[-N(J_{ij} - J_o/N)^2/2\Delta J^2\right] \quad (1.5)$$

que é a mesma para todos os pares de spins, de modo que se obtém:

$$\langle J_{ij} \rangle = J_o/N \quad (1.6)$$

e

$$\langle J_{ij}^2 \rangle - \langle J_{ij} \rangle^2 = (\Delta J)^2/N \quad (1.7)$$

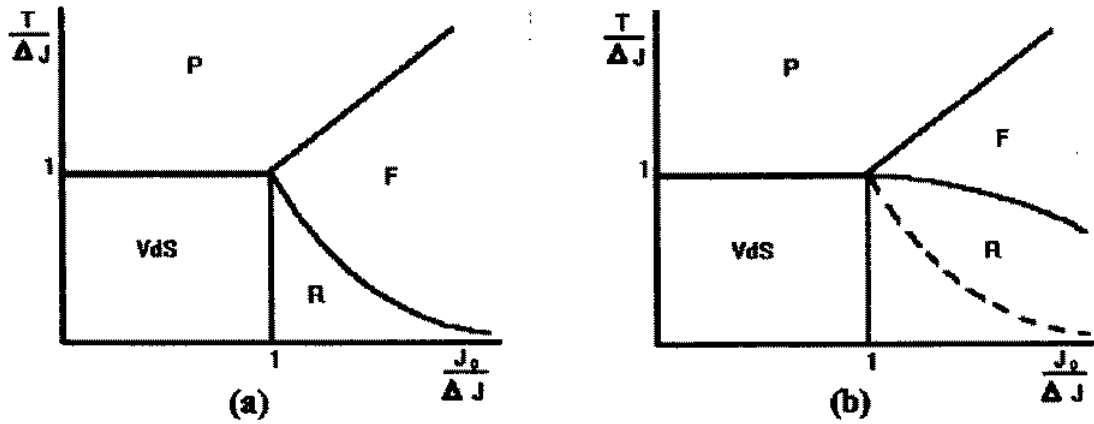


Fig. 1.21: (a) Diagramas de fases magnéticas para o modelo SK [42]. (b) O mesmo para o modelo de Gabay e Toulouse [19]

onde ΔJ é o desvio médio da distribuição de J_{ij} em relação a J_0 , e N corresponde ao número total de spins.

A solução do modelo SK resulta em um diagrama de fases como mostrado na Figura 1.21 (a). Acima de um certo valor positivo para J_0 , o sistema apresenta uma fase ferromagnética (F) que, a baixas temperaturas, sofrerá uma transição para a fase reentrante R , teoricamente descrita como um ferromagneto com quebra de simetria de réplicas [1]. Experimentalmente, essa fase deve manifestar propriedades características de vidro-de-spin, tal como na fase de vidro-de-spin simples, denotado VdS como nos diagramas da Figura 1.21. A fronteira de separação entre as fases F e R é descrita pela linha de Almeida-Thouless [19]. Na solução original do modelo SK não havia distinção entre as fases VdS e R e a fronteira entre as fases F e R por eles calculada era instável.

O modelo SK foi posteriormente generalizado por Gabay e Toulouse [18], que consideraram um Hamiltoniano semelhante ao da Eq.1.4, porém com spins vetoriais clássicos. A solução obtida fornece o diagrama de fases esquematizado na Figura 1.21 (b), onde a linha de separação entre a fase ferromagnética F e a fase reentrante R é chamada de linha de Gabay-Toulouse. Neste caso a linha de Almeida-Thouless corresponde apenas a um “crossover”, assinalado pela linha tracejada no diagrama.

A teoria de Gabay-Toulouse permite uma interpretação mais clara da natureza da

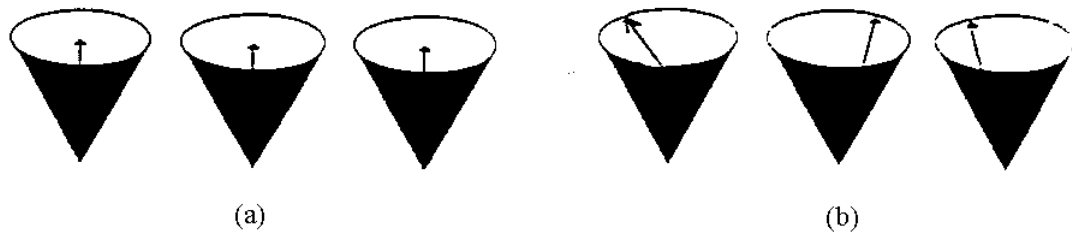


Fig. 1.22: (a) Ordenamento das componentes longitudinais do spin na fase F e (b) Congelamento aleatório dos spins na fase reentrante R no diagrama de Gabay-Toulouse.

fase reentrante. De acordo com o modelo, ocorre um desacoplamento dos graus de liberdade longitudinal e transversal dos spin vetores. Na transição entre as fases P e F apenas a componente z do spin adquire ordem de longo alcance, dando origem a um estado tipo ferromagnético, porém com momento significativamente menor que o valor de saturação, conforme ilustra a figura 1.22(a). Abaixo da linha de separação entre as fases ferromagnética e reentrante, os graus de liberdade transversais à direção z se congelam progressivamente em orientações aleatórias. Desta forma, tal como ilustrado na Figura 1.22(b), na fase R ocorre um desalinhamento dos momentos magnéticos microscópicos e o ferromagnetismo longitudinal coexiste com uma ordem do tipo vidro-de-spin nas componentes transversais do spin.

Capítulo 2

Fenômenos Críticos em Transições de Fase Magnéticas

O estudo de transições de fase e fenômenos críticos é feito em uma ampla variedade de sistemas como, por exemplo, materiais magnéticos, ligas binárias, superfluidos, supercondutores, cristais líquidos, etc. Neste capítulo, nos concentraremos em abordar os fenômenos críticos que caracterizam o comportamento de sistemas magnéticos nas vizinhanças da transição de fase para-ferromagnética.

2.1 Transições de Fase

A classificação atualmente utilizada para as transições de fase foi sugerida inicialmente por Ehrenfest [43]. De acordo com essa classificação, uma transição de fase ocorre quando existir um comportamento singular na energia livre ou em uma de suas derivadas. No primeiro caso, a transição é de primeira ordem, ao passo que se a singularidade ocorrer numa derivada primeira do potencial termodinâmico em relação a uma variável intrínseca à transição esta é dita de segunda ordem. Equivalentemente, chamamos transições de fase de primeira ordem a os processos nos quais as derivadas dos potenciais termodinâmicos apresentam uma descontinuidade em função de suas variáveis. Quando as derivadas de primeira ordem permanecem contínuas, mas as derivadas de ordem superior divergem para certos valores de temperatura, pressão ou concentração de partículas, temos o que é chamado uma transição de fase de segunda ordem. As transições de segunda ordem também podem ser definidas em termos da simetria do sistema em questão. Elas ocorrem

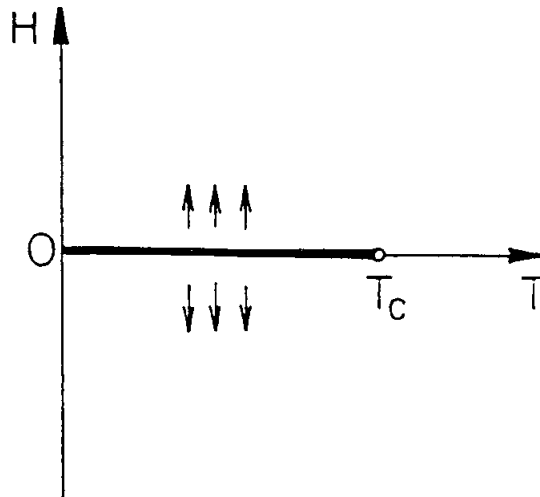


Fig. 2.1: Diagrama de fase do campo magnético como função da temperatura num sistema ferromagnético.

quando houver uma quebra de simetria, ou seja quando o sistema passar de forma contínua de uma fase desordenada (mais simétrica) a uma fase ordenada (menos simétrica).

Os processos de transição de fase num sistema ferromagnético podem ser visualizados utilizando-se um diagrama de fases em que o campo magnético aplicado é representado como uma função da temperatura, tal como mostra a Figura 2.1. Em baixas temperaturas, quando o campo aplicado é nulo, se observa uma linha de coexistência das fases ordenadas. Uma das fases ordena-se com spins apontando paralelamente a certo eixo de quantização e a segunda com spins alinhados no sentido oposto. A magnetização espontânea para ambas as fases é a mesma em módulo e a energia livre magnética por átomo também não se altera. Quando ocorre a passagem por T_c em $H = 0$ a magnetização adquire um valor abrupto não nulo, o que caracteriza uma transição de fase de segunda ordem.

Quando um sistema magnético é colocado sob a ação de um campo externo, a magnetização será definida por:

$$M = - \left(\frac{dG}{dH_a} \right)_T \quad (2.1)$$

sendo G a energia livre de Gibbs e H_A o campo magnético aplicado. O diagrama de fases da Figura 2.2 mostra que a magnetização espontânea é nula para valores acima de T_c , enquanto que para temperaturas abaixo de T_c existe uma transição de fase de primeira

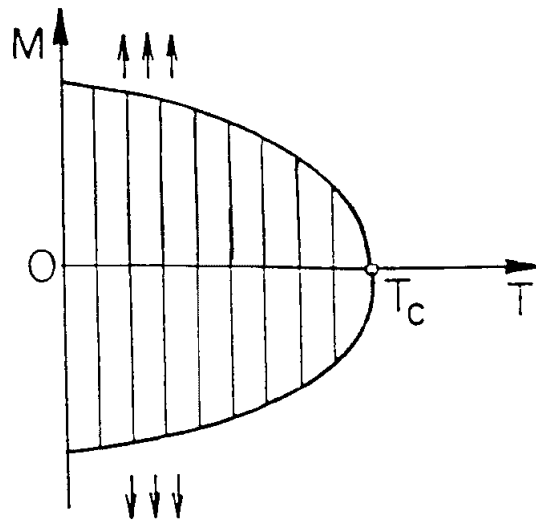


Fig. 2.2: *Diagrama de fase magnetização versus temperatura num sistema ferromagnético [44].*

ordem em processos em que o campo é variado com mudança de orientação e a temperatura é mantida fixa. Em $H = 0$ e variando-se a temperatura observa-se uma transição de fase contínua, de segunda ordem, na temperatura crítica $T = T_c$.

A dependência da susceptibilidade e do calor específico com a temperatura apresentam divergência em $T = T_c$, o que é característico de transições de fase de segunda ordem (Fig.2.3).

2.2 Expoentes Críticos para Transições de Fases Magnéticas

As transições de fase de segunda ordem ou as transições de fase críticas, tem sido muito estudadas graças ao desenvolvimento de técnicas teóricas poderosas para descrevê-las, como, por exemplo, a teoria de scaling, que se fundamenta numa técnica análise dimensional baseada em uma equação de estado apropriada, ou a teoria do grupo de renormalização.

A termodinâmica de uma transição de segunda ordem é controlada pelo comprimento de correlação, o qual diverge na forma de uma lei de potência quando a temperatura se

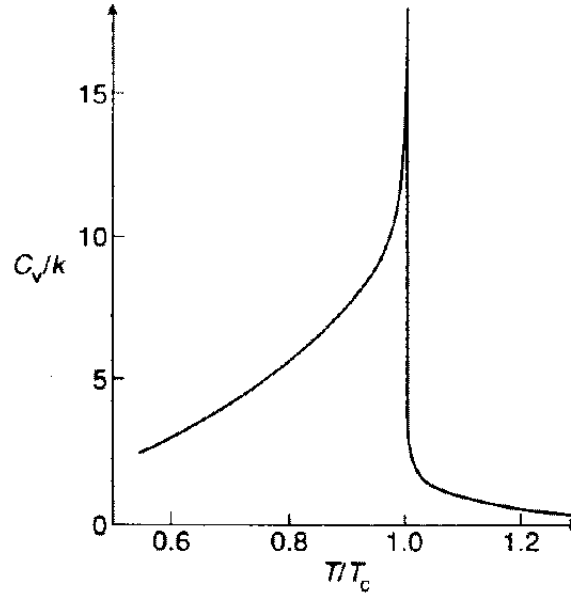


Fig. 2.3: Calor específico versus temperatura de um ferromagneto nas vizinhanças da temperatura crítica [44].

aproxima do valor crítico T_c , indicando o estabelecimento de um estado com ordem de longo alcance e menor entropia em $T < T_c$. Conseqüentemente, nesse tipo de transição, as propriedades termodinâmicas relevantes também apresentam comportamentos singulares nas vizinhanças de T_c . Estes são os denominados fenômenos críticos. Podemos analisar tal comportamento através da energia livre de Gibbs $G(T, H)$, através da qual podem ser expressas as funções termodinâmicas [45]:

Susceptibilidade:

$$\chi = \left(\frac{\partial^2 G}{\partial H^2} \right) \quad (2.2)$$

Magnetização:

$$M = \left(\frac{\partial G}{\partial H} \right) \quad (2.3)$$

Calor Específico:

$$C = \left(\frac{\partial^2 G}{\partial T^2} \right). \quad (2.4)$$

A expressão não analítica para a energia livre nas vizinhanças de T_c tem seguinte forma:

$$G(T - T_c) = A | (T - T_c) |^x (1 + B(T - T_c)^y + \dots) \quad (y > 0). \quad (2.5)$$

A função $G(T)$ representa o comportamento das várias quantidades físicas do sistema, tais como as definidas nas equações 2.2, 2.3 e 2.4, e é regida pelo valor assumido pelo expoente crítico y . Dessa forma, as diferentes quantidades físicas passam a ser descritas por leis de potência em $(T - T_c)$ e podem ser individualmente caracterizadas em termos de seus expoentes e amplitudes críticas correspondentes.

Para definir os expoentes críticos partimos da função termodinâmica $G(T)$, a qual será nula no ponto crítico e contínua para $(T - T_c) \rightarrow 0$. Assim, em uma transição magnética a susceptibilidade inicial na fase paramagnética diverge quando a temperatura se aproxima de T_c na forma

$$\chi = \chi_o t^\gamma \quad (t > 0) \quad (2.6)$$

sendo $t = (T - T_c)/T_c$ a temperatura reduzida, γ o expoente crítico e χ_o a amplitude crítica. A magnetização espontânea, que é o parâmetro de ordem para uma transição ferromagnética, se nula quando a temperatura se aproxima de T_c por baixo, na forma

$$M = M_o(-t)^\beta \quad (2.7)$$

onde β é outro expoente crítico. A isotérmica crítica, que descreve a transição no plano $M \times H$, também se comporta de maneira singular, ou seja

$$M = a_o H^{1/\delta} \quad (t = 0) \quad (2.8)$$

sendo δ o expoente crítico e a_o uma constante.

O calor específico segue uma lei de potência tanto acima quanto abaixo de T_c e é em geral representado como

$$C = \frac{A^\pm}{\alpha} (t^{-\alpha} - 1) + B^\pm, \quad (2.9)$$

onde os símbolos \pm se referem a temperaturas acima e abaixo de T_c , respectivamente. As amplitudes B^\pm correspondem às contribuições não críticas que se adicionam ao termo magnético. Essas contribuições, quando significativas, tornam difícil a determinação pre-

cisa do expoente crítico α através de experiências de calor específico, de forma que um método alternativo, através o estudo da resistividade elétrica, também tem sido utilizado para a determinação desse expoente. Segundo previsões teóricas [46] e verificações experimentais [47], a derivada da resistividade em função da temperatura diverge do mesmo modo que o calor específico na região crítica. Isso ocorre porque, nesse intervalo de temperaturas, as flutuações que contribuem para a energia interna são também responsáveis pelo espalhamento. Assim, podemos escrever

$$\frac{d\rho}{dT} = \frac{C^\pm}{\alpha} (t^{-\alpha} - 1) + D^\pm \quad (2.10)$$

onde C^\pm são amplitudes críticas e D^\pm são os coeficientes da resistividade regular.

Também relevante é o comportamento crítico do comprimento de correlação, que é dado por

$$\xi = \xi_o |t|^{-\nu} \quad (2.11)$$

sendo ν o expoente crítico e ξ_o uma amplitude crítica.

Quantidades físicas que dependem da dinâmica do sistema também mostram comportamento crítico em $T = T_c$ [48]. A dinâmica crítica é descrita através de um tempo característico, que é o inverso da razão de relaxação para o parâmetro de ordem. Este tempo de relaxação τ , depende do comprimento de correlação segundo uma lei de potência dada por $\tau \sim \xi^z$, sendo z chamado de expoente crítico dinâmico. A equação 2.11 implica que o tempo de relaxação varia com a temperatura reduzida na forma:

$$\tau \sim |t|^{-\nu z} \quad (2.12)$$

As diversas relações entre as quantidades termodinâmicas e a hipótese de invariância por transformação de escala permitem que sejam obtidas diversas relações entre os expoentes críticos estáticos. Dentre estas, as mais conhecidas são as leis de escala de Rushbrooke, de Griffiths e de Widom, respectivamente escritas como:

$$\alpha + 2\beta + \gamma = 2 \quad (2.13)$$

$$\alpha + \beta(\delta + 1) \geq 2 \quad (2.14)$$

$$\gamma = \beta(\delta - 1). \quad (2.15)$$

Uma outra relação interessante é a chamada lei de hiper-escala, dada por

$$\alpha = 2 - \nu d, \quad (2.16)$$

a qual permite expressar todos os expoentes críticos em termos do expoente para o comprimento de correlação e da dimensionalidade Euclideana d do espaço relevante ao sistema.

2.3 Previsões da Teoria de Campo Médio para os Expoentes Críticos

A chamada Teoria de Campo Médio para um sistema magnético é baseada na hipótese de que a interação entre os momentos magnéticos pode ser considerada como sendo aquela de um dado momento individual com o campo médio gerado por todos os demais na posição do momento em questão. Em outras palavras, o sistema magnético é descrito como um somatório de comportamentos de partícula única, sendo relacionado à média dos estados de um spin único sob a influência de todos outros.

A transição ferromagnética tem sido estudada desde o início do século 20, quando Curie propôs uma teoria fenomenológica, desenvolvida mais tarde por Weiss [49]. Essa teoria também é conhecida como teoria clássica ou de campo molecular, se limita a descrever os aspectos qualitativos das transições ferromagnéticas, considerando tais transições como um efeito cooperativo onde as interações entre os momentos magnéticos gera um campo interno ao qual está sujeito cada átomo magnético do sistema. Esse campo é denominado campo médio ou molecular, e é definido como:

$$\vec{H}_m = \lambda \vec{M} \quad (2.17)$$

sendo \vec{M} a magnetização e λ um parâmetro independente da temperatura, que mede a intensidade do campo médio. Quando o sistema é colocado sob a ação de um campo externo H , o campo total atuando sobre um dado momento magnético será

$$\vec{H}_{ef} = \vec{H} + \lambda \vec{M}(T, \vec{H}) \quad (2.18)$$

onde \vec{H}_{ef} é o campo efetivo. A magnetização do sistema interagente será então:

$$\vec{M} = \chi \vec{H}_{ef} \quad (2.19)$$

Considerando que o sistema esteja em uma fase paramagnética de alta temperatura, o que equivale a supor que a agitação térmica é suficientemente forte para impedir o estabelecimento de qualquer ordem cooperativa de longo alcance, teremos o limite em que o campo efetivo é fraco, e podemos supor que a susceptibilidade χ obedece à lei de Curie, de modo que a Eq. 2.19 toma a seguinte forma:

$$\vec{M} = \frac{C}{T} \vec{H} + \lambda \vec{M}. \quad (2.20)$$

Isolando a magnetização na Eq. 2.20, teremos

$$\frac{M}{H} = \frac{C}{T - C\lambda} \quad (2.21)$$

Este resultado significa que, na teoria de Curie-Weiss, a susceptibilidade em temperaturas bem maiores que T_c é dada por

$$\frac{M}{H} = \chi = \frac{C}{T - T_c} \quad (2.22)$$

onde $T_c = C\lambda$, sendo C a constante de Curie. A susceptibilidade, portanto, apresenta uma singularidade em $T = T_c$, onde ocorre uma instabilidade no sistema de spins. O expoente crítico correspondente, segundo esta formulação, é $\gamma = 1$. Acima de T_c , os spins estão orientados ao acaso e embora ocorram flutuações que produzem uma magnetização local, tendendo à aumentar o alinhamento entre os spins, tais flutuações não capazes de estabilizar um estado com ordem de longo alcance com caráter estático. Abaixo de

T_c , o sistema passa a apresentar uma fase ordenada, sendo a magnetização diferente de zero mesmo na ausência de campo magnético aplicado. Na teoria de campo médio, a magnetização é dada por

$$M = N_g \mu_B J B_J \left(\frac{\mu H_{ef}}{k_B T} \right) \quad (2.23)$$

onde μ é a magnitude do momento magnético microscópico, B_J é a função de Brillouin, N é o número de momentos magnéticos por unidade de volume, e k_B é a constante de Boltzmann. Em temperaturas próximas a T_c , essa expressão corresponde a um comportamento para a magnetização que é dado por:

$$M \propto (T - T_c)^{1/2}. \quad (2.24)$$

Isto significa que o expoente crítico para a magnetização na teoria de campo médio é dado por $\beta = 1/2$.

Podemos ainda analisar o comportamento da isotérmica crítica, a qual descreve a transição no plano M versus H, considerando $T = T_c$. Obtém-se:

$$M \propto H^{1/\delta}, \quad (2.25)$$

onde $\delta = 3$.

A teoria de campo médio não é válida, todavia, nas proximidades de T_c , uma vez que não inclui os efeitos de flutuações correlacionadas, os quais se tornam importantes nas proximidades da transição. Nas proximidades de T_c a susceptibilidade diverge e, portanto, as flutuações na magnetização, que tem a forma,

$$v(\Delta M)^2 = \chi k_B T, \quad (2.26)$$

podem alcançar valores muito elevados. A energia livre é contínua ao passar pela transição de segunda ordem. Assim, quando estamos nas proximidades de T_c , o custo em energia será mínimo para que numa fração do volume da amostra a magnetização instantânea adquira valores significativos. O sistema deverá ser representado por um comportamento

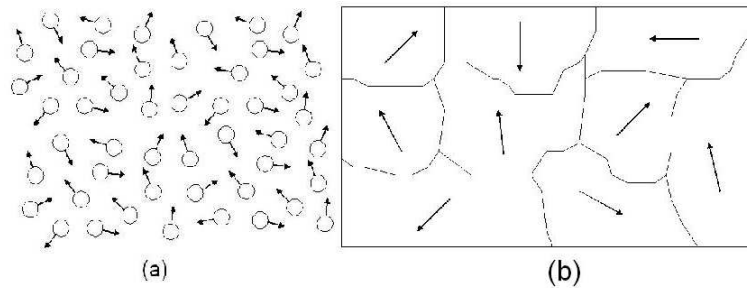


Fig. 2.4: (a) *Comportamento de partícula única para um sistema magnético, e (b) comportamento coletivo.*

coletivo (ver figura 2.4b) e, não pelo somatório das componentes de partícula única (ver figura 2.4a).

Dessa forma, as interações entre partículas governam o comportamento do sistema nas proximidades de T_c . Uma vez que a teoria clássica de campo médio de Weiss não leva em consideração os efeitos devidos às flutuações correlacionadas nessa região, para estudarmos tais efeitos é necessário utilizarmos uma teoria que permita a incorporação de uma descrição das flutuações correlacionadas nas propriedades dinâmicas e de equilíbrio do sistema, tal como a teoria de transições de fase de segunda ordem de Landau, que discutiremos a seguir.

2.3.1 Teoria de Landau

A teoria de Landau [50] para transições de fase de segunda ordem, proposta em 1937, se fundamenta no conceito da existência de um parâmetro de ordem, ϕ , o qual tem valores não nulos para temperaturas abaixo de T_c , se anula em T_c , e se mantém nulo em temperaturas superiores a esta.

Em geral, o parâmetro de ordem será igual a zero na fase mais simétrica (desordenada, ou que ocorre em altas temperaturas), e diferente de zero na fase menos simétrica (ordenada). Por exemplo, em uma transição para-ferromagnética, o parâmetro de ordem ϕ pode ser o vetor magnetização quando o campo externo tende a zero. Em uma transição

para-antiferromagnética, ϕ pode ser associado à magnetização de sub-rede, enquanto que em uma transição do tipo ordem-desordem para uma liga binária, ϕ pode ser considerado como a diferença de densidade entre os sítios das sub-redes. Na transição vidro de spin, o parâmetro de ordem é relacionado com a magnetização quadrática média. Nestes sistemas,

$$M = [\langle S_i \rangle] = 0. \quad (2.27)$$

Assim, a quantidade

$$q = [\langle S_i \rangle^2]_J \quad (2.28)$$

é definido por Edwards e Anderson [51] como o parâmetro de ordem de uma transição vidro-de-spin. Na eq.2.28 J indica que média é efetuada sobre as interações de troca.

Considerando-se o caso de um ferromagneto uniaxial a expressão de Landau para a energia livre de Helmholtz toma a seguinte forma nas proximidades da transição para-ferromagnética, onde o parâmetro de ordem é pequeno:

$$f(T, H, \phi) = f_o(T, H) + \alpha(T, H)\phi^2 + \beta(T, H)\phi^4 \quad (2.29)$$

e a correspondente expressão para a energia livre de Gibbs será

$$G(T, H, \phi) = f_o(T) - H\phi + \alpha(T, H)\phi^2 + \beta(T, H)\phi^4 \quad (2.30)$$

sendo f_o a energia livre por unidade de volume na ausência de campo, e α e β são coeficientes dependentes da temperatura. Essa expressão permite estudar o comportamento de equilíbrio do sistema nas proximidades da transição e fornece valores universais para os expoentes críticos do parâmetro de ordem (β), da susceptibilidade (γ) e do calor específico (α).

O estado de equilíbrio é caracterizado pela minimização da energia livre, Eq. 2.29, sendo que as possíveis soluções são dadas por :

$$|\phi| = 0 \quad (T > T_c) \quad \text{e} \quad |\phi| = -\frac{\alpha}{\beta} \quad (T < T_c) \quad (2.31)$$

No ponto crítico podemos desenvolver os coeficientes em séries de potências da tem-

peratura, conservando apenas o termo de mais baixa ordem, de modo que as condições expressas pela eq.2.31 sejam satisfeitas. Então, supõe-se que

$$\alpha(T) = a(T - T_c) \quad (2.32)$$

e

$$\beta(T) = \beta_o \quad (2.33)$$

onde α_o e β_o são constantes. Em $T = T_C$ e em campo magnético nulo teremos $\alpha(T)=0$. As constantes a e β_o assumem valores positivos e $f_0(T) \approx f_0(T_C)$. Substituindo as Eqs. 2.32 e 2.33 na Eq. 2.30 teremos

$$G(T, H, \phi) = f_0(T) - H\phi + a(T - T_c)\phi^2 + \beta_o\phi^4 \quad (2.34)$$

O painel da Figura 2.5 (a) apresenta $G_L = (G - f_o)$ que representa a parte singular do potencial termodinâmico como função do parâmetro de ordem para $T > T_c$, sendo o campo magnético aplicado H igual a zero. Nessa mesma figura, o painel (b) mostra a dependência do potencial de Landau com o parâmetro de ordem para temperaturas abaixo da temperatura crítica. Vemos aqui que o mínimo presente em $\phi = 0$ na Figura 2.5(a) se torna um máximo e surgem dois mínimos simétricos de cada lado. Utilizando a Eq. 2.34 e suas derivadas podemos calcular os valores dos expoentes críticos independentemente do sistema em questão, obtendo que $\beta=1/2$, $\gamma= 1$ e $\delta = 3$, tal como na versão mais simples da teoria de Curie-Weiss.

2.4 Expoentes Críticos para Sistemas Ordenados

O domínio das transições de fase de segunda ordem por flutuações correlacionadas de longo alcance resulta não apenas nas relações de escala entre os expoentes críticos, mas condiciona também os valores numéricos que estes podem assumir. Em geral, os expoentes não dependem da estrutura microscópica detalhada do material e nem da transição crítica específica, seja ela magnética, superfluida, ordem-desordem, ou outra. Verifica-se, teórica e

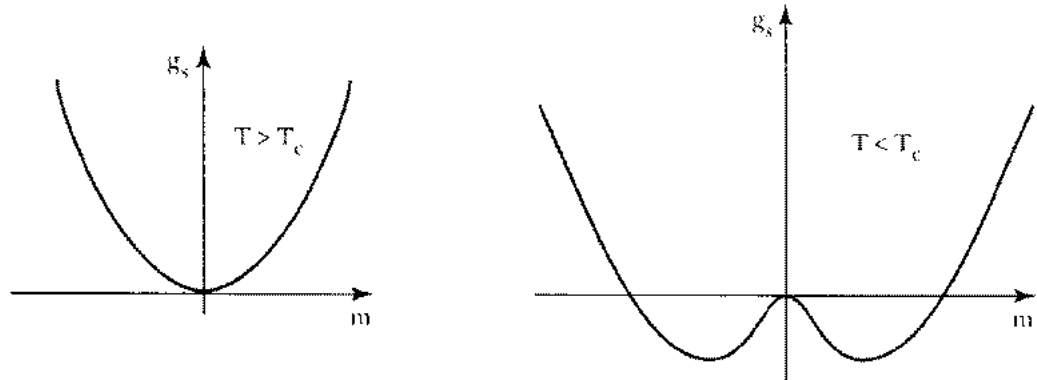


Fig. 2.5: (a) Potencial Termodinâmico de Landau em função parâmetro de ordem para $T > T_c$, (b) e para $T < T_c$ [50].

experimentalmente, que os expoentes críticos em geral dependem de quantidades básicas como a dimensionalidade espacial, d , e a simetria do parâmetro de ordem específico à transição em questão. Esta propriedade recebe o nome da classe de universalidade. Essas são rotuladas em termos do modelo mais simples que as descrevem. Assim, a transição ferromagnética num sistema tridimensional é descrita pelo modelo de Heisenberg [46]. Neste modelo a dimensão é igual a três e o parâmetro de ordem (vetor magnetização) possui três componentes. Cálculos numéricos, fundamentados na teoria do grupo de renormalização [46], permitem estimar [52], para este modelo, os expoentes críticos listados na tabela 2.1. Os valores medidos para estes expoentes em ferromagnetos clássicos como Fe, Co, Ni, Gd e outros reproduzem com boa precisão as previsões do modelo de Heisenberg.

No modelo de Ising, o spin orienta-se apenas paralela ou antiparalelamente a uma única direção. Portanto, neste modelo o parâmetro de ordem é unidimensional. Os valores estimados com o modelo de Ising para os expoentes críticos para espaços bi e tridimensionais estão também apresentados na tabela 2.1.

O modelo XY também descreve uma transição ferromagnética, porém neste caso o parâmetro de ordem possui duas componentes. Em geral convencionou-se que as componentes da integral de troca são $J_{ij}^{\parallel} = 0$ e $J_{ij}^{\perp} \neq 0$. Podemos observar os valores dos expoentes críticos previstos para este modelo na tabela 2.1, no caso que o espaço físico é tridimensional.

Classe de Universalidade	parâmetro de ordem	α	β	γ	δ	ν	η
2-d Ising	2-comp. escalar	0	1/8	7/4	15	1	1/4
3-d Ising	2-comp. escalar	0.10	0.33	1.24	4.8	0.63	0.04
3-d X-Y	vetor-2d	0.01	0.34	1.30	4.8	0.66	0.04
3-d Heisenberg	vetor-3d	-0.12	0.36	1.39	4.8	0.71	0.04
campo médio	vetor-3d	0	1/2	1	3	1/2	0

Tab. 2.1: Tabela de expoentes críticos para modelos tradicionais [45].

2.5 Expoentes Críticos para Sistema Desordenados

Uma questão importante, que tem merecido intensos esforços de investigação teórica e experimental, consiste em verificar se os expoentes críticos são afetados pela desordem, ou, em outros termos, saber se a desordem é relevante na determinação da classe de universalidade de uma dada transição crítica. Uma vez que, em princípio, a desordem pode afetar as correlações de longo alcance que dominam a termodinâmica na região crítica, esta pode se tornar uma variável relevante.

A desordem magnética pode ser relacionada com as características de equilíbrio do material em questão, as quais estão associadas com a mobilidade dos átomos na rede cristalina. Essa desordem é dividida em duas classes: a chamada desordem estática (temperada ou quenched) e a desordem dinâmica (recozida ou annealed). No primeiro caso a configuração atômica e os spins são imóveis e não estão necessariamente em equilíbrio termodinâmico. Na desordem dinâmica a configuração atômica e os spins estão em equilíbrio termodinâmico.

Experimentalmente, a desordem do tipo recozida somente pode ser obtida em alta temperatura, onde os átomos tem energia térmica suficiente para se moverem em uma escala de tempo muito menor que a duração do experimento. Os efeitos magnéticos deste tipo de desordem foram teoricamente analisados em 1968 por Fisher [46], que mostrou que a relevância desse tipo de desordem para os fenômenos críticos depende do expoente crítico do calor específico, α_p , do sistema puro correspondente. Para $\alpha_p < 0$ a desordem recozida é irrelevante. Para $\alpha_p > 0$, os expoentes estáticos são renormalizados por um fator $(1 - \alpha)^{-1}$, e para $\alpha_p = 0$ existe uma correlação logarítmica [53], isto é a eq. 2.9 toma

a forma:

$$C \sim t^\alpha \ln[1 + C \ln(1/t)] + C', \quad (2.35)$$

mas os expoentes não mudam em relação ao sistema puro.

Determinações experimentais dos efeitos de desordem na fenomenologia crítica são difíceis de serem obtidas, uma vez que somente alguns poucos sistemas magnéticos tem temperaturas de ordenamento altas o bastante para assegurar a mobilidade atômica necessária na desordem recozida. Um exemplo de tais sistemas são as ligas de Fe, para as quais se espera que os expoentes não mudem em relação ao caso puro uma vez que $\alpha_p < 0$. Estudos realizados por Chang e Hohenemser [54] através de medidas de espectroscopia Mössbauer na liga $Fe_{1-x}V_x$ confirmam as previsões teóricas, reproduzindo com uma boa precisão o expoente crítico β da magnetização do Fe puro.

De forma geral, a teoria de Fisher é experimentalmente confirmada para sistemas Heisenberg formados por ligas contendo Fe. Entretanto, para sistemas Ising 3d, para quais $\alpha_p > 0$, as previsões de Fisher ainda não foram confirmadas.

No estudo de desordem do tipo temperada também devemos incluir os sistemas com interação de troca aleatória. O Hamiltoniano que descreve o comportamento desses sistemas é dado por

$$H = - \sum_{i,j} (J_o + \Delta J_{ij} \vec{S}_i \vec{S}_j) \quad (2.36)$$

sendo J_o a interação de troca média, ΔJ_{ij} a variação na interação de troca e \vec{S}_j é o spin de m componentes no sítio j . O comportamento crítico desses sistemas também depende do valor de α_p do sistema puro correspondente. Este fato foi inicialmente reconhecido por Harris [55] em 1974. Este autor desenvolveu um critério que estabelece se a desordem “quenched é relevante ou não do ponto de vista de uma transição crítica. Este critério, denominado de Critério de Harris, estabelece que a desordem estática não altera os expoentes quando $\alpha < 0$, que é característico de sistemas do tipo Heisenberg. Porém, a transição pode ser alterada se $\alpha > 0$, como ocorre em sistemas Ising 3d. Para $\alpha = 0$, característico de sistemas Ising bidimensionais e do modelo 3d-XY, as previsões teóricas

Sistema	T_c (K)	β	γ	δ	$\delta_{calc.}$	$\alpha_{calc.}$
ferromagnetos cristalinos						
<i>Fe</i>	1044.0	0.39	1.33	4.35	4.43	-0.11 [64]
<i>Co</i>	1382.2	0.44	1.23	3.35	4.82	-0.10 [65]
<i>Ni</i>	627.4	0.38	1.34	4.58	4.54	-0.10 [66]
ferromagnetos amorfos						
<i>Fe₁₀Ni₇₀B₁₉Si₁</i>	186.5	0.42	1.35	4.49	4.21	-0.19
<i>Fe₁₃Ni₆₇B₁₉Si₁</i>	268.5	0.42	1.35	4.48	4.21	-0.19
<i>Fe₃₂Ni₃₆Cr₁₄P₁₂B₆</i>	250.5	0.41	1.38	4.37	-0.20	
<i>Fe₂₀Ni₆₀B₁₉P₁₄B₆</i>	227.7	0.39	1.33	4.45	4.41	-0.011
<i>Fe₄₀Ni₄₀P₁₄B₆</i>	519.9	0.38	1.31	4.46	4.45	

Tab. 2.2: Valores experimentais e teóricos dos expoentes críticos para sistemas ferromagnéticos amorfos [59] e cristalinos. Os expoentes $\delta_{calc.}$ e $\alpha_{calc.}$ são calculados através das relações de scaling $\delta = 1 + (\gamma/\beta)$ e $\alpha = 2(1 - \beta) - \gamma$.

são controversas. Jug [56] obteve em seus estudos que o sistema puro não sofre nenhuma mudança, enquanto que Dotsenko [57] [58] encontra que a transição para $\alpha = 0$ produz divergências logarítmicas nas propriedades críticas.

Além dos sistemas cristalinos desordenados que tratamos até aqui, existem os sistemas estruturalmente desordenados, nos quais a rede cristalina dá lugar a uma estrutura amorfa. Estes sistemas são preparados a partir da fase líquida e resfriados de forma suficientemente rápida para que os átomos não tenham tempo de se ordenar em uma estrutura cristalina estável e continuam a manter, na fase sólida, a estrutura de desordem típica do líquido. Kaul [59] desenvolveu um extenso estudo experimental sobre a fenomenologia crítica dos ferromagnetos amorfos e, como podemos ver a partir dos valores mostrados na Tabela 2.5, os expoentes críticos desses ferromagnetos desordenados são muito similares aqueles dos sistemas ordenados.

Outro tópico de grande importância, mas ainda pouco estudado, são os sistemas ferromagnéticos desordenados em que a desordem é acompanhada de frustração. Um exemplo de sistema frustrado são os sistemas do tipo vidro-de-spin [63], os quais apresentam uma ordem magnética resultante do conflito de interações que favorecem igualmente antiferromagnetismo e ferromagnetismo. Nesses sistemas, o ordenamento magnético é caracterizado por uma magnetização total nula, pois os momentos microsscópico são orientados com

igual probabilidade em todas as direções possíveis. Abaixo de uma certa temperatura T_g , os momentos magnéticos estão fixos e aleatoriamente orientados, isto é, estão congelados. Acima desse limite, eles se descongelam e a liga se torna paramagnética.

A Figura 2.6 ilustra o fenômeno de frustração em um sistema magnético. Na figura está representada uma rede quadrada onde os momentos magnéticos interagem apenas com seus vizinhos mais próximos, sempre com a mesma intensidade, porém com sinais aleatórios. Consideremos, inicialmente, que os momentos magnéticos podem se orientar apenas para cima ou para baixo no plano da página. Se considerarmos apenas um quadrado elementar da rede, podemos ver Figura 2.6(a) que todas as ligações positivas produzem sempre alinhamento paralelo dos momentos e as negativas produzem alinhamento antiparalelo. No caso da Figura 2.6(b) um alinhamento completo não é possível, pois haverá sempre uma ligação frustrada, ou seja, incapaz de orientar os momentos de forma a satisfazer a regra geral. Como podemos ver através da Figura 2.6, a condição para que um quadrado seja “frustrado” ou tenha uma ligação frustrada, é que o produto das ligações ao longo de seu perímetro seja negativo.

Se permitimos agora que os momentos magnéticos se orientem em todas as direções e não apenas para cima ou para baixo, se torna possível distribuir a frustração ao longo das ligações, atingindo uma situação de compromisso na qual todas elas terminam parcialmente satisfeitas. Quando a energia de interação entre os momentos magnéticos depende tanto do sinal da ligação quanto do ângulo formado entre eles, como é o caso da interação de troca, passam a existir duas configurações de equilíbrio para os momentos magnéticos, onde ambas minimizam a energia magnética dos quadrados (ver Figura 2.6(c) e (d)). Nota-se que uma destas configuração não pode ser obtida a partir da outra através de uma mesma rotação de todos os momentos e, portanto, elas devem ser distintas.

Diversos estudos experimentais sobre a fase tipo ferromagnética de vários sistemas reentrantes, utilizando técnicas como a visualização de estrutura de [60], o ruído Barkhausen [61], a susceptibilidade ac [16] ou espalhamento inelástico de neutrons [62] tem mostrado que a natureza desses sistemas apresenta diferenças marcantes com o arranjo colinear de spins típico de um ferromagneto clássico. Assim, é razoável considerar que as anomalias da fase intermediária dos sistemas reentrantes resultem da presença de frustração, a

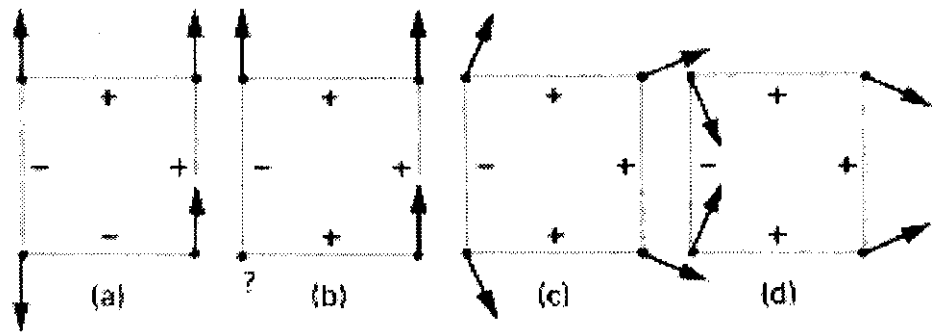


Fig. 2.6: Rede quadrada com ligações de sinais aleatórios para os vizinhos mais próximos. Ligações ferromagnéticas estão representadas por (+), ligações antiferromagnéticas por (-). (a) quadrado não frustrado. Nesta configuração podemos orientar os momentos de forma satisfazer todas as ligações. (b) quadrado frustrado. Neste caso, se os momentos forem orientados apenas para cima ou para baixo na página, é impossível satisfazer simultaneamente todas as ligações. (c) e (d) Configurações de equilíbrio de um quadrado frustrado onde os momentos podem se orientar em qualquer direção, característico das interações de troca.

qual aumenta a importância dos efeitos de desordem. Com isso, é interessante saber se a desordem acompanhada de frustração é relevante do ponto de vista da transição crítica para-ferromagnética nos sistemas reentrantes. Esta discussão será retomada mais adiante.

Capítulo 3

Técnicas Experimentais

Para a caracterização das propriedades físicas dos sistemas reentrantes estudados nesta tese utilizamos várias técnicas experimentais: resistividade elétrica em presença de baixos campos magnéticos; magnetização DC (“VSM” e “SQUID”); calor específico e susceptibilidade AC com diversas frequências. As medidas com as duas primeiras técnicas foram realizadas no Laboratório de Supercondutividade e Magnetismo do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, e as demais no Laboratório de Baixas Temperaturas do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio de Janeiro. Neste Capítulo, descrevemos os detalhes técnicos dos equipamentos utilizados e o procedimento de obtenção dos dados experimentais para cada técnica.

3.1 Resistividade Elétrica

O desenho básico do equipamento utilizado nas medidas de resistividade elétrica, consistindo de um criostato e a montagem eletrônica, bem como o procedimento de medida experimental, são descritos a seguir.

3.1.1 Criostato

O criostato é constituído por dois “dewars” concêntricos e está esquematizada na Fig 3.1. O “dewar” externo (4) é um recipiente de aço inox, com paredes duplas. O espaço entre as paredes é evacuado a 10^{-6} Torr. O “dewar” interno (5) é feito de vidro. No interior do “dewar” de vidro está colocado um anticriostato (6) de aço inox, conectado ao reservatório

de líquido criogênico por um capilar que permite a passagem deste até o porta-amostra (9). A parte inferior do anticriostato está envolta por um solenóide de fio de cobre, centrado em relação à amostra e que gera um campo magnético com valor máximo da ordem de 60 mT.

O porta-amostra é feito de cobre e nele estão acoplados um sensor térmico e um aquecedor. O conjunto é envolvido por uma câmara cilíndrica de cobre que tem a função de homogeneizar a temperatura. A temperatura da amostra durante a medida é controlada por um sensor de platina Rosemount embutido no porta-amostra, com resistência de $100\ \Omega$ em 273 K. Este sensor é calibrado para uso entre 70 e 300 K com precisão relativa de $1\ \text{m}\Omega$. O aquecedor consiste de um enrolamento compensado de Ni-Cr de $100\ \Omega/\text{m}$, que permite o ajuste controlado da temperatura do porta-amostra.

3.1.2 Montagem Eletrônica

As medidas de resistividade elétrica foram feitas através de uma técnica de corrente AC. Uma representação esquemática da montagem eletrônica do sistema está mostrada na Figura 3.2. O sinal de tensão na amostra é amplificado em 100 vezes por um transformador de baixo ruído e registrado na entrada “A” de um detector síncrono (“lock-in”) tipo SR830 da Standard Research Systems. A entrada “B” do detector síncrono registra o sinal de tensão correspondente a uma impedância ajustável através de uma década indutiva ESI modelo 73. O sinal de nulo é detectado pelo “lock-in” operando no modo A-B. Quando a temperatura da amostra varia, o sinal medido em “A” será proporcional à variação na resistência da amostra e, portanto, quando o sinal em “A” for igual àquele ajustado em “B”, o valor medido na década indutiva será proporcional à resistência da amostra. Nesse momento se registra o valor da década. Com este procedimento é possível determinar a resistência da amostra com uma resolução melhor que uma parte em 10^5 .

Como mencionado acima, a medida da temperatura é feita por um sensor de platina na faixa de 70 a 300 K. O sensor de platina opera com uma corrente constante de 1 mA, estabelecida por uma fonte de corrente cuja a precisão é da ordem de 1 nA. A leitura dessa corrente é monitorada por um multímetro Keitley 2001 de $7\ 1/2$ dígitos. A tensão sobre a resistência de platina é lida por um multímetro com as mesmas especificações do anterior.

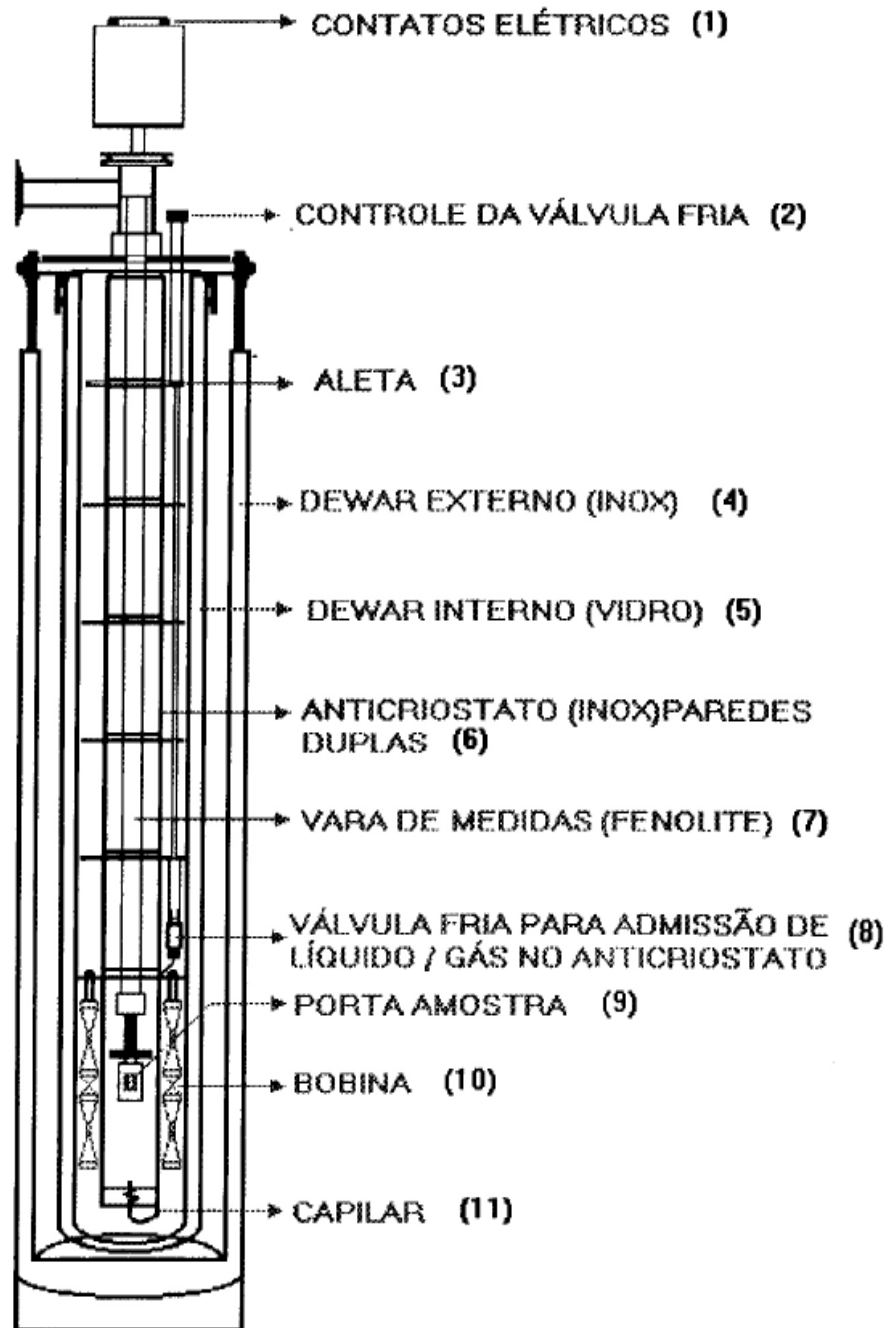


Fig. 3.1: Sistema criogênico com bobina de cobre para medidas de magnetotransporte em baixos campos.

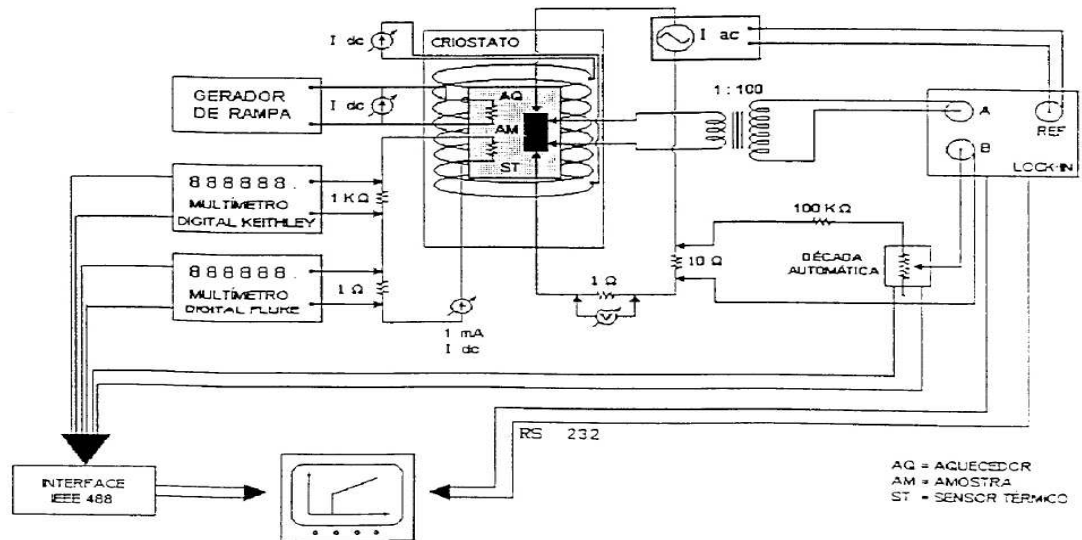


Fig. 3.2: Esquema de montagem eletrônica utilizada nas medidas de magnetotransporte.

No momento em que o “lock-in ” acusa o ponto zero, um computador dedicado, conectado ao sistema por uma interface IEEE-488, faz a leitura automática da temperatura e registra o valor da resistência da amostra em unidades arbitrárias da década indutiva. Os arquivos de dados resultantes contém duas colunas: uma fornece o valor da década, proporcional à resistência da amostra, e a outra fornece o valor da temperatura.

3.1.3 Procedimento de Medida

Tanto a forma geométrica das amostras como a implementação dos contactos elétricos apresentam requisitos específicos para a realização das medidas de resistividade elétrica. A amostra deve ter a forma de um paralelepípedo para facilitar a definição de suas dimensões geométricas, sendo os contatos elétricos fixos na forma de quatro pontas na superfície da amostra através de solda-ponto.

A Figura 3.3 mostra uma representação esquemática de uma amostra típica para as medidas de resistividade, com quatro pontas soldadas. Os dois contatos externos tem a função de permitir a entrada e saída da corrente elétrica, e os dois internos são usados para medir a variação de tensão através da amostra.

As medidas de resistividade elétrica são obtidas a partir dos valores registrados na década, dados em unidades arbitrárias, com o que é necessário estabelecer uma relação

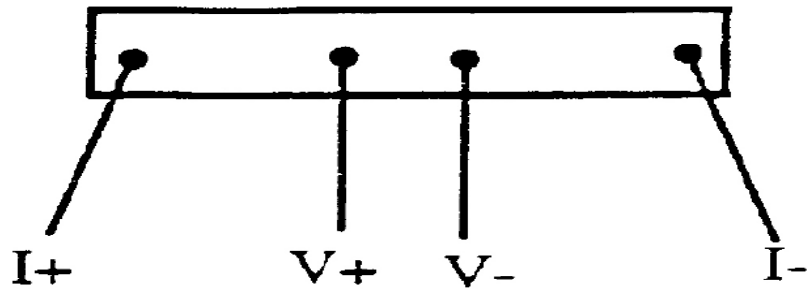


Fig. 3.3: Representação esquemática da configuração dos contatos elétricos numa amostra típica para medida de resistividade.

entre estas unidades e as unidades geométricas da quantidade desejada (a resistividade da amostra é expressa em $\mu\Omega\text{cm}$). Isso é feito calibrando-se a década pela comparação com o valor da resistência elétrica da amostra medida à temperatura ambiente. A resistividade elétrica ρ é obtida através da seguinte expressão, onde R é o valor medido na década já transformado para $\mu\Omega$:

$$\rho = \frac{R A}{100 L}. \quad (3.1)$$

Nesta expressão, A é a área da secção transversal da amostra, L é o comprimento do caminho elétrico entre os contatos de tensão, e o fator $1/100$ corresponde à amplificação do sinal da amostra pelo transformador de entrada.

Foram feitas medidas de resistividade elétrica nas amostras $\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x$ e $\text{Au}_{1-x}\text{Fe}_x$, com campo magnético nulo e com campo aplicado paralelo à corrente elétrica na faixa de 10 a 100 Oersted. Em todos os casos, a corrente elétrica aplicada nas amostras foi de 10 mA. Nas medidas com campo magnético aplicado, utilizamos o procedimento “field cooled” (FC), no qual amostra é resfriada desde temperaturas acima de T_c na presença do campo magnético.

É importante ressaltar que as medidas foram realizadas com uma taxa de variação de temperatura constante, sendo que nas proximidades da temperatura crítica essa taxa não excedia 5 K /hora. Dessa forma, os valores de resistividade elétrica podem ser determinados em intervalos de temperaturas menores que 0.02 K, o que facilita sua análise quando utilizamos procedimentos de derivação numérica.

3.2 Magnetização DC

As medidas de magnetização como função da temperatura foram realizadas inicialmente em um magnetômetro de amostra vibrante (“VSM”) com uma sensibilidade melhor que 10^{-4} emu e campo magnético máximo de 7.5 kOe, calibrado com um padrão de níquel de $25 \mu\text{V}/\text{emu}$. O uso de um criostato superisolado e com resfriamento por fluxo de hélio permite realizar medidas no intervalo 4.2 a 300 K.

Com a aquisição, pelo Laboratório de Resistividade do IF/UFRGS, de um magnetômetro de “SQUID” (Superconductor Quantum Interferometer Device System) modelo 2000 fabricado pela Quantum Design, esse sistema passou a ser utilizado para as medidas de magnetização, tanto como função da temperatura quanto em função do campo magnético aplicado em temperatura fixa. O princípio de operação do sistema está baseado em dois fenômenos associados à supercondutividade: a quantização do fluxo magnético em uma espira supercondutora e o efeito Josephson.

O “SQUID” apresenta uma resolução da ordem de 5×10^{-9} emu para campos magnéticos até um máximo de 50 kOe, permitindo medidas na faixa 1.9 a 350 K, com uma razão máxima de 10 K/minuto na taxa de variação de temperatura, a qual é medida com precisão de 0.01 K. O sistema de medidas do “SQUID” é totalmente automático, sendo o equipamento conectado a um computador através de uma placa IEEE-488, que permite uma programação individual dos parâmetros da medida para cada usuário.

O equipamento consiste basicamente de um sistema criogênico e uma parte eletrônica. O sistema criogênico é constituído de um criostato superisolado que envolve o magneto supercondutor, o sensor “SQUID”, o sistema de termometria e a vara de medidas.

A parte eletrônica do “SQUID” consiste em um controlador modelo 1822, um controlador de gás, e uma ponte R/G modelo 1802. O controlador modelo 1822 é responsável pelos mecanismos de translação e transporte da amostra. Além disso ele gerencia o acoplamento do aquecedor interno, a detecção do sinal do “SQUID”, a fonte de corrente para a bobina supercondutora, a chave de operação em modo persistente, a impedância para passagem de gás e o sensor de nível de hélio líquido. O controlador de gás comanda a chave de fluxo de gás e do aquecedor e a chave do fluxo de ar da bomba de vácuo. Por fim, a ponte R/G é responsável pelo controle do sensor de temperatura e aquecimento do

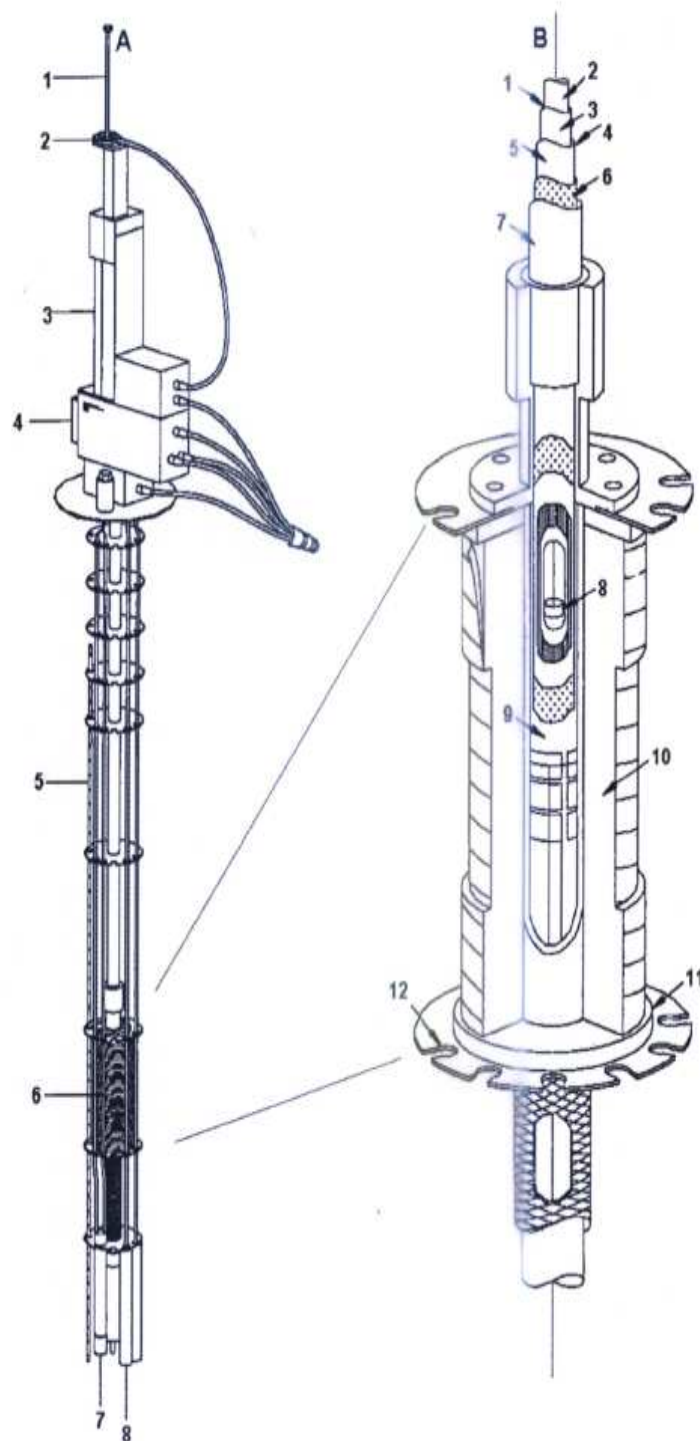


Fig. 3.4: Vara de medidas e estrutura do criotato com os componentes magnéticos. Na figura (A): 1-cana, 2-rotator da cana, 3-transporte da amostra, 4-sonda, 5-sensor de nível de hélio, 6-solenóide supercondutor, 7-impedância para o fluxo de He, 8-cápsula do SQUID. Na figura (B): 1-câmara da amostra, 2-compartimento da amostra, 3- folha térmica com aquecedor, 4-região de isolamento térmico, 5-parede de vácuo interno, 6-superisolamento, 7- parede de vácuo externo, 8- amostra, 9-parede interna da bobina supercondutora, 10- fio supercondutor multifilamentar, 11-parede externa da bobina, 12-culote.

gás.

O “SQUID” permite dois métodos para medidas do momento magnético, RSO (“Reciprocating Sample Option”) e DC. No método RSO a amostra se move senoidalmente nas proximidades da bobina de detecção durante a leitura dos dados, permitindo, através de um processador de sinais digital, que os dados sejam obtidos mais rapidamente. Além disso, o processador reduz o ruído de baixa frequência durante a medida, resultando em uma sensibilidade da ordem de 5×10^{-9} emu. O método DC usa o método de extração para a leitura dos dados. Neste método a aquisição de dados é mais lenta e com isso há possibilidade de ocorrer efeitos de gradientes térmicos.

As medidas de magnetização como função da temperatura no intervalo 10 a 150 K com campo magnético fixo, aqui apresentadas, foram realizadas através o método RSO, usando os procedimentos “zero field cooling” (ZFC) e “field cooling” (FC), descritos na Seção 1.2.1. Durante as medidas, a taxa de variação da temperatura foi de 0.1 K/h nas proximidades da temperatura crítica, visando eliminar os efeitos de gradientes térmicos.

Para as medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado no intervalo entre 10 e 500 Oe, mantivemos a temperatura fixa em diferentes valores próximos a T_c . Para a realização das medidas foi necessário uma modificação na forma geométrica das amostras, através de laminação e corte. As amostras para magnetização apresentam uma forma de disco ou de paralelepípedo em que uma das dimensões é muito menor do que as demais. Este procedimento visa minimizar evitar os efeitos do fator desmagnetizante. As amostras foram colocadas no porta-amostra com a dimensão mais longa paralela ao campo magnético aplicado.

3.3 Calor Específico

As medidas de calor específico foram feitas na faixa de 4.2 a 300 K utilizando-se um calorímetro que opera segundo um método adiabático, o qual permite prever o grau de isolamento térmico e calcular a transferência de calor que pode existir entre a amostra e a blindagem.

O sistema criogênico (ver Figura 3.5(a)) é constituído de um criostato comercial

marca JANIS, o qual contém um “dewar” que armazena e conduz o hélio líquido do reservatório principal ao anticriostato onde se encontra o calorímetro. O “dewar” e o anticriostato estão conectados por um capilar comandado por uma válvula fria. O anticriostato tem em sua parte inferior um sensor de temperatura e um aquecedor, os quais controlam a temperatura do fluxo de gás que entra no recipiente interno. O porta-amostra é constituído por duas plaquetas de alumina, uma das quais funciona como aquecedor e serve de base para a amostra. A segunda contém o sensor de platina, com o qual é feita a leitura da temperatura.

A aquisição de dados é totalmente automatizada e dividida em três circuitos independentes. O primeiro controla a medida da temperatura do calorímetro, o segundo é responsável pela medida da temperatura da amostra e o terceiro pela medida da potência fornecida.

Inicialmente temos que obter um isolamento térmico entre a blindagem e a amostra, desta forma podemos utilizar o método adiabático para obtenção dos dados. Então uma dada potência é aplicada durante um intervalo de tempo suficientemente curto em relação ao tempo de relaxação. Assim a medição é feita diretamente a partir da definição termodinâmica de capacidade térmica:

$$C(T) = \frac{\Delta Q}{\Delta T} \quad (3.2)$$

onde ΔT é a variação de temperatura resultante da quantidade de calor ΔQ fornecida e T é a temperatura média no intervalo ΔT . Para obtermos o valor do calor específico basta dividir a capacidade térmica medida pela massa ou o número de moles da amostra. Para obtermos ΔT medimos as temperaturas inicial e final da amostra por meio de uma extrapolação das retas anterior e posterior à aplicação do pulso de calor e da intersecção das mesmas com uma reta vertical passando por um tempo médio. O tempo médio é definido como sendo o ponto médio do intervalo de aquecimento. Caso a taxa de variação de temperatura em função do tempo não for a mesma antes e depois do pulso de calor, será necessário a utilização do método da lei de áreas.

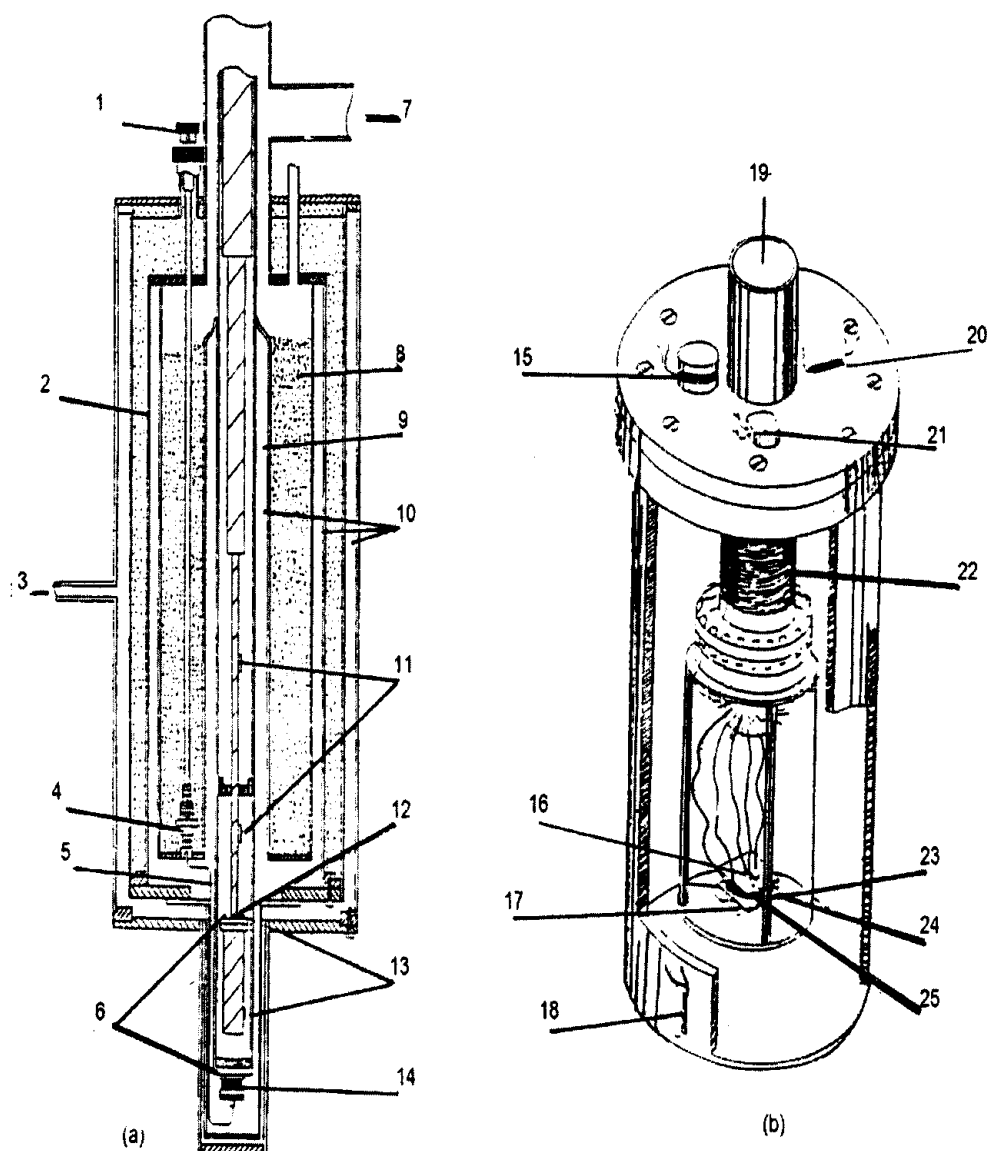


Fig. 3.5: Representação esquemática do calorímetro. Na figura (a) é mostrado o criostato: 1-acionador da micro-válvula, 2-nitrogênio líquido, 3-vácuo, 4-micro-válvula, 5-tubo capilar, 6-diodo de silício, 7-recuperação de hélio, 8-hélio líquido, 9- anti-dewar, 10-vácuo, 11-sensores de carvão, 12-aquecedor 1, 13-sensores de carvão, 14-aquecedor 2. Na figura (b) é mostrado Porta amostra e blindagem térmica: 15-aquecedor, 16-sensor de carvão próximo a amostra, 17-aquecedor, 18-sensor de carvão na parte inferior da blindagem , 19-vácuo, 20-sensor de carvão na parte superior da blindagem, 21-diodo de silício, 22- ancoramento térmico dos fios, 23-fios de nylon, 24-plaqueta de alumina, 25-amostra.

3.4 Susceptibilidade AC

As medidas foram feitas no susceptômetro AC de uma plataforma “Physical Properties Measuring System” PPMS modelo 6000, fabricado pela Quantum Design.

O susceptômetro do PPMS apresenta uma resolução da ordem de 10^{-7} emu e o campo magnético DC é aplicado paralelamente ao eixo das bobinas e pode atingir um máximo de 9 Teslas. A frequência nas medidas de susceptibilidade AC pode ser variada no intervalo de 10 a 10.000 Hz e a faixa de temperatura permitida é de 2 a 400 K, com uma variação máxima de temperatura de 20 K/min. A montagem criogênica é formada por criostato superisolado que envolve um sensor, o sistema de termometria e a vara de medidas. Este sensor é formado basicamente por duas bobinas dispostas coaxialmente. A bobina interior compõe o secundário, o qual é envolto pela bobina primária. Esta última é alimentada por uma corrente alternada, produzindo um campo magnético alternado. A bobina do secundário é constituída por dois enrolamentos em oposição de fase. A forma de enrolamento do secundário assegura que, na ausência de amostra, a indutância mútua primário-secundário é aproximadamente nula. Assim, quando a amostra é introduzida no interior da bobina do secundário a indutância mútua entre primário e secundário altera-se, fazendo com que o sinal do secundário também varie.

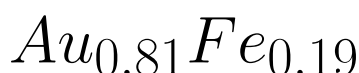
Como o sinal do secundário é proporcional à variação da indutância mútua do arranjo de bobinas, ele também será diretamente proporcional à susceptibilidade magnética da amostra. O método de medida é o de extração, que consiste no deslocamento da amostra ao longo do eixo da bobina e na integração da tensão induzida correspondente ao deslocamento. A montagem eletrônica é similar à do “SQUID”.

Com esse equipamento mede-se a susceptibilidade magnética total, sendo portanto possível obter tanto a parte real quanto parte imaginária da susceptibilidade. Para tanto, o PPMS faz um ajuste automático de duas referências padrão, uma para a amplitude em fase com o sinal do primário (o qual fornece a parte real), e a outra fornece o sinal da parte imaginária.

Obtivemos medidas de susceptibilidade AC como função da temperatura com frequências no intervalo de 100 a 6000 Hz e amplitude de campo AC variando entre 1 Oe e 10 Oe

Capítulo 4

Sistema Magnético Reentrante



Neste capítulo descreveremos a preparação de uma liga reentrante de Au-Fe e discutiremos seu comportamento crítico nas vizinhanças da transição para-ferromagnética, o qual é estudado através das técnicas experimentais de magnetização, susceptibilidade AC, resistividade elétrica e calor específico, descritas nos capítulos anteriores.

4.1 Preparação das Amostras

A preparação da liga de Au-Fe subdivide-se em três etapas. Primeiramente as quantidades necessárias de Au e Fe foram pesadas com uma precisão melhor que 10^{-4} g. Ambos os metais utilizados, fornecidos pela Johnson Matthey, apresentam um grau de pureza melhor que 99.98%. Em seguida, a liga foi fundida em um forno a arco, em atmosfera de argônio puro. A fusão foi repetida várias vezes para assegurar a homogeneidade da amostra. A massa total da amostra é da ordem de 1.5g e foi pesada para o controle da estequiometria da liga uma vez completado o processo de fusão, indicando uma perda da ordem de 0.1%. A estequiometria resultante é praticamente coincidente com a nominal e a liga obtida pode ser representada como $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ (ou Au-Fe 19 at%). Finalmente, a liga passou por um processo de laminação e corte a frio. Para cada técnica de medida utilizamos corpos de prova, com forma geométrica adequada. Para tanto dividimos a amostra em três formas distintas. Para as medidas de magnetização e susceptibilidade AC temos um disco com o diâmetro 4.3mm, e espessura 0.22mm. Para as medidas de resistividade temos

um paralelepípedo com as seguintes dimensões: comprimento 0.95mm, largura 0.38mm, espessura 0.48mm. Finalmente para as medidas de calor específico temos uma secção de forma aproximada a um elipsoíde, com massa de 867.85mg. O comportamento reentrante apresentado por esta liga é intrínseco ao estado quimicamente desordenado. No entanto, para assegurar o desaparecimento total de fases ordenadas é necessário realizar um tratamento térmico. Para tanto, as amostras preparadas para as medidas foram colocadas em uma cápsula de quartzo e seladas em vácuo. Em seguida a cápsula foi colocada num forno de resistência em temperatura controlada de 950°C, durante 24 horas. Posteriormente foi realizado um resfriamento rápido, mergulhando e quebrando a cápsula em um recipiente com água e gelo. Após o tratamento térmico, as amostras passaram por um processo de limpeza com água régia (HCl 33%).

4.2 Magnetização

As medidas de magnetização foram realizadas com o magnetômetro de SQUID, já descrito anteriormente, operando no modo RSO. Foram obtidas medidas de magnetização como função da temperatura com campo magnético constante, e de magnetização como função do campo magnético com a temperatura constante. A transição magnética da liga Au-Fe foi medida como função da temperatura, para intensidades de campo magnético aplicado variando entre 10 e 500 Oe, através dos procedimentos ZFC e FC. A Figura 4.1 apresenta a magnetização como função da temperatura para o Au-Fe 19at% num campo magnético aplicado de 30 Oe. A resposta magnética manifesta o surgimento de magnetização espontânea. A temperatura da transição ferro-paramagnética é aproximadamente $T_c \simeq 172$ K. Abaixo de T_c , a magnetização cresce até atingir um valor aproximadamente constante, o qual corresponde à limitação imposta pelo campo desmagnetizante.

A Figura 4.1 também permite notar que abaixo da temperatura de congelamento, $T_g = 158$ K, o sistema entra em uma fase do tipo vidro de spin, na qual as irreversibilidades ZFC-FC tornam-se perceptíveis. Este comportamento é geralmente descrito dizendo-se que o sistema “reentra” para uma fase magneticamente desordenada. Para temperaturas inferiores a T_g ocorre o congelamento dos spins em direções aleatórias, o qual é causado

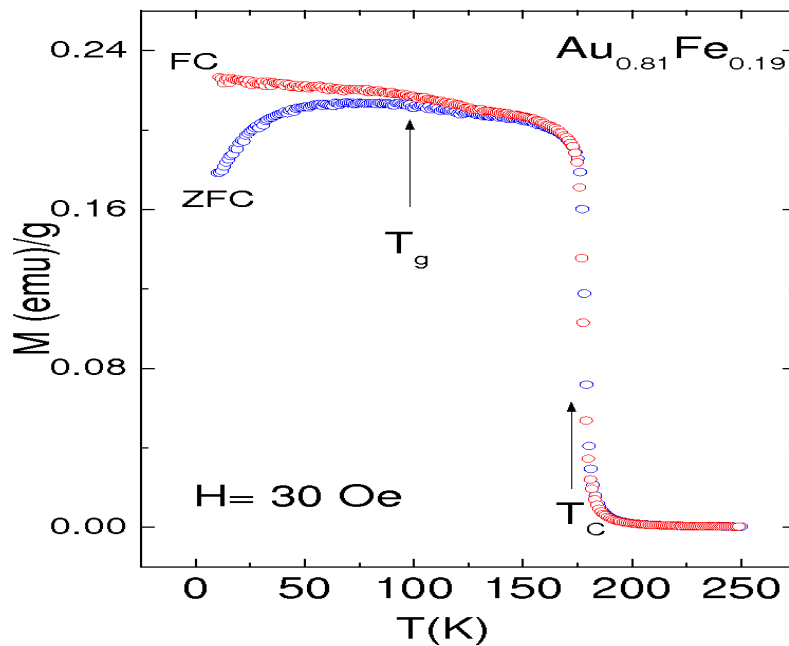


Fig. 4.1: Magnetização como função da temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ medida através dos procedimentos ZFC e FC.

pela frustração gerada pela competição entre as interações spin-spin do tipo ferromagnética e antiferromagnética e pela desordem atômica.

A Figura 4.2 mostra algumas das curvas experimentais de magnetização em função do campo magnético aplicado no intervalo 0-500 Oe, em temperaturas constantes. Inicialmente a amostra é resfriada na ausência de campo magnético até a temperatura desejada. O sistema é então mantido em temperatura constante e o campo magnético é variado entre 0 e 500 Oe. Uma vez completada a medida, a amostra é aquecida até a temperatura ambiente para apagar sua memória magnética, e o procedimento é repetido. Essa técnica permite a obtenção de informações relevantes como a magnetização de saturação e o fator desmagnetizante. É importante notar que as medidas mostradas na Figura 4.2 são realizadas em temperaturas onde não ocorrem irreversibilidades ZFC-FC.

4.3 Fator Desmagnetizante

Quando se aplica um campo magnético externo a um sistema magnético ocorre o efeito de geração de energia magnetostática pelo surgimento de um campo magnético devido a

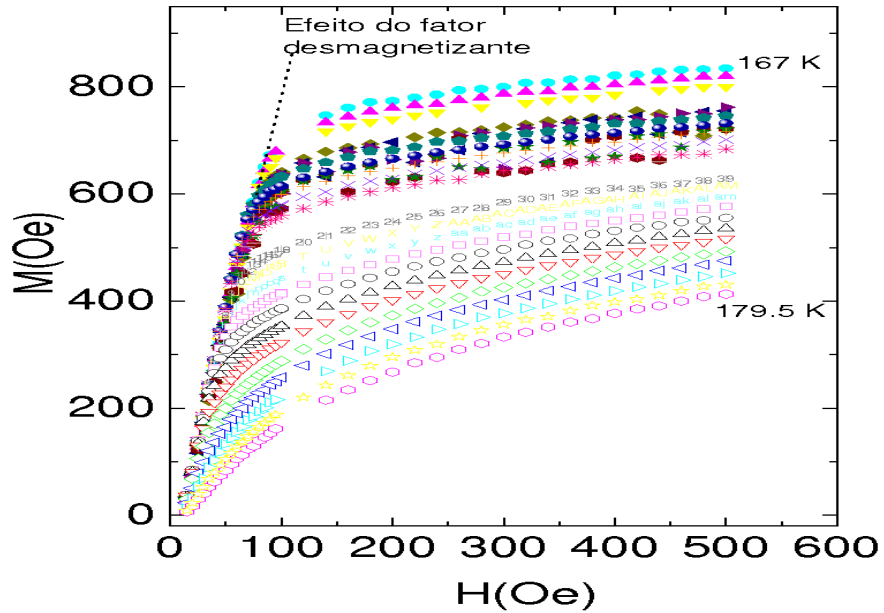


Fig. 4.2: Magnetização como função do campo magnético aplicado para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ em diferentes temperaturas.

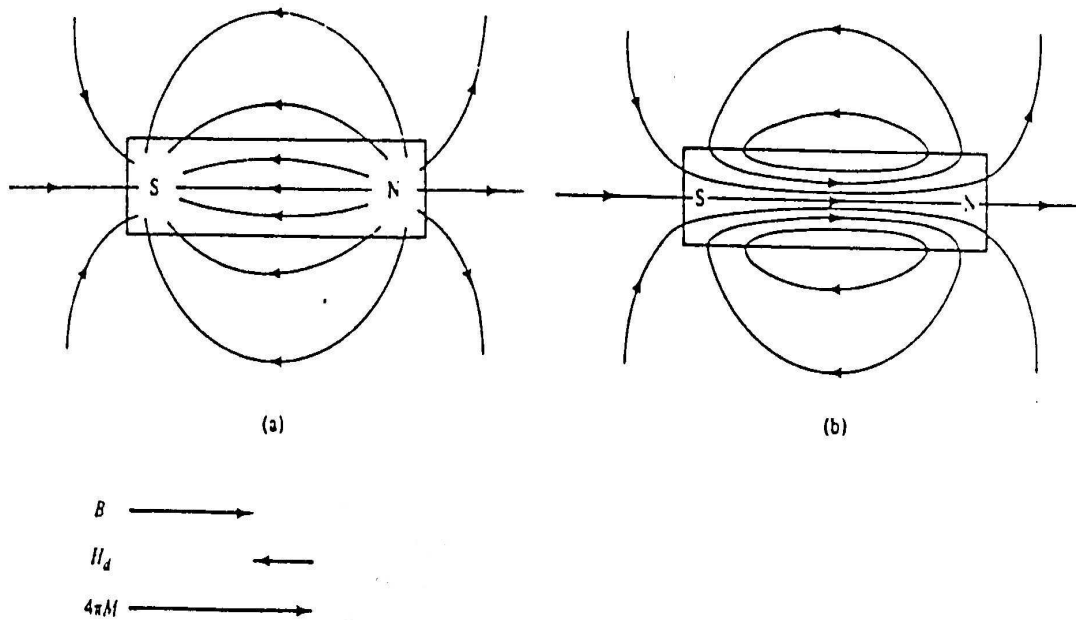


Fig. 4.3: (a) As linhas de campo magnético H e campo desmagnetizante H_d ; (b) linhas de indução $B = -H_d + 4\pi M$.

formação de pólos magnéticos em superfícies opostas da amostra. No interior da amostra, estes pólos geram um campo magnético antiparalelo à magnetização, o qual é chamado de campo desmagnetizante (ver Figura 4.3). O campo desmagnetizante H_d depende somente da magnetização e da geometria da amostra, na forma

$$H_d = \eta M \quad (4.1)$$

onde η é o fator desmagnetizante e M é a magnetização. O cálculo do fator desmagnetizante para algumas geometrias de amostra foram feitos por Stoner[67], Osborn [68] e Bozort [69], como veremos a seguir. Por exemplo, no caso de uma amostra esférica, $\eta = 4\pi/3$.

Para o cálculo do fator desmagnetizante levamos apenas em consideração a forma geométrica da amostra e partimos da definição do potencial interno em um ponto de um do elipsóide de densidade uniforme. O potencial pode ser expresso em função dos semi-eixos da amostra (a,b,c), orientados segundo os eixos x, y, e z , respectivamente [67]:

$$V = \pi abc \int_0^\infty \left\{ 1 - \frac{x^2}{a^2 + s} - \frac{y^2}{b^2 + s} - \frac{z^2}{c^2 + s} \right\} + \frac{ds}{(a^2 + s)^{1/2}(b^2 - s)^{1/2}(c^2 + s)^{1/2}}. \quad (4.2)$$

Da equação 4.2 podemos então calcular a componente x do campo desmagnetizante

$$H_x = \frac{\partial^2 V}{\partial x^2} = -2\pi abc M_x \int_0^\infty \frac{ds}{(a^2 + s)^{3/2}(b^2 - s)^{1/2}(c^2 + s)^{1/2}}. \quad (4.3)$$

Através da análises similares podemos encontrar H_y e H_z . O fator demagnetizante, definido na equação 4.1, é dado por:

$$N_\nu = \frac{abc}{2} \int_0^\infty \frac{ds}{(\nu + s)R_s} \quad (4.4)$$

onde $\nu = a, b, c$ e $R_s = (a^2 + s)^{1/2}(b^2 - s)^{1/2}(c^2 + s)^{1/2}$. A equação 4.4 é a expressão geral para o fator desmagnetizante(N) de um elipsóide.

Na Figura 4.4 podemos observar as formas geométricas dos elipsóides geral, prolato,

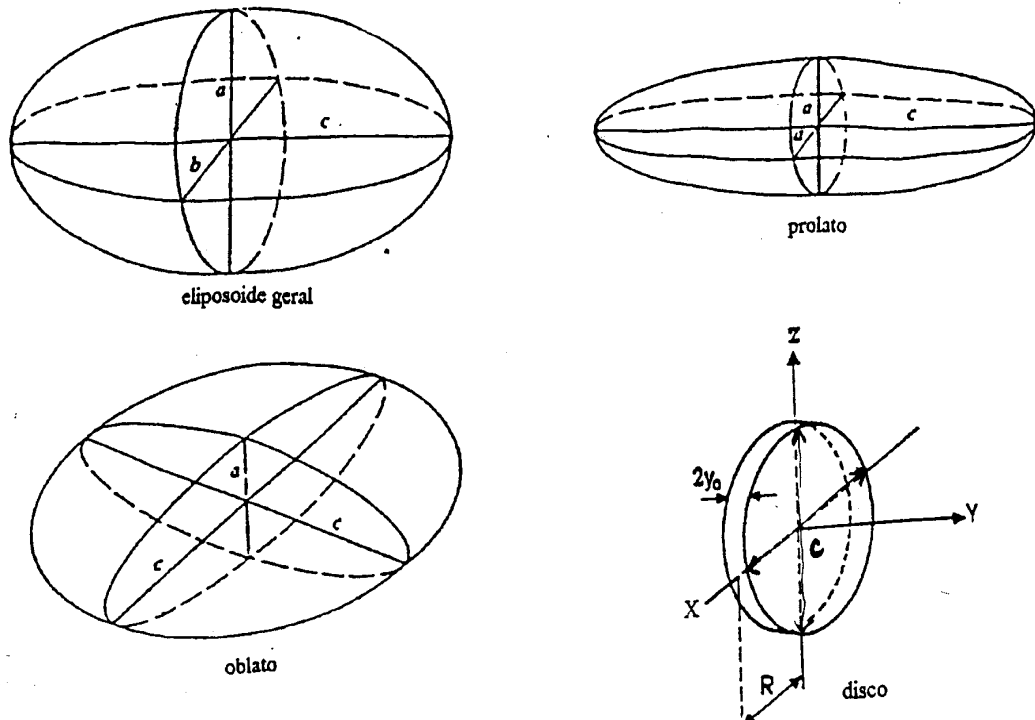


Fig. 4.4: Algumas formas geométricas de amostra utilizadas para o cálculo do fator desmagnetizante, sendo elas elipsóide geral, prolato, oblato e disco. [71]

oblato e um disco. Podemos agora expressar para cada uma destas formas geométrica a equação da fator desmagnetizante.

Elipsoide Geral

Através da equação 4.4, e considerando que os semi-eixos obedecem à condição $a \gg b \geq c$, o fator desmagnetizante para a situação em que a magnetização é orientada ao longo do eixo a é dado por [68]:

$$\frac{N_a}{4\pi} = \frac{bc}{a^2} \left[\ln\left(\frac{4a}{(b+c)}\right) - 1 \right]. \quad (4.5)$$

Esferoide Oblato

Para este caso supõe-se na equação 4.4 $c > a$ e que magnetização é orientada ao longo do eixo c . Então, o fator desmagnetizante passa a ser dado por [69]

$$\frac{N_c}{4\pi} = \frac{1}{2} \left[\frac{m^2}{m^2 - 1^{3/2}} \arcsen\left(\frac{\sqrt{m^2 - 1}}{m}\right) - \frac{1}{m^2 - 1} \right] \quad (4.6)$$

$m = \frac{c}{a}$	disco	elipsoide prolato	elipsoide oblato
0	1.0	1.0	1.0
1	0.27	0.3333	0.3333
2	0.14	0.1735	.0.2364
5	0.040	0.0558	0.1248
10	0.0172	0.203	0.0696
20	0.00617	0.00675	0.0369
50	0.00129	0.00144	0.1532
100	0.00036	0.000430	0.00776
200	0.000090	0.000125	0.00390
500	0.000014	0.0000236	0.001567
1000	0.0000036	0.0000066	0.000784
2000	0.0000009	0.0000059	0.000392

Tab. 4.1: Fator desmagnetizante, $\frac{N_c}{4\pi}$ para disco e elipsóides magnetizados ao longo do eixo maior [69].

onde $m = c/a$.

Esferoide prolato

Com a mesma análise do caso anterior considerando apenas que $a = b \neq c$ e que a magnetização é orientada ao longo do eixo c , encontramos que [69]

$$\frac{N_c}{4\pi} = \frac{1}{m^2 - 1} \left[\frac{m}{\sqrt{m^2 - 1}} \ln(m + \sqrt{m^2 - 1}) - 1 \right] \quad (4.7)$$

Disco

Neste caso considerando que a permeabilidade(μ) da amostra é infinita, o disco magnetizado ao longo do eixo maior possui um fator desmagnetizante expresso por [70]

$$\left(\frac{N_c}{4\pi} \right)_{\mu=\infty} = \frac{(4.02 \log_{10} m - 0.92)}{2m^2} \quad (m \geq 10) \quad (4.8)$$

sendo $m = c/a$, e c é o raio R e a é a espessura $2y_0$ como está representado na figura 4.4.

Através da Figura 4.5 e da tabela 4.1 podemos obter os valores para o fator desmagnetizante de amostras com diversas formas geométricas.

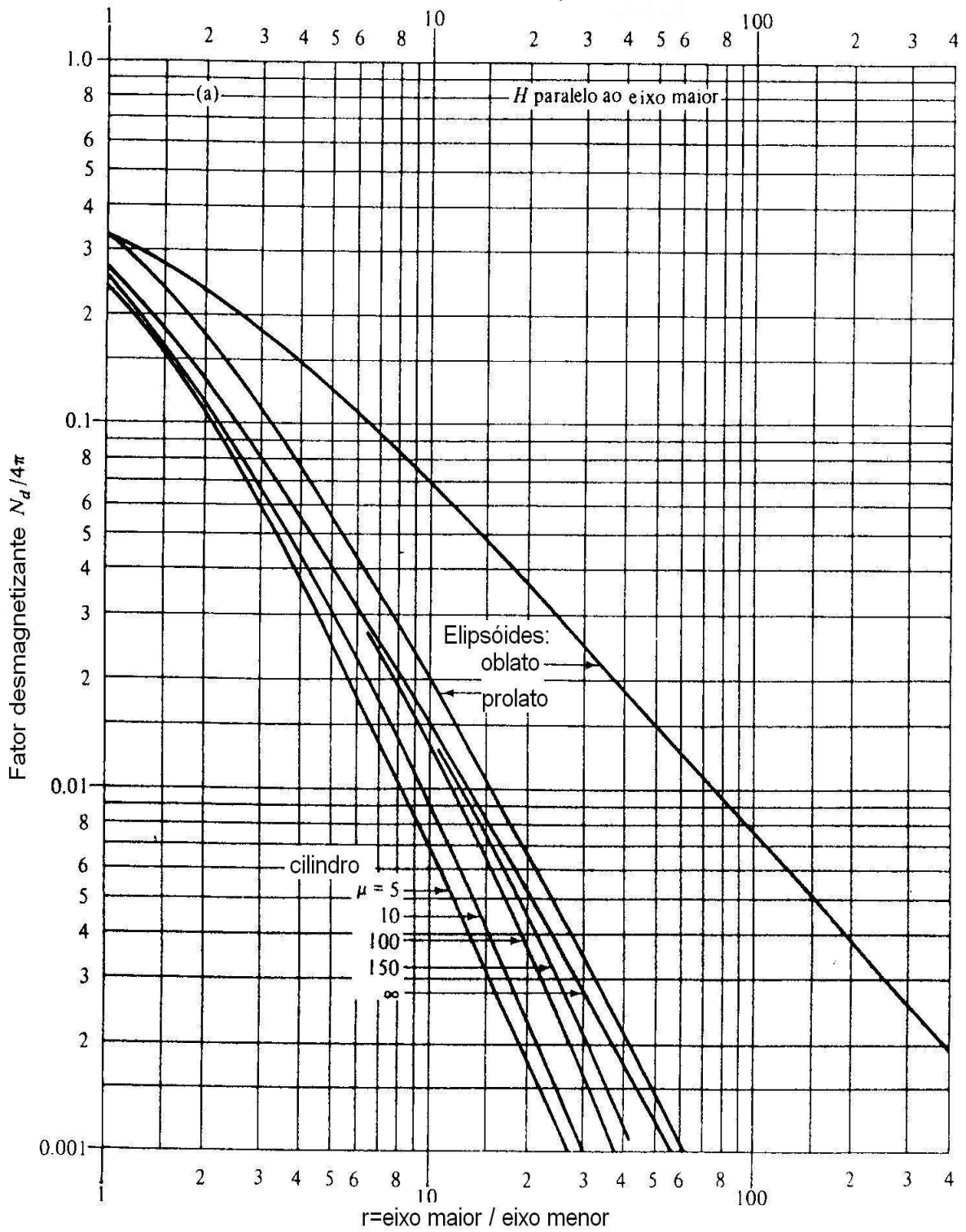


Fig. 4.5: Fatores desmagnetizantes para elipsóides prolato, oblato e para cilindros com permeabilidade (μ) assumindo valores entre 5 e ∞ . O campo magnético é aplicado paralelamente ao eixo maior da amostra [69].

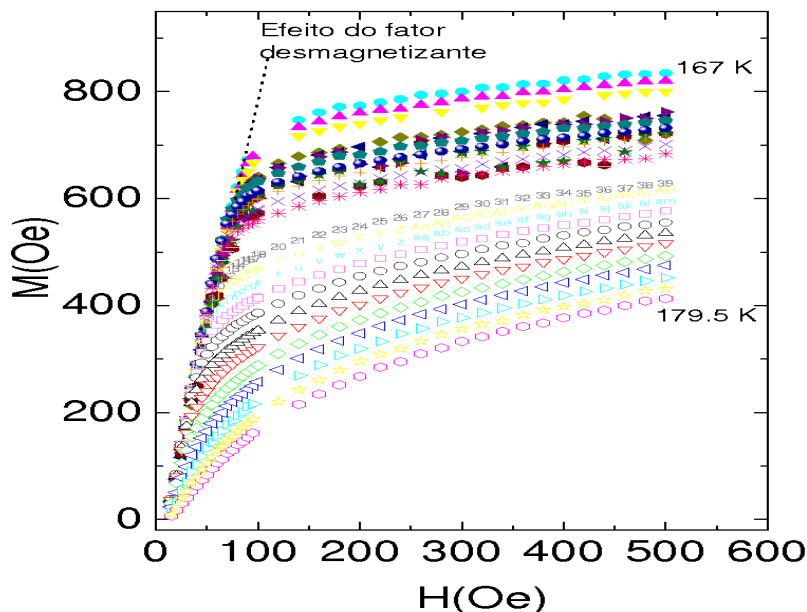
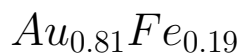


Fig. 4.6: Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado a temperatura constante para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. A reta pontilhada representa de um ajuste linear do tipo $M=aH+b$.

4.4 Fator desmagnetizante para a amostra de



A nossa amostra tem a forma geométrica aproximada de um disco ($b=c \gg a$, sendo $b=c=2.15\text{mm}$ e $a=0.22\text{mm}$). Portanto, $m=19.95 \simeq 20$. O fator desmagnetizante, para uma situação em que a magnetização é orientada ao longo do eixo c , pode ser obtido diferentemente da equação 4.8 (para $m=20$), ou através da tabela 4.1. Assim, encontramos $\eta = 0.00617$. Ressaltamos aqui que este fator leva em consideração somente a forma geométrica da amostra.

Outro procedimento de obtenção do valor de η pode ser realizado experimentalmente [73]. Para isto mede-se a dependência da magnetização com o campo magnético aplicado orientado ao longo do eixo c em temperatura constante. A partir dessas medidas efetuamos, para baixos valores de campo aplicado, um ajuste linear do tipo $M = aH + b$ que pode ser observado na figura 4.6. Desta análise [73] obtemos o valor de $\eta_c=0.0060$, que será o fator desmagnetizante na direção do campo magnético aplicado. Por tratar-se de um

procedimento experimental levaremos em consideração este resultado em nossas análises subsequentes.

O efeito desmagnetizante nos leva a corrigir o valor do campo magnético aplicado. Na verdade no interior da amostra teremos as ações do campo magnético aplicado e o do campo desmagnetizante. Assim a amostra é efetivamente submetida a um campo dado por

$$H = H_a - H_d = H_a - \eta M. \quad (4.9)$$

4.5 Resistividade Elétrica e Magnetoresistência

Uma medida de resistividade elétrica $\rho(T)$ como função da temperatura em campo magnético aplicado para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ é mostrada na Figura 4.7(a). É interessante notar que a resistividade cresce com a temperatura. Porém, nitidamente verifica-se uma inflexão na curva em $T \cong T_c$, a qual caracteriza a transição de fase ferro-paramagnética.

Um procedimento simples de análise da resistividade, que permite obter informações interessantes sobre a transição ferro-paramagnética, utiliza a derivada da curva experimental $\rho(T)$ em relação à temperatura. Na Figura 4.8 é apresentada a derivada da resistividade em relação à temperatura em função desta última, sem a aplicação de campo magnético. Detectamos um comportamento linear crescente até a temperatura de 179 K. Acima desta temperatura, $d\rho/dT$ passa a mostrar uma relação inversa com a temperatura. Essa mudança de comportamento deve-se à ocorrência da transição de fase ferro-paramagnética, e o máximo, indica aproximadamente a posição da temperatura de Curie.

4.6 Susceptibilidade AC

Foram feitas medidas detalhadas de susceptibilidade AC como função da temperatura na faixa de frequências entre 100 e 6000 Hz, determinando-se as componentes real e imaginária.

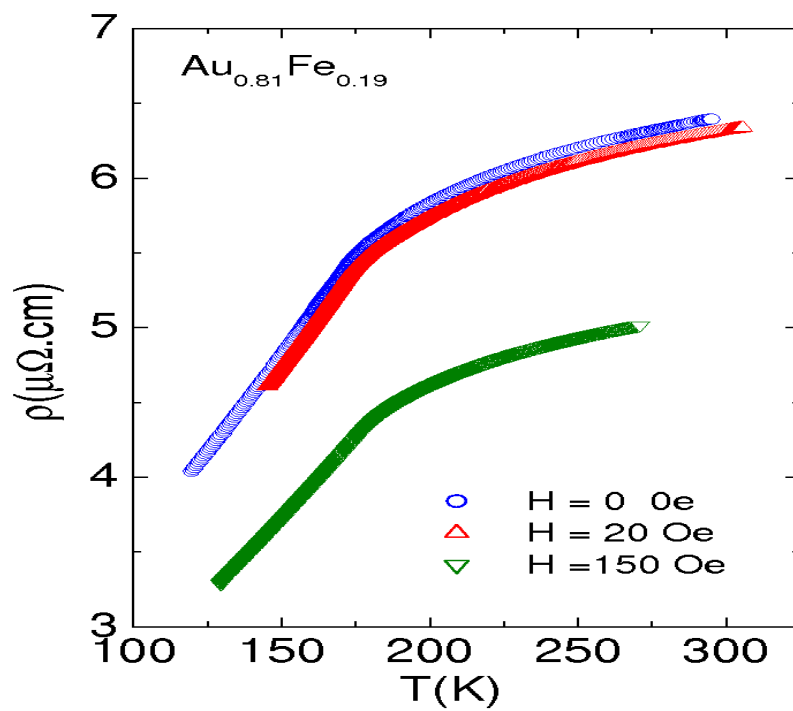


Fig. 4.7: Medida de resistividade elétrica em função da temperatura para a amostra de $\text{Au}_{0.81}\text{Fe}_{0.19}$

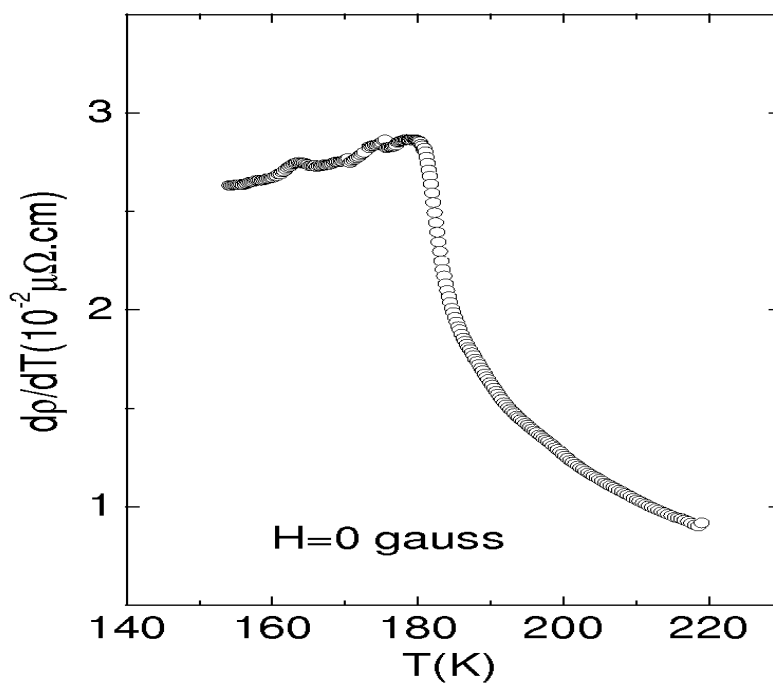


Fig. 4.8: Derivada da resistividade em relação à temperatura para a amostra de $\text{Au}_{0.81}\text{Fe}_{0.19}$.

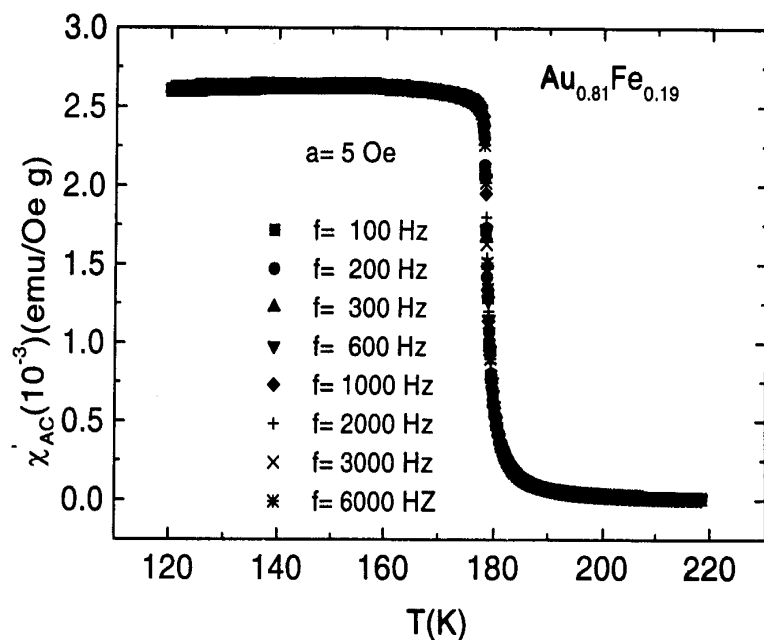


Fig. 4.9: Componente real da susceptibilidade AC da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ como função da temperatura em diversas frequências.

Como podemos ver na Figura 4.9, a componente real da susceptibilidade AC (χ') apresenta um comportamento aproximadamente constante, tanto como função da temperatura quanto da frequência, na faixa de temperaturas entre 0 a 170 K. Este comportamento caracteriza o estado ordenado ferromagneticamente. Para temperaturas superiores a 180 K (χ') mostra um comportamento típico de um sistema paramagnético. A transição magnética é bem definida e ocorre nas proximidades de 180 K.

Na Figura 4.10 apresentamos a componente imaginária da susceptibilidade (χ'') como função da temperatura para diversas frequências. A presença de um máximo nas proximidades de 45 K evidencia a existência de uma transição do tipo vidro de spin. Acima desta temperatura, χ'' diminui monotonicamente até a transição ferro-paramagnética a qual é identificada pelo pequeno salto em torno de 180 K.

É interessante notar que ambas as componentes (real e imaginária) da susceptibilidade não apresentam dependência relevante com a frequência de medida.

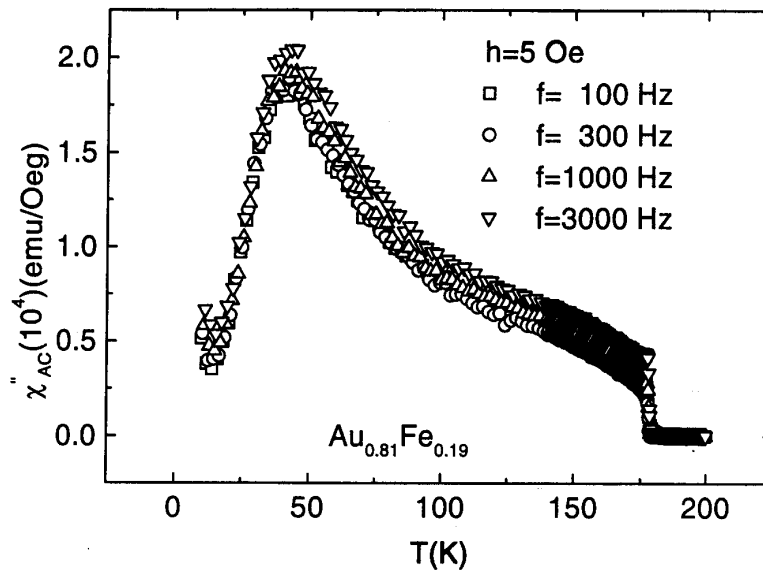


Fig. 4.10: Componente imaginária da susceptibilidade AC da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ como função da temperatura em diversas frequências.

4.7 Calor Específico

As medidas de calor específico foram realizadas na faixa de temperaturas entre 10 K e 240 K, e são apresentadas na Figura 4.11. Nossas medidas não acusam a presença de nenhuma anomalia no comportamento do calor específico que caracterize uma transição de fase em $T_c \cong 180$ K, em aparente contradição com os resultados de magnetização e susceptibilidade de transporte.

A derivada do calor específico em relação à temperatura, que se pode ver na Figura 4.12, também não mostra descontinuidades ou mudança de comportamento nas vizinhanças da transição ferro-paramagnética.

4.8 Determinação Experimental dos Expoentes

Críticos

Existem dois métodos que são mais comumente empregados para a determinação dos expoentes críticos em uma transição magnética. O primeiro supõe de forma explícita a hipótese de scaling e se baseia em uma equação de estado magnética que pode ser escrita

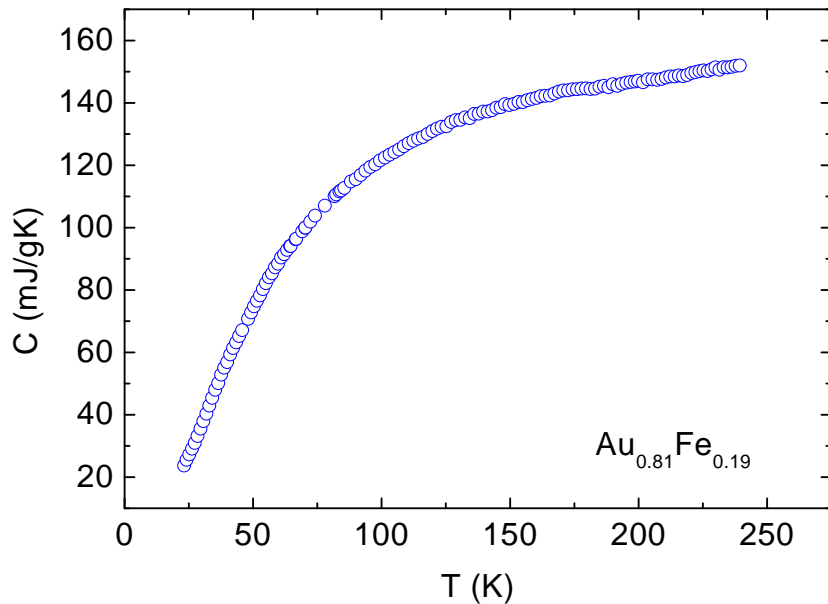


Fig. 4.11: Calor específico como função da temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.

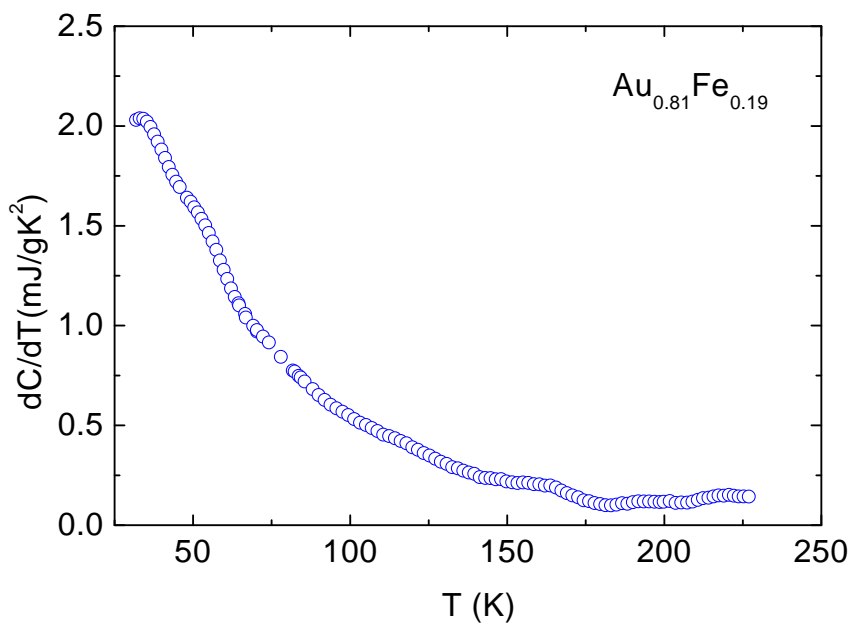


Fig. 4.12: Derivada do calor específico em relação à temperatura para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.

de diferentes formas [59]. O outro método faz o uso das leis de potência expressas nas equações 2.6 e 2.7 e é conhecido como método de Kouvel-Fisher [72].

A teoria de scaling permite obter uma equação de estado em termos da magnetização $M(H, t)$ que possui a forma

$$\frac{M(H, t)}{|t|^\beta} = M\left(\frac{H}{|t|^{\beta\delta}}; \pm 1\right), \quad (4.10)$$

onde $t = (T - T_C)/T_C$ e o termo ± 1 se refere aos valores de temperatura acima (+) e abaixo (-) de T_C , os índices β , γ e δ são os expoentes críticos definidos no capítulo 2. Definindo as variáveis $m = |t|^{-\beta} M(H, t)$ e $h = |t|^{-\beta\delta} H$, a equação 4.10 pode ser escrita na forma

$$m = F_\pm(h), \quad (4.11)$$

onde F_\pm são chamadas de funções de escala.

A relação 4.11 mostra que a magnetização reduzida m , quando representada em função do campo escalonado h , é descrita por curvas universais F_+ e F_- nas regiões de temperatura superior e inferior a T_C , respectivamente. Assim, o método da equação de estado implica numa escolha dos parâmetros T_C , β e δ tais que as isotermas experimentais $M(H)$, medidas nas proximidades da transição, colapsem em duas curvas universais quando representadas na forma dada pela equação 4.11.

4.8.1 Análise com o Método de Arrot-Noakes

Uma variante muito usada do método da equação de estado constitui-se na proposta de Arrot-Noakes [73]. Esses autores propuseram escrever a equação de estado magnética na forma:

$$(H/M)^{1/\gamma} = at + bM^{1/\beta}, \quad (4.12)$$

onde a e b são constantes dependentes do material analisado. Mediante a escolha adequada dos parâmetros T_C , β e γ , um gráfico das medidas experimentais de $M(H, T)$ na forma

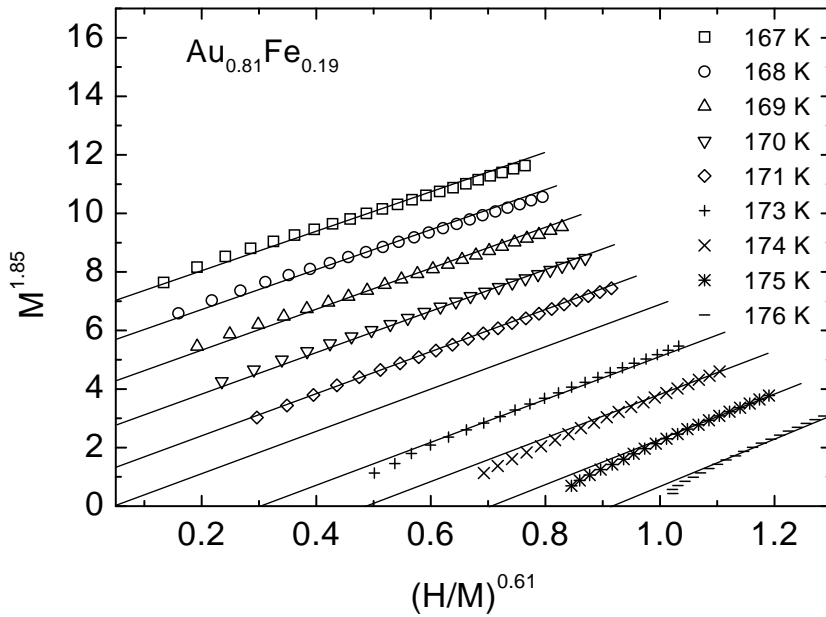


Fig. 4.13: Ajuste de Arrot-Noakes para liga de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados entre 100 a 500 Oe, correspondente ao primeiro conjunto de medidas realizado.

descrita pela equação 4.12 resulta em um conjunto de isotermas na forma de retas paralelas. A isoterma que passa pela origem ($t = 0$) corresponde à temperatura crítica.

Na Figura 4.13 mostramos o gráfico de Arrot-Noakes correspondente a um estudo preliminar para a liga Au-Fe nas proximidades da temperatura de transição para-ferromagnética e para campos magnéticos aplicados entre 100 e 500 Oe. As retas paralelas são obtidas para valores dos expoentes críticos dados por $\beta=0.54$ e $\gamma=1.64$. A isoterma que passa pela origem (não medida) corresponde à temperatura crítica aproximada de 172 K.

Esta mesma experiência foi repetida após um ano, cobrindo com maior detalhe a região de temperaturas próximas à temperatura de transição. Esta experiência está representada na Figura 4.14. Os valores dos expoentes críticos β e γ não sofreram alterações. No entanto, a isoterma crítica, que passa pela origem, corresponde agora a uma temperatura de 177.5 K. Este aumento na temperatura crítica do $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ deve-se ao recozimento prolongado (durante um ano) da amostra em temperatura ambiente. Este fato mostra que a liga não se encontra em um estado de perfeito equilíbrio termodinâmico.

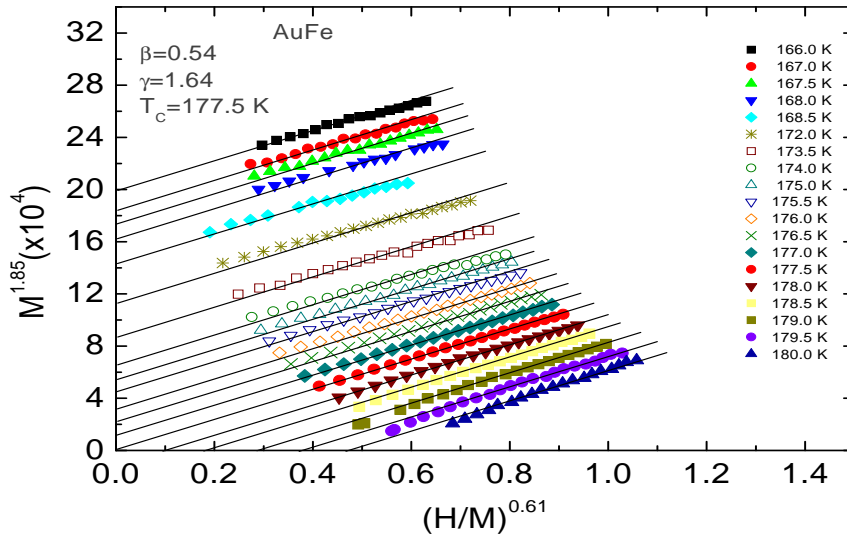


Fig. 4.14: Ajuste de Arrot-Noakes para amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados entre 100 a 500 Oe. As experiências correspondente ao segundo conjunto de medidas realizado, após o recozimento da amostra em temperatura ambiente por um ano.

4.8.2 A Determinação do Expoente δ

Ao determinarmos a temperatura crítica do sistema podemos também obter o expoente crítico δ . Para isso utilizamos o seguinte procedimento: considerando a isoterma crítica, construímos o gráfico de magnetização versus campo magnético aplicado em escala logarítmica, como vemos na Figura 4.15. O ajuste linear define o valor de $\delta = 4.7 \pm 0.1$ para $T_C = 177.5$ K. Não foi possível determinar o valor de δ para o primeiro grupo de medidas, onde $T_C = 172$ K, por falta de dados nesta temperatura.

4.8.3 Análise através do Método de Kouvel-Fisher

Outro método comumente empregado para obtenção dos expoentes críticos β e γ , foi proposto por Kouvel-Fisher [72]. A eq.2.22 que nos mostra que a susceptibilidade obedece à proporcionalidade

$$\chi \sim (T - T_C)^{-\gamma} \tag{4.13}$$

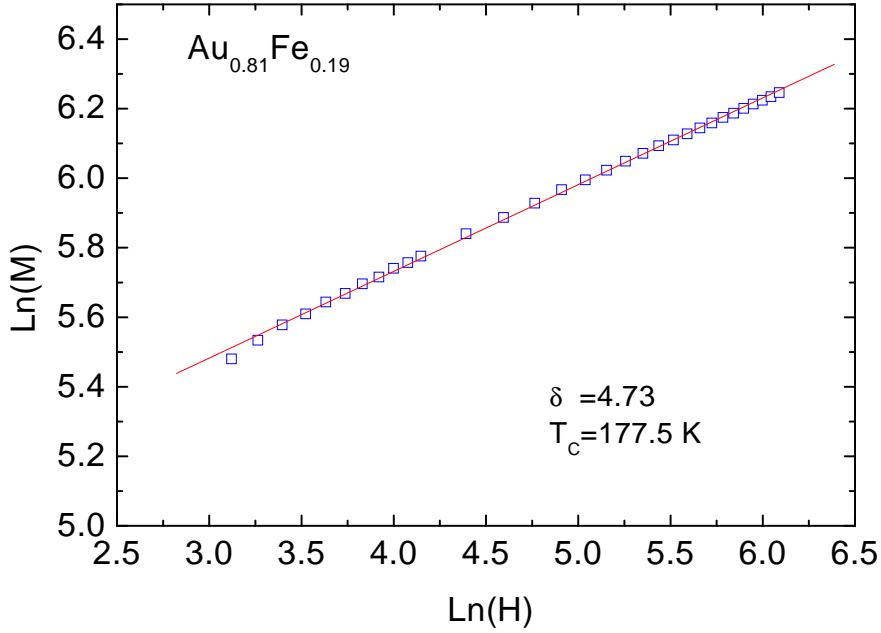


Fig. 4.15: Gráfico logarítmico de magnetização versus campo magnético na isoterma crítica da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.

quando a temperatura se aproxima de T_C por valores superiores. Por outro lado, a magnetização é proporcional a

$$M \sim |T - T_C|^{-\beta}, \quad (4.14)$$

quando a temperatura se aproxima de T_C por valores inferiores.

Reescrevendo as equações 4.13 e 4.14 como

$$Y(T) \equiv \frac{\chi}{(d\chi/dT)} = -\frac{1}{\gamma}(T - T_c) \quad (4.15)$$

e

$$X(T) \equiv \frac{M}{(dM/dT)} = -\frac{1}{\beta}(T_c - T), \quad (4.16)$$

vemos que, representando as quantidades $X(T)$ e $Y(T)$ em função da temperatura, obtém-se linhas retas cuja inclinação fornece os expoentes críticos, e cuja intersecção com o eixo das ordenadas fornece T_c . Este método tem a vantagem de não exigir procedimentos de ajuste com parâmetros variáveis. Porém, a magnetização espontânea e a susceptibilidade inicial (correspondentes a campo magnético aplicado nulo) devem ser previamente deter-

minadas dos dados experimentais. Ademais, o método exige a derivação numérica dos resultados experimentais de magnetização e susceptibilidade. Este procedimento sempre introduz indeterminações.

4.8.4 A Obtenção do Expoente γ

Uma vez obtidas as medidas de magnetização na fase paramagnética da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ como função da temperatura através do procedimento descrito no Cap.2 (ver Figura 4.16(a)), dividimos os resultados pelo campo magnético aplicado para obtermos a susceptibilidade χ através da eq.2.19. Calculamos então a derivada em relação à temperatura, a qual é mostrada na Figura 4.16(b). A presença de um mínimo pronunciado em $T \simeq 173$ K indica a transição de fase para-ferromagnética.

Se representarmos a quantidade $Y = -\chi/(d\chi/dT)$ em um gráfico como função da temperatura (Figura 4.16(c)), obtemos um comportamento linear na fase paramagnética, conforme esperado a partir da equação 4.15. O ajuste dos resultados experimentais equação 4.16, representado na Figura 4.16(c), fornece os valores seguintes: $\gamma = 1.76$ e $T_c = 164.7$ K. Esse procedimento foi realizado para vários campos magnéticos aplicados entre 20 e 500 Oe, como podemos observar na tabela 4.2.

O mesmo processo, utilizando a equação 4.15, foi empregado para analisar as medidas de susceptibilidade AC. Os resultados estão mostrados na Figura 4.17. Desta análise obtemos $\gamma = 1.65$ e $T_c = 170$ K. Os valores do expoente crítico γ obtidos a partir de medidas em diferentes frequências (100 a 6000 Hz) são mostrados na Tabela 4.3. Podemos observar que os valores médios para o expoente γ obtidos com método de Kouvel-Fisher aplicado às medidas de susceptibilidade AC e DC, os quais são mostradas nas tabelas 4.2 e 4.3, apresentam boa concordância com o valor obtido pelo método de Arrot-Noakes.

4.8.5 A Determinação do expoente β

Para determinarmos o expoente crítico β analisaremos os dados de magnetização em temperaturas abaixo T_c . Nesta análise, idealmente, é necessário determinar a magnetização espontânea em campo aplicado nulo. Para tanto são necessários procedimentos

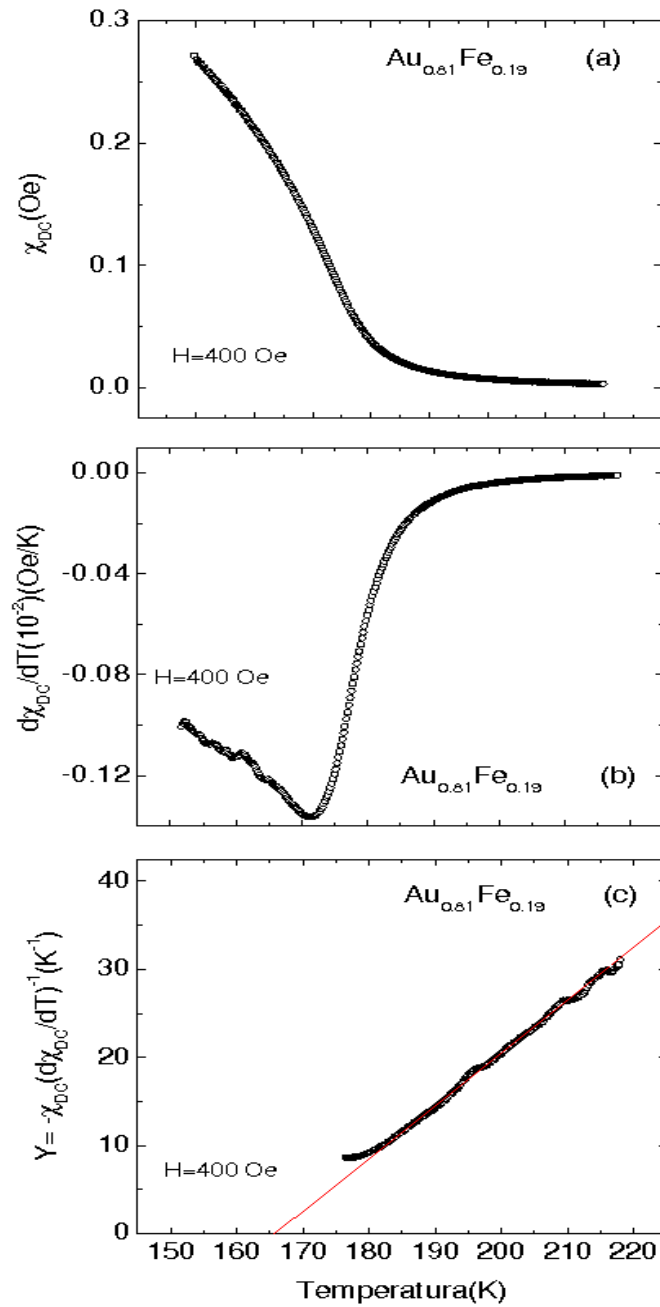


Fig. 4.16: (a) Susceptibilidade em função da temperatura obtida através da eq.2.19 para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. (b) Derivada da susceptibilidade em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel Fisher, eq.4.10, para a susceptibilidade paramagnética do $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.

Sistema	H(Oe)	T_C	γ
AuFe	20	166.4±0.1	1.66±0.01
	30	169.1±0.2	1.59±0.02
	40	168.3±0.1	1.66±0.09
	50	166.5±0.1	1.65±0.06
	60	168.6±0.3	1.61±0.02
	70	168.6±0.1	1.61±0.04
	80	168.4±0.1	1.62±0.04
	90	168.6±0.1	1.61±0.04
	100	168.3±0.1	1.62±0.03
	110	168.6±0.1	1.60±0.05
	130	168.9±0.1	1.60±0.04
	150	166.3±0.1	1.65±0.06
	200	166.2±0.1	1.66±0.04
	300	166.1±0.1	1.65±0.01
	400	164.7±0.1	1.77±0.01
500	165.2±0.2	1.70±0.01	
média		167.4±2	1.64±0.05

Tab. 4.2: O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. Os resultados se referem ao primeiro conjunto de medidas.

Sistema	Frequência	T_C	γ
AuFe	100	170.8±0.2	1.63±0.01
	200	170.1±0.3	1.65±0.02
	300	172±0.2	1.62±0.01
	600	171.9±0.2	1.62±0.03
	1000	170.4±0.1	1.65±0.01
	2000	170.6±0.7	1.67±0.03
	3000	170.5±0.2	1.65±0.01
	6000	170.8±0.3	1.66±0.02
média		170.75±0.5	1.65±0.02

Tab. 4.3: Valores do expoente críticos γ obtidos através da técnica de Kouvel-Fisher para as medidas de susceptibilidade AC em diferentes frequências e $h_a = 5Oe$ para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.

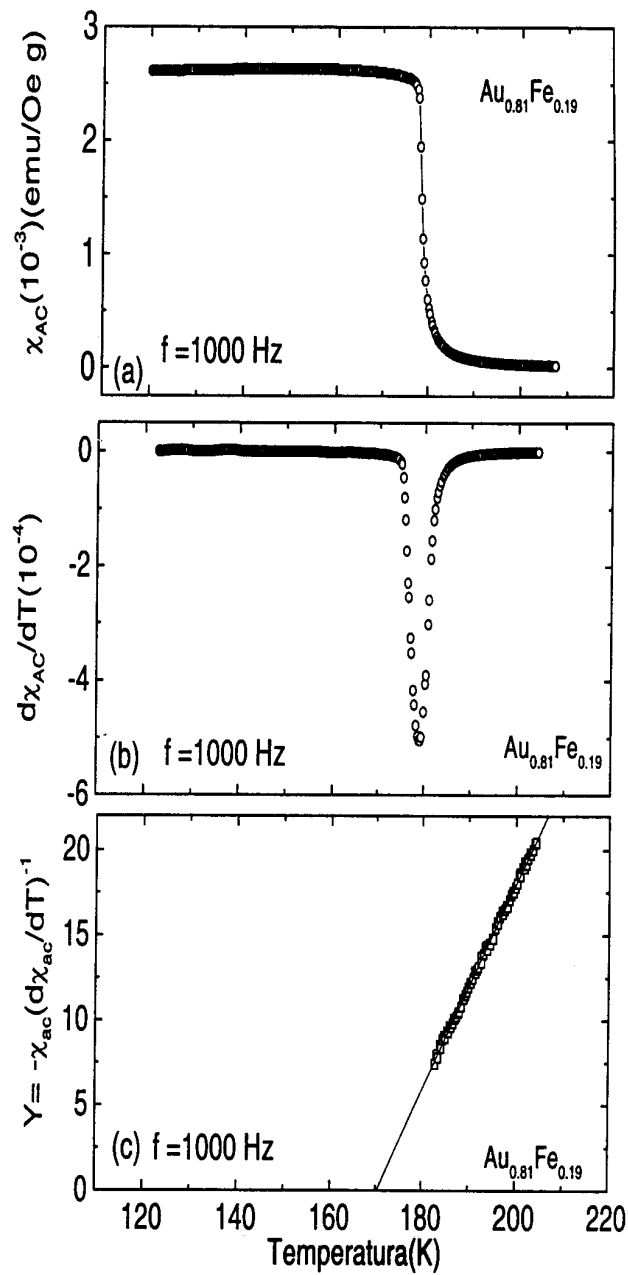


Fig. 4.17: (a) Medida típica de susceptibilidade AC em função da temperatura para amostra de $\text{Au}_{0.81}\text{Fe}_{0.19}$. (b) Derivada da susceptibilidade AC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel-Fisher. O campo AC aplicado foi $h_a = 5\text{ Oe}$.

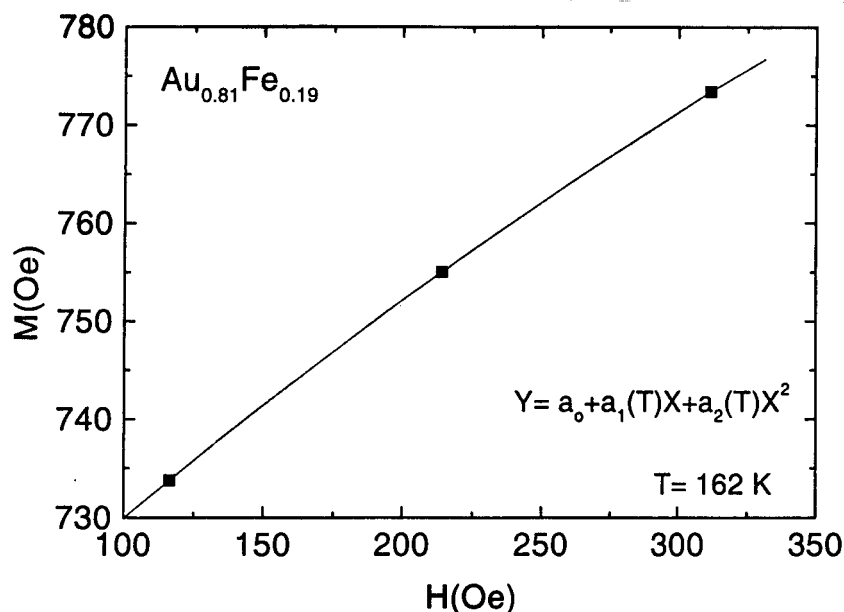


Fig. 4.18: Ajuste da magnetização versus campo magnético entre 100 e 300 Oe para temperatura constante de 162 K.

de extrapolação da magnetização medida em diversos valores de campo magnético. No entanto, neste caso a extrapolação é dificultada pela correção dos efeitos do campo desmagnetizante para valores baixos do campo magnético aplicado. Por outro lado, a aplicação de campos relativamente elevados pode afastar em demasia o sistema do ponto crítico, tornando discutível qualquer procedimento de extrapolação ao limite de campo magnético nulo. Observamos em nossa amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ que os efeitos decorrentes do campo desmagnetizante dominam o comportamento da magnetização nas vizinhanças de T_c em campos magnéticos aplicados inferiores a 100 Oe. A aplicação do método de Kouvel-Fisher a estes dados levam a valores muito pequenos, e dependentes do campo, para o expoente crítico β (lembramos que os dados obtidos em campo magnético inferiores a 100 Oe também não puderam ser aproveitados na análise com o método de Arrot-Noakes). Por outro lado, notamos também que para campos superiores a $H=500$ Oe as medidas de magnetização apresentam arredondamentos nas proximidades da transição ferro-paramagnética, os quais indicam afastamento do ponto crítico.

Assim, limitamos a análise do comportamento crítico da magnetização pelo método de Kouvel-Fisher ao intervalo de campos magnéticos entre 100 Oe e 300 Oe. Mesmo neste

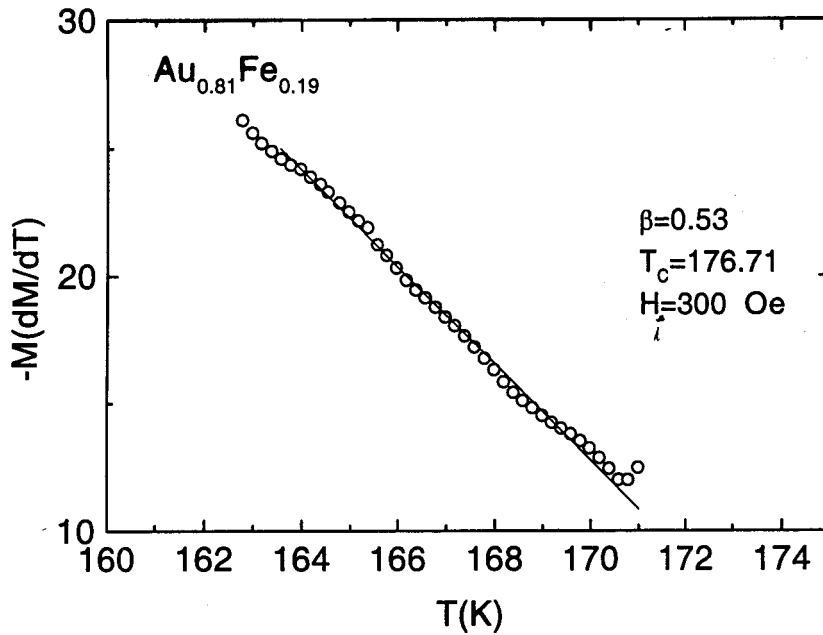


Fig. 4.19: Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ medida no campo interno $H_i = 300$ Oe. O campo interno é obtido conforme explicado no texto.

intervalo, os efeitos do campo desmagnetizante são relevantes na magnetização medida nas proximidades de T_c . Para corrigir tais efeitos adotamos o procedimento descrito a seguir. Selecionamos medidas de magnetização em função da temperatura para três valores de campo magnético aplicado: 100, 200 e 300 Oe. A partir destes dados geramos gráficos da magnetização em função do campo magnético mantendo a temperatura constante (ver Figura 4.18). Para cada valor de temperatura, ajustamos os dados a um polinômio de segundo grau do tipo:

$$M(H) = a_0(T) + a_1(T) * H + a_2(T) * H^2. \quad (4.17)$$

onde $a_0(T)$, $a_1(T)$ e $a_2(T)$ são as constantes de ajuste, que são dependentes da temperatura. Tal procedimento foi realizado para 26 valores de temperatura no intervalo entre 152K e 177 K.

Conhecendo agora a dependência da magnetização com o campo magnético para vários valores de temperatura, reconstruímos a curva $M \times T$ para um campo magnético interno fixo de 300 Oe. O campo interno, conforme a eq. 4.9, é dado por $H_i = H_a -$

ηM , onde H_a representa o campo aplicado, o qual é escolhido consistentemente com a 4.17, de modo a manter o campo interno fixo. A magnetização foi calculada através da expressão 4.17 para cada uma das temperaturas. Supomos que o campo $H_i= 300$ Oe é suficientemente baixo para não afastar significamente o sistema do ponto crítico. Assim, consideramos que os dados para a magnetização no campo interno de 300 Oe são representativos da magnetização espontânea, idealmente medida em campo aplicado nulo. Então, determinamos o expoente crítico β através da eq.4.16. O resultado pode ser observado na Figura 4.19, da qual são extraídos os seguintes valores dos expoentes: $\beta= 0.53$ e $T_c= 176.7\text{K}$. Para verificar o quão confiável é o método, repetimos o mesmo procedimento para $H_i=400$ Oe e obtivemos $\beta=0.54$ e $T_c=177.7\text{K}$.

4.8.6 O Método de Scaling

Além dos plots de Arrot-Noakes e Kouvel-Fisher podemos determinar os expoentes críticos β e γ através do método de scaling. Para isso é necessário lembrarmos da relação de escalonamento [77]:

$$\Delta = \beta\delta = \beta + \gamma. \quad (4.18)$$

Ao substituírmos a relação 4.18 na equação de estado 4.10 podemos escrever

$$\frac{M(H, t)}{|t|^\beta} = M\left(\frac{H}{|t|^{\beta+\gamma}}; \pm 1\right). \quad (4.19)$$

O método, então, se baseia no colapso numa curva de plots logarítmicos de $M|t|^{-\beta}$ versus $H|t|^{-\beta+\gamma}$ para diversas medidas realizada no intervalo $T > T_C$. Uma curva correspondente é obtida para as medidas realizadas em $T < T_C$. A análise que realizamos pode ser vista na Figura 4.20. O escalonamento foi obtido para os valores de $\beta= 0.54$ e $\gamma=1.64$.

4.8.7 A Determinação do Expoente Crítico α

Como visto no Capítulo 2, a derivada da resistividade elétrica em função de temperatura pode ser representada como uma lei de potência nas imediações de uma transição de fase

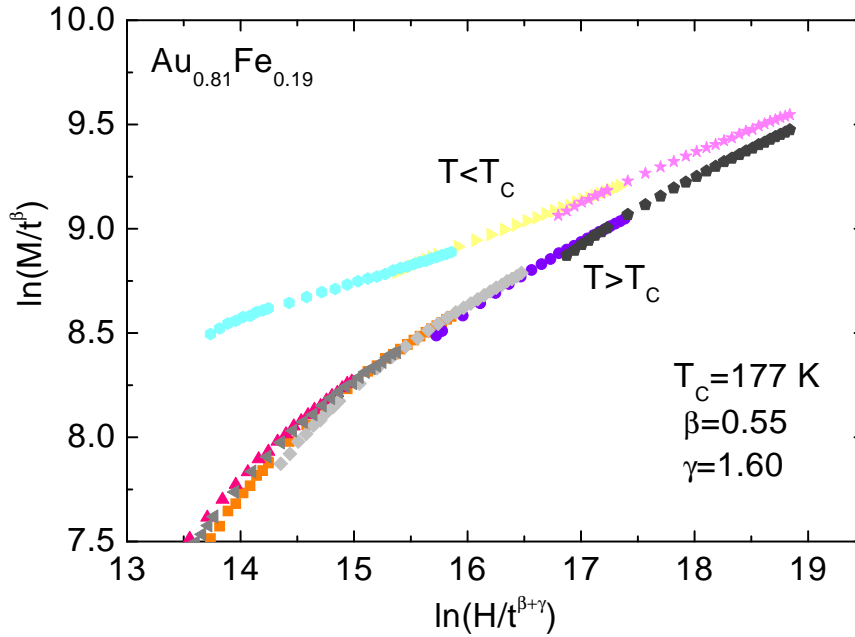


Fig. 4.20: *Scaling da magnetização para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$.*

magnética, ou seja,

$$\frac{d\rho}{dT} = \frac{C}{\alpha} (t^{-\alpha} - 1) + D \quad (4.20)$$

onde C é uma amplitude crítica, D é uma constante que representa a contribuição não crítica à resistividade, e α é o expoente crítico do calor específico.

A Figura 4.21 mostra uma medida da derivada da resistividade em função da temperatura nas proximidades da transição ferromagnética para a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. O ajuste da Eq. 5.2 aos dados experimentais corresponde à linha contínua na Figura 4.21. Nossos dados só permitem a obtenção do expoente crítico α para temperaturas acima de T_c . Os valores obtidos para α são apresentados na Tabela 5.4 para diferentes valores de campo magnético aplicado.

Observamos na Tabela 5.4 que o valor encontrado para o expoente α não difere significativamente daquele esperado num ferromagneto clássico, $\alpha \sim -0.1$, descrito pelo modelo de Heisenberg no caso ordenado. A primeira vista, esse resultado poderia levar a crer que a amostra de $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ apresenta um comportamento de ferromagneto ordenado. Esta interpretação, porém, está em desacordo com os valores obtidos para os expoentes β , γ e

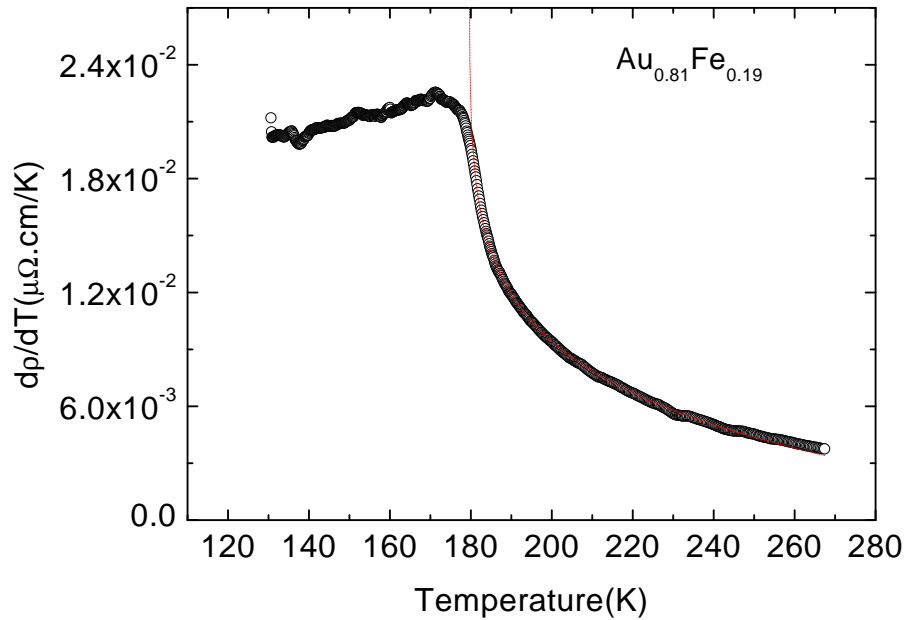


Fig. 4.21: Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ nas vizinhanças da temperatura de Curie. A linha pontilhada corresponde a um ajuste com a equação 5.2.

Sistema	H(Oe)	α	$T_c(K)$	$C(10^{-9})$	$D(10^{-9})$
AuFe	0	-0.084 ± 0.04	179.90 ± 1.80	6.00 ± 0.15	0.10
	150	-0.087 ± 0.001	178.75 ± 0.06	4.70 ± 0.09	0.10
média*		-0.085 ± 0.002	179.29 ± 0.76	5.34 ± 0.91	0.10

Tab. 4.4: Valores do expoente crítico α obtidos através da análise da derivada dp/dt para as medidas de resistividade elétrica na amostra de AuFe.* a média é somente para os campos de 0 e 150 Oe.

δ , os quais são muito diferentes daqueles preditos pelo modelo de Heisenberg. Para tentar entender a origem desta contradição calculamos o livre caminho médio dos elétrons de condução em temperaturas vizinhas a T_C usando a fórmula cinética para a resistividade [78]. Obtivemos que este livre caminho médio é da ordem de 100 \AA . Nosso resultado para α é então indicativo de que, nesta ordem de tamanho, a amostra se comporta como um ferromagneto clássico. De fato, estudos anteriores em ligas de $Au_{1-x}Fe_x$ [41], mostram que neste sistema são formados aglomerados ferromagneticamente bem ordenados [76] e que tem ordem de tamanho compatíveis com o livre caminho médio eletrônico. A interação entre tais grãos, no entanto, é sujeito à frustração e produz um estado magneticamente desordenado em escalas de tamanho meso e macroscópicas. Assim, experiências que testam a amostra como um todo, como a magnetização, susceptibilidade ou calor específico, tendem a fornecer respostas típicas de sistemas desordenados. Por outro lado, como a resistividade testa a amostra em tamanhos da ordem do livre caminho médio, a informação por ela fornecida reflete o estado de ordem magnética nesta escala de comprimento. Desse modo, os resultados de resistividade sugerem que nossa amostra apresenta a formação de “clusters”, os quais teriam um comportamento próximo a de um ferromagneto clássico e justificariam a existência do expoente crítico α tão pequeno.

4.9 Discussão do Comportamento dos Expoentes Críticos

A Tabela 5.5 apresenta os expoentes críticos obtidos para nossa amostra $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, juntamente com valores reportados na literatura e aqueles calculados para o modelo de Heisenberg para ferromagnetos ordenados. Também são apresentados os expoentes críticos relativos à transição de um sistema vidro-de-spin clássico, formado por uma liga diluída de Ag-Mn [75], e os expoentes críticos para uma amostra de Fe puro.

Como esperado, o sistema puro de Fe apresenta o comportamento crítico de um ferromagneto clássico, concordando com as previsões do modelo de Heisenberg.

Nosso sistema de Au-Fe, com 19-at%Fe na liga, apresenta expoentes críticos β e γ com valores intermediários entre aqueles que descrevem a transição de um ferromagneto

Sistema	α	β	γ	δ	método
$Au_{0.81}Fe_{0.19}$		0.54	1.64	4.73	Arrot-Noakes, isoterma crítica.
neste trabalho		0.54	1.64		Kouvel-Fisher
			1.65		suscep.AC Kouvel-Fisher
		0.54	1.64		Scaling
	-0.08				resistividade
médias	-0.08	0.54	1.64 ± 0.01	4.47	
$Au_{0.81}Fe_{0.19}$	-1 ± 0.1	0.54	1.64		depol.neutron [79]
campo médio	0.0	0.50	1.00	3.0	[77]
modelo Heisenberg	-0.12	0.36	1.39	4.8	grupo renorm.[74]
Fe	-0.11	0.39	1.33	4.35	[80]
vidro-de-spin	-2.12	1.0	2.2	3.1	Ag-Mn[75]
Heisenberg desordenados	1	0.50	2	5	grupo renorm[84]

Tab. 4.5: *Expoentes críticos pra o sistema reentrante $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ determinado neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais e previsões teóricas*

clássico e os encontrados para um vidro-de-spin. Isto evidencia a peculiaridade do estado intermediário ferromagnético em sistemas reentrantes e também sugere que a frustração associada à desordem é elemento diferenciador do comportamento crítico deste sistema.

No entanto, contrastando com nossas experiências, Gangoothyay e col. [82] obtiveram os expoentes $\gamma = 1.33 \pm 0.06$, e $\beta = 0.46 \pm 0.03$ e $\delta = 4.0 \pm 0.1$ para o ferromagneto desordenado Au-Fe 18%. Tais valores diferem significamente daqueles que obtivemos, porém também se afastam das previsões para o modelo de Heisenberg no caso ordenado [74] e para o modelo de campo médio [77]. Os autores da referência [82] concentram-se em resultados de magnetização DC e suas análises se estendem por intervalos de temperatura acima e abaixo de T_c significamente mais largo que aos intervalos críticos por nós identificados no sistemas reentrante AuFe 19%. Ademais, Gangoothyay e col. [82] privilegiam a análise de Kouvel-Fisher numa amostra com grande fator desmagnetizante, que, como vimos nas secções 4.8.4 e e 4.8.5 dificulta a obtenção de expoente confiáveis, principalmente na fase ordenada (referente ao cálculo do expoente β). A estratégia utilizada na [82], diferentemente de nossa, privilegia procedimentos de extrapolação para a obtenção da magnetização espontânea e de susceptibilidade inicial. Optamos em coletar análises em diferentes métodos para obtermos uma maior confiabilidade dos índices críticos com

base na comparação dos resultados. Acreditamos, no entanto, que além da diferença na metodologia de análise dos resultados, os sistemas comparados distiguem-se significativamente, o que pode causar mudanças na fenomenologia crítica. Apenas como exemplo, a temperatura crítica na amostra com 18% Fe decresce para 156 K.

Chamamos a atenção também para cálculos de Sobotta e Wegner[84], que usaram técnica de grupo de renormalização para determinar o comportamento crítico de ferromagnetos no limite de extrema desordem. Estes autores reportam os expoentes $\beta = 0.5$, $\gamma = 2.0$ e $\delta = 5.0$ que são próximas de nossas determinações experimentais. Concluímos, portanto, que a desordem é relevante para termodinâmica crítica de transição ferro-paramagnética no sistema Au-Fe19% e os expoentes críticos estáticos α , β , γ e δ são significativamente alterados em relação tanto quanto às expectativas da teoria do campo médio quanto em relação às previsões do modelo de Heisenberg 3D, no caso ordenado. Na tabela 4.5, os valores para os expoentes críticos que obtivemos com nossa experiência são coletados com determinações feitas por outros autores e com previsões teóricas de diferentes modelos.

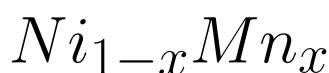
Os resultados nesta tabela nos levam a propor os seguintes valores para os expoentes críticos estáticos na transição ferro-paramagnética de nosso sistema reentrante $Au_{0.81}Fe_{0.19}$, $\alpha = -0.085 \pm 0.04$, $\beta = 0.54$, $\delta = 4.734 \pm 0.01$ e $\gamma = 1.64 \pm 0.05$. Tais expoentes críticos satisfazem a relação de scaling de Windon. Porém as relações de scaling de Rushbrooke e Griffiths não são ao pequeno valor do expoente crítico α .

Se o valor adotado para α for aquele deduzido com a relação de hiperscaling a partir de experiências de difração de nêutrons por pequenos ângulos $\alpha = -1 \pm 0.1$ [79], as relações de scaling de Rushbrooke e Griffiths são satisfeitas com os valores que determinamos para β , γ e δ . É possível que o valor determinado para α com medidas de espalhamento de nêutrons seja representativo Au-Fe num estado mais homogêneo que aquele que caracteriza a nossa liga. Em nossa amostra é possível que haja uma formação incipiente de clusters de Fe, que se manifesta, por exemplo, na elevação da temperatura crítica de 172 K para 177 K no intervalo de tempo transcorrido entre as duas séries de medidas de magnéticas, e no pequeno valor encontrado para o expoente α em medidas de transporte. Note-se ainda que nas experiências de calor específico não se observa qualquer anomalia nas proximidades de

T_c . Este comportamento é típico de sistemas desordenados, como vidros de spin, onde o valor de α é grande e negativo. Assim, nossa interpretação é que a regra de Fisher e Langer [?](que estabelece que as divergências de calor específico e $d\rho/dT$ seja governadas pelo mesmo expoente crítico α) não é válida em nosso sistema reentrante e o valor $\alpha \simeq -1$ é mais representativo para $Au_{0.81}Fe_{0.19}$. Neste caso todas as relações de scaling envolvendo os expoentes críticos estáticos para a transição ferro-paramagnética são válidas.

Capítulo 5

Sistemas Magnéticos Reentrantes



Neste capítulo, estudaremos ligas reentrantes de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Descreveremos a preparação das amostras e discutiremos seu comportamento crítico nas vizinhanças da transição para-ferromagnética através das técnicas experimentais de magnetização, susceptibilidade AC, resistividade elétrica e calor específico, as quais já foram descritas em capítulos anteriores.

5.1 Preparação das Amostras

As ligas $Ni - Mn$ foram preparadas utilizando-se metais fornecidos pela Johnson Matthey apresentando um grau de pureza superior a 99.98%. As quantidades necessárias de Ni e Mn para a fabricação das amostras foram pesadas com precisão melhor que 10^{-4} g. As fusões foram realizadas num forno a arco, em atmosfera de argônio puro. O processo de fusão foi repetido várias vezes para assegurar a homogeneidade da amostra. Pesagens após cada fusão foram feitas para o controle da estequiometria da liga. Ao final, a massa total das amostras é da ordem de 1g, com perda da ordem de 0.2%. Portanto, a estequiometria resultante é praticamente coincidente com a nominal e as ligas obtidas podem ser representadas como $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ (ou $NiMn$ 22 at%) e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ (ou $NiMn$ 21 at%). Finalmente, as ligas passaram por um processo de laminação e corte a frio, pois para cada técnica de medida utilizamos corpos de prova com forma geométrica adequada. Para magnetização, susceptibilidade AC as amostras tem a forma de um disco; na resis-

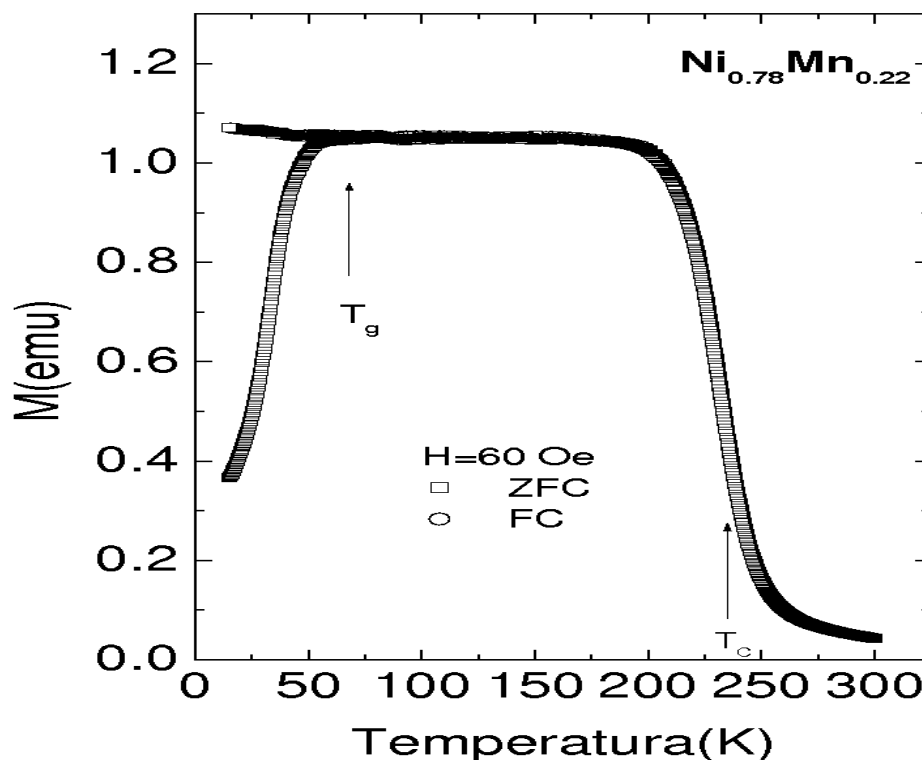


Fig. 5.1: Magnetização em função da temperatura para amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ medida segundo os procedimentos ZFC e FC.

tividade temos um paralelepípedo de dimensões $7.515\text{mm} \times 2.543\text{mm} \times 1.125\text{mm}$; para calor específico temos uma amostra com forma aproximada de um elipóide, com massa de 281mg.

Para assegurar que a fase ordenada Ni_3Mn ($T_c=725^\circ\text{C}$) desapareça, foi necessário realizar um tratamento térmico, em um forno de resistência, a uma temperatura controlada de 900°C durante uma hora, com as amostras colocadas em uma cápsula de quartzo selada a vácuo. Após este tempo as amostras foram resfriadas rapidamente ("quenching"), mergulhando e quebrando a cápsula num recipiente com água e gelo. Posteriormente as amostras passaram por um processo de limpeza com ácido nítrico (HNO_3).

5.2 Magnetização

Iniciamos a caracterização das ligas binárias de $Ni - Mn$ através de medidas de magnetização em função da temperatura, com campo magnético aplicado constante, por meio

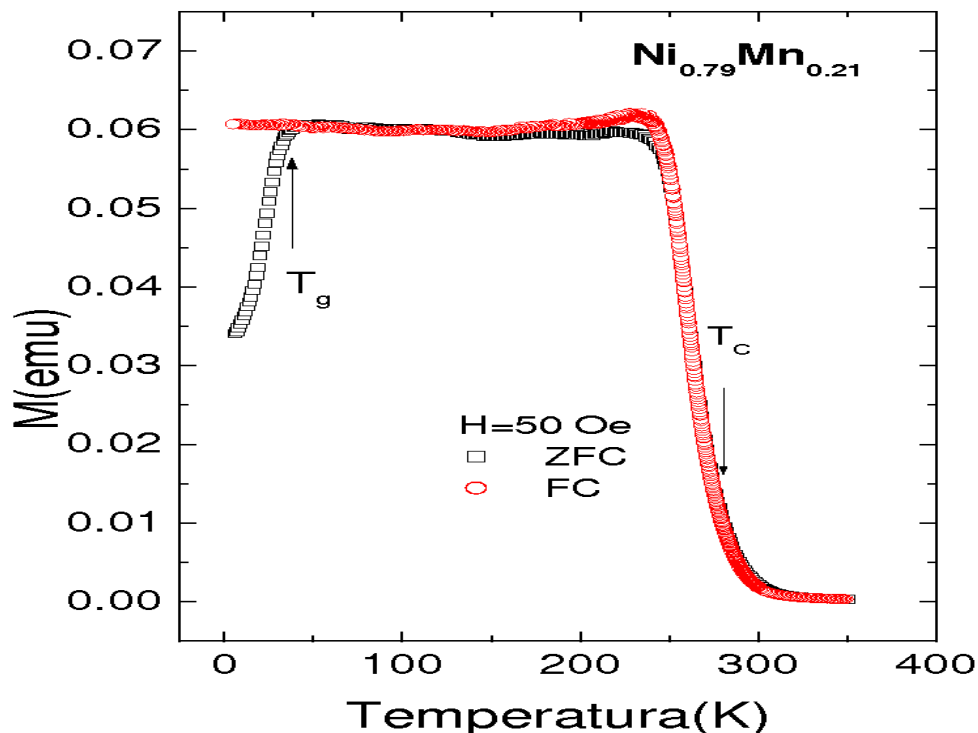


Fig. 5.2: Magnetização em função da temperatura para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, medida segundo os procedimentos ZFC e FC.

dos procedimentos ZFC e FC (descrito no Cap.1). Também foram realizadas medidas de magnetização em função do campo magnético com temperatura constante utilizando o magnetômetro de SQUID (descrito no Cap.3). Para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, a transição magnética foi medida para intensidades de campo magnético aplicado variando entre 10 e 500 Oe, e para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ o campo magnético aplicado variou entre 10 e 5000 Oe. Em nenhuma destas medidas foi detectada a existência da fase ordenada.

A Figura 5.1 representa a magnetização em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ num campo magnético aplicado de 60 Oe. A temperatura de Curie assinalada é de aproximadamente 229 K. A Figura 5.2, apresenta a magnetização em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. O campo magnético aplicado é de 50 Oe, e $T_c \simeq 280$ K. Nota-se que a resposta magnética de ambas as amostras nas proximidades da temperatura crítica manifesta o surgimento de uma magnetização espontânea, sendo este um comportamento de ferromagneto clássico. Kouvel e col.[87] verificaram que o momento

de saturação para esses sistemas tem um valor da ordem de 25% do estimado a partir do alinhamento ferromagnético de todos os spins componentes da liga. Também foi observado, através de medidas de despolarização de nêutrons [89], que uma amostra com 20% de Mn apresenta um momento magnético de $3.5\mu_B$ para Mn e $0.5\mu_B$ para Ni . Tal comportamento sugere a ocorrência de frustração resultante da competição entre interações ferromagnéticas $Ni - Ni$ e $Ni - Mn$ e antiferromagnéticas entre sítios vizinhos de Mn . Este efeito se manifesta de forma mais evidente em temperaturas inferiores à temperatura de congelamento (T_g). Em nossas amostras estas temperatura são, aproximadamente, $T_g \simeq 70$ K para $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, e $T_g \simeq 45$ K para $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Abaixo da temperatura de congelamento os sistemas apresentam uma fase do tipo vidro-de-spin. Esta é caracterizada pelo congelamento aleatório das componentes transversais do momento magnético, o qual é acompanhado pelo ordenamento ferromagnético da componente longitudinal. Este comportamento caracteriza um sistema reentrante, segundo a teoria de campo médio. A temperatura T_g , que denota o início dos efeitos irreversíveis, fica evidente nas medidas ZFC-FC realizadas em nossas amostras(ver Fig. 5.1 ou Fig. 5.2).

Decrescendo a temperatura através da temperatura de Curie, a magnetização aumenta rapidamente, alcança um valor aproximadamente constante (“plateau”), correspondendo limite imposto pelo campo desmagnetizante. Embora muitos materiais reentrantes sejam caracterizados por curvas de magnetização na forma de sino (ver figura 4.1), nossos dados são similares aos encontrados nos estudos realizados por Senoussi e Kouvel [85] e apresentam curvas de magnetização caracterizadas pela ocorrência de um “plateau” no estado ferromagnético.

5.3 Fator Desmagnetizante

Como descrito anteriormente (cap4) é possível obter o fator desmagnetizante através de dois procedimentos: medindo a magnetização como função do campo magnético aplicado a baixa temperatura [69], ou pelas relações obtidas por Stoner[67] e Osborn [68], que levam em conta tão somente a forma geométrica da amostra. Nesta seção aplicamos ambos os métodos a nossas amostras $Ni - Mn$.

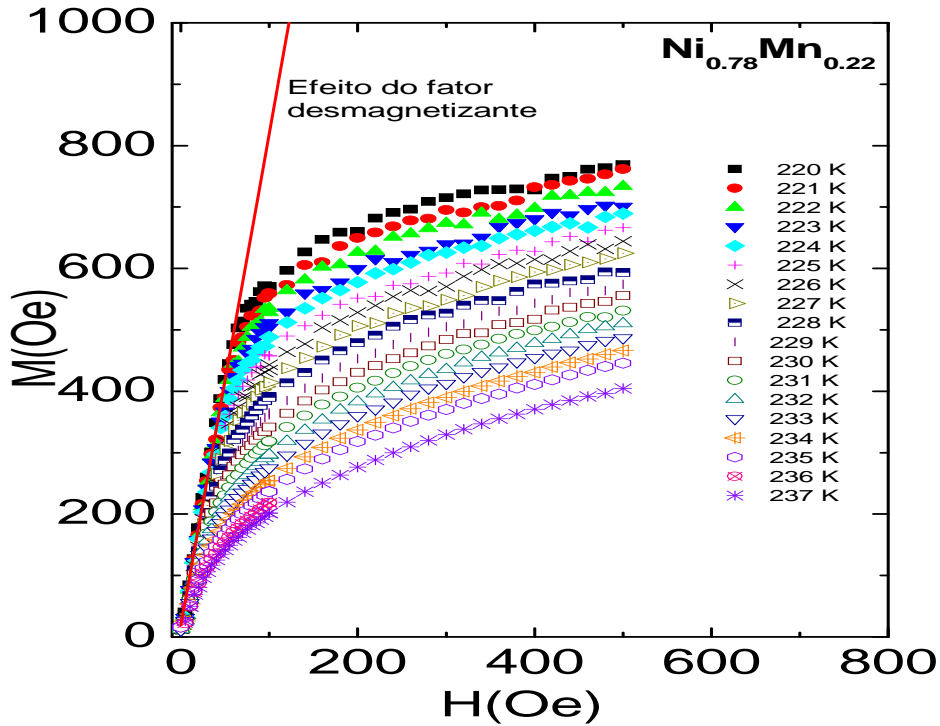


Fig. 5.3: Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado em temperaturas constantes para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. A reta pontilhada corresponde a um ajuste linear $M=aH+b$, conforme o procedimento descrito na referência [69].

Para cálculo do fator desmagnetizante da amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, consideramos que sua forma geométrica pode ser descrita aproximadamente por um elipsóide. Através da equação 4.5, e considerando que os semi-eixos obedecem à condição $a \gg b \geq c$, o fator desmagnetizante para a situação em que a magnetização é orientada ao longo do eixo a será $\eta = 0.064$. Já para amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, que apresenta a forma geométrica de um disco, ($b=c \gg a$, sendo $b=c=2.2\text{mm}$ e $a=0.8\text{mm}$) encontramos $\eta = 0.034$, quando o campo é aplicado paralelamente ao plano do disco.

A Figura 5.3 mostra as isotermas experimentais de magnetização em função do campo magnético aplicado no intervalo 0 a 500 Oe para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. Tais medidas permitem a obtenção do fator desmagnetizante ao longo do eixo maior a . Para baixos valores de campo aplicado (menor que 50 Oe), podemos fazer um ajuste linear do tipo $M = aH + b$ e ($b \simeq 0$) representado pela reta na Figura 5.3. A inclinação da reta definirá o fator desmagnetizante da amostra segundo o procedimento descrito em [69]. Da equação (4.3) obtivemos o valor $\eta = 0.0062$

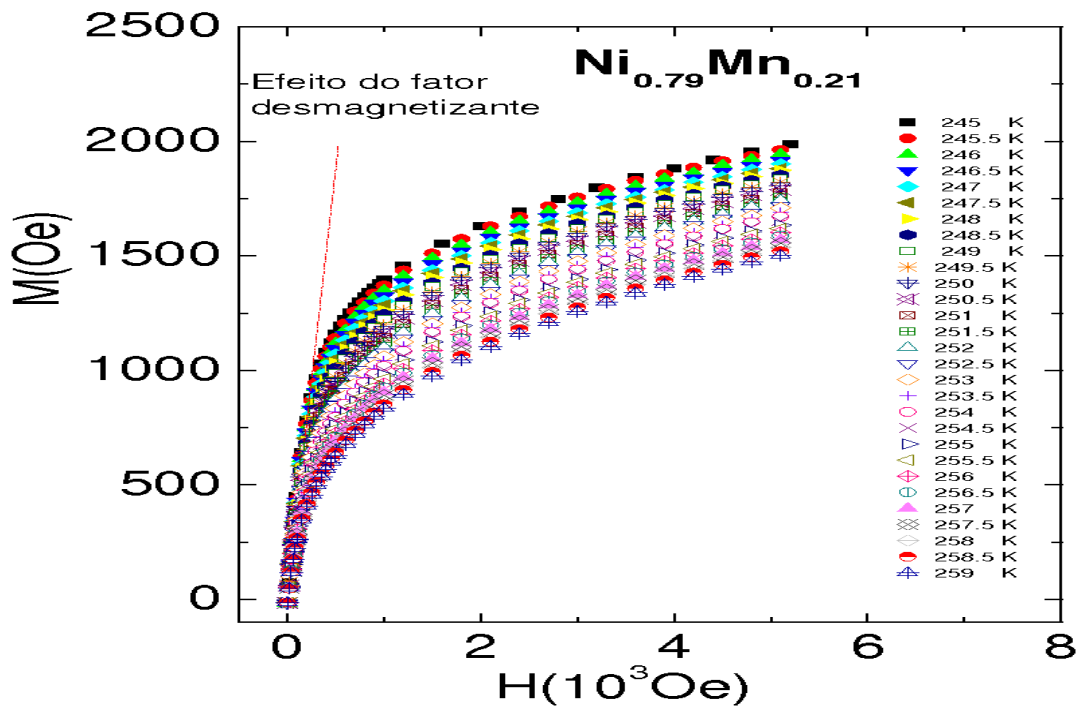


Fig. 5.4: Medidas de magnetização como função do campo magnético aplicado a temperatura constante para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. A reta pontilhada corresponde ao ajuste para obtenção de fator desmagnetizante.

Também para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, medimos a dependência da magnetização com o campo magnético aplicado orientado ao longo do eixo maior (c) em temperatura constante, mostrada na Figura 5.4. Através do ajuste linear $M = aH + b$ (representado pela reta pontilhada), obtivemos $\eta=0.03$, correspondente ao fator desmagnetizante na direção do campo magnético aplicado. Na sequência da análise de resultados adotamos os valores experimentais para os fatores desmagnetizantes das amostras $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, ou seja $\eta = 0.062$ e $\eta = 0.03$, respectivamente.

5.4 Resistividade Elétrica e Magnetoresistência

Realizamos, na amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, medidas de resistividade elétrica $\rho(T)$ em função da temperatura, com e sem campo magnético aplicado, as quais estão representadas na Figura 5.5. Podemos observar a marcante presença de um máximo nas vizinhanças de 200 K, que tende a ser suprimido com a aplicação do campo magnético. A anomalia é claramente observada até $H=50$ Oe e é totalmente suprimida em $H=100$ Oe aplicado paralelamente à corrente. Como o máximo ocorre em temperaturas pouco inferiores à tem-

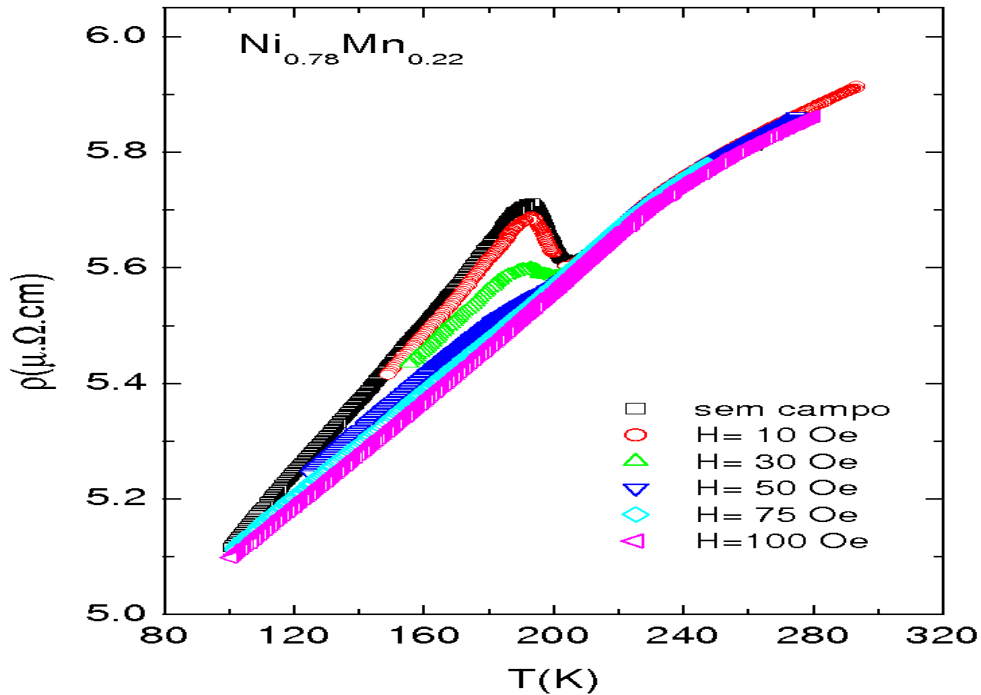


Fig. 5.5: Resistividade elétrica em função da temperatura para diferentes valores do campo magnético aplicado para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. O campo é aplicado paralelamente à corrente.

peratura de ordenamento magnético, pode-se interpretá-lo como um efeito de superzona [88], que é observado logo abaixo da temperatura de Néel em diversos sistemas metálicos antiferromagnéticos [88]. Em razão da periodicidade das sub-redes de spin de um arranjo antiferromagnético, é concebível a ocorrência de novos gaps nas vizinhanças de superfície de Fermi. Assim, a densidade de elétrons de condução é reduzida, causando um aumento na resistividade. Uma subsequente diminuição da temperatura tende a diminuir a resistividade novamente, pois o espalhamento resultante de desordem de spin torna-se menos efetivo. Assim, origina-se o máximo característico de efeito de superzona.

Nossa amostra, no entanto, é reentrante e as medidas de magnetização e susceptibilidade magnética são compatíveis com a descrição de fase magnética intermediária como sendo globalmente ferromagnética. Portanto, somos levados a pensar que, de fato, na transição em T_c ocorre um fenômeno tipo separação de fases, onde inclusões antiferromagnéticas são estabilizadas numa matriz predominantemente ferromagnética. Estas inclusões, que provavelmente resultam de flutuações locais com predomínio do acopla-

mento Mn-Mn, seriam as responsáveis do efeito de superzona. A supressão deste efeito pela aplicação de campos magnéticos tão baixos quanto 100 Oe é uma forte indicação de as regiões antiferromagnéticas são minoritárias e estabilizam com energia praticamente idêntica à da matriz ferromagnética. A separação da fases ferro e antiferromagnética nas ligas Ni-Mn, provavelmente está na origem da frustração e do comportamento reentrante observados neste sistema.

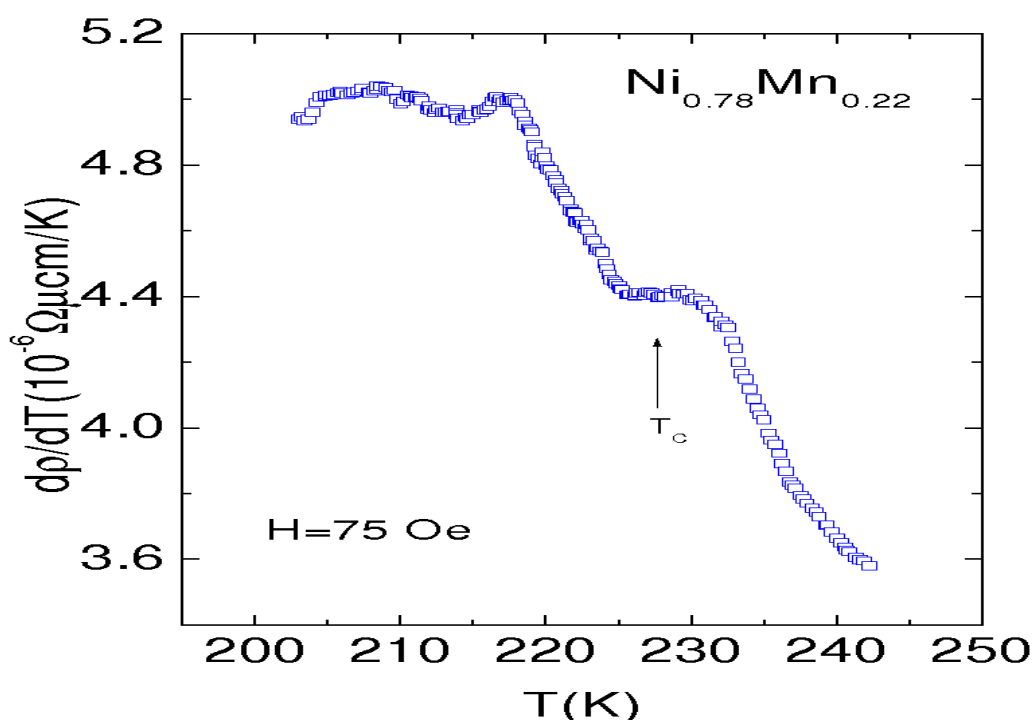


Fig. 5.6: Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$.

Outra forma de análise é baseada na utilização da derivada da resistividade em relação à temperatura. Um exemplo é apresentado na Figura 5.6 para um campo magnético aplicado de 75 Oe, onde detectamos uma anomalia remanente do efeito de superzona na região próxima à temperatura de ordem magnética.

5.5 Susceptibilidade AC

Medidas de susceptibilidade AC em função da temperatura foram realizadas para diferentes frequências para nas amostras $\text{Ni} - \text{Mn}$, sendo obtidas as componentes real e

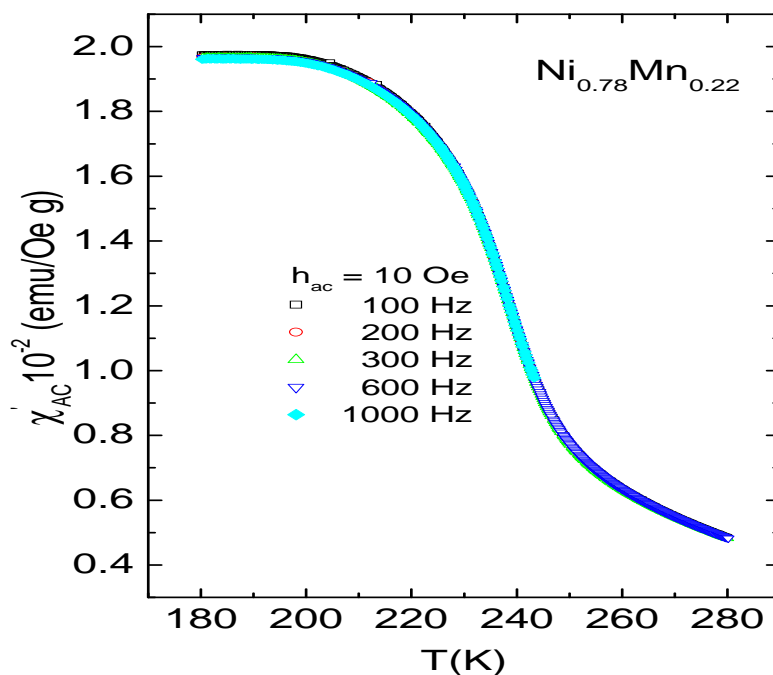


Fig. 5.7: Componente real susceptibilidade AC para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ em função da temperatura em diferentes frequências.

imaginária.

A Figura 5.7 mostra a componente real da susceptibilidade AC (χ') para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ em função da temperatura na faixa de frequências entre 100 e 1000 Hz. O campo de excitação nestas experiências é $h_{ac} = 10$ Oe. Fica evidente que a variação da frequência não altera a parte real da susceptibilidade. Na Figura 5.8 está apresentada a parte imaginária da susceptibilidade AC (χ'') em função da temperatura para frequências de 100 e 1000 Hz ($h_{ac} = 10$ Oe) para a mesma amostra. Observa-se a presença de dois picos: o primeiro, nas proximidades de 240 K, indicando a ocorrência de transição paraferromagnética, e o segundo, em 50 K, é associado à transição de fase tipo vidro de spin.

A Figura 5.9 mostra a dependência com a temperatura da componente real da susceptibilidade AC (χ') no intervalo de frequências entre 100 e 6000 Hz, para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Neste caso, o campo de excitação é $h_{ac} = 5$ Oe. O resultado é similar aquele obtido para a amostra anterior. O comportamento da parte imaginária (χ'') (Figura 5.10) indica que a transição tipo vidro-de-spin está localizada nas proximidades 40 K. O pico da mais alta temperatura em (χ'') ocorre em 260 K aproximadamente. Este valor é próximo a T_c determinada à partir de medidas da susceptibilidade DC ($T_c \simeq 280$ K)

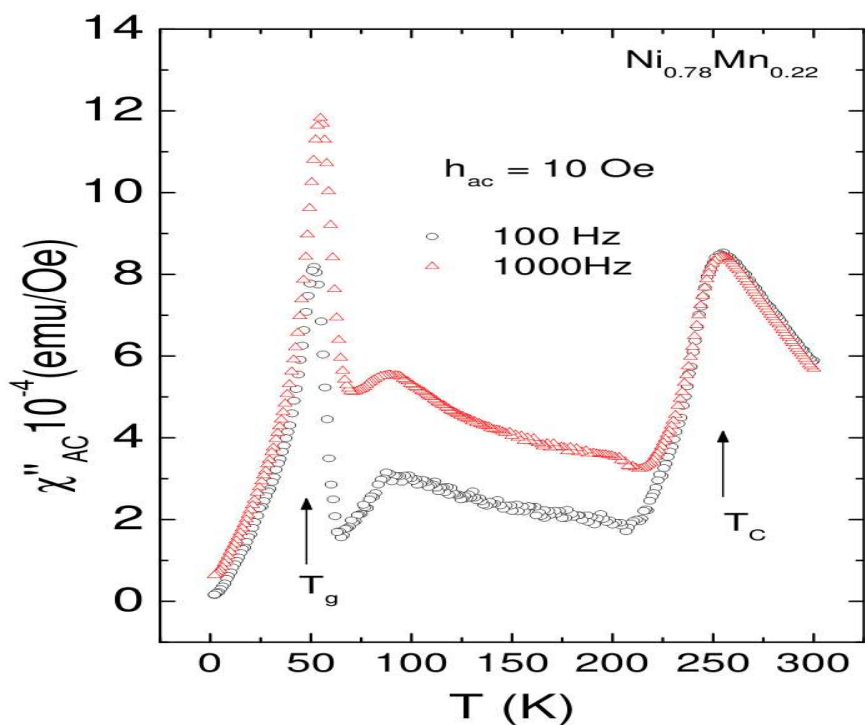


Fig. 5.8: Medida da componente imaginária como função da temperatura para amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$, nas frequências indicadas

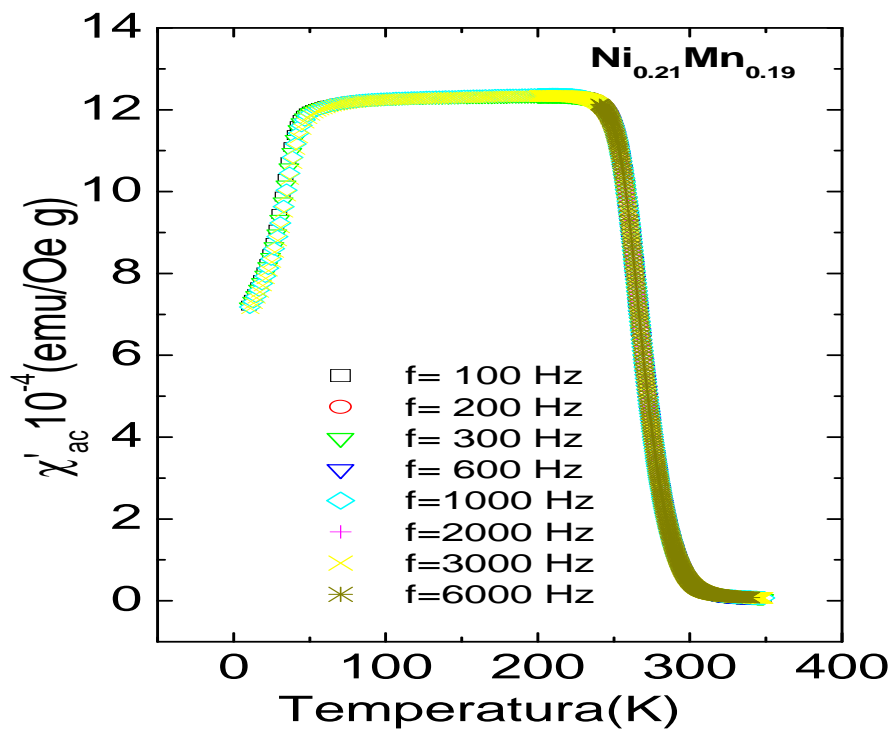


Fig. 5.9: Medidas da componente real da susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $\text{Ni}_{0.79}\text{Mn}_{0.21}$ nas frequências indicadas.

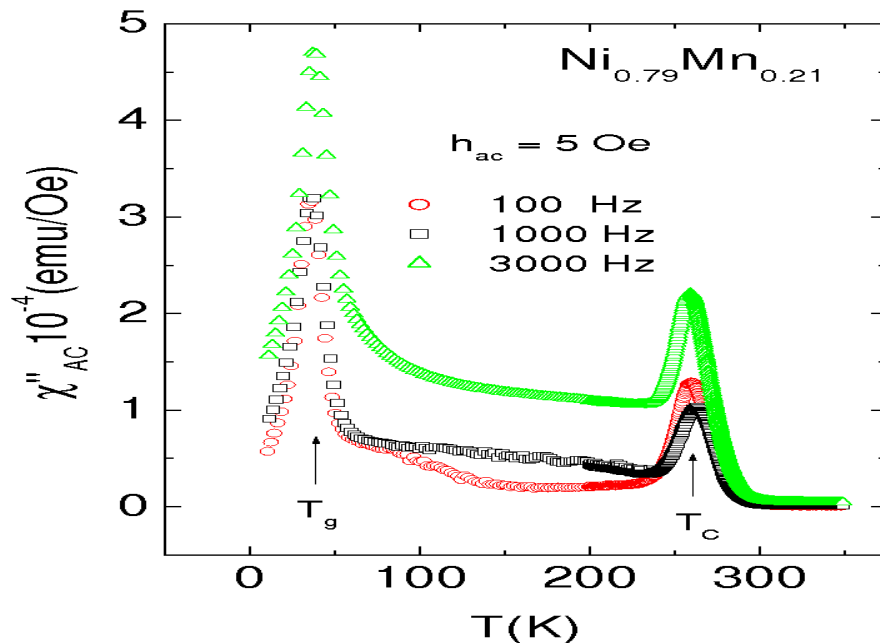


Fig. 5.10: Medidas da componente imaginária da susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. As frequências e a amplitude do campo AC estão indicadas.

5.6 Calor Específico

Nesta seção apresentamos medidas de calor específico em função da temperatura na faixa entre 140 K e 260 K para amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, as quais estão representadas na Figura 5.11. Nota-se que o calor específico não apresenta nenhuma descontinuidade que caracterize a ocorrência de transição de fase nas proximidades de 240 K.

5.7 Determinação Experimental dos Expoentes Críticos

Nesta seção realizaremos uma análise detalhada referente à determinação dos expoentes críticos com base nos dados experimentais experimentais para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, utilizando os métodos da equação de estado (Scaling e Arrot-Noakes [59]) e Kouvel-Fisher [59] descritos no capítulo 4. Resultados obtidos na amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ também serão discutidos.

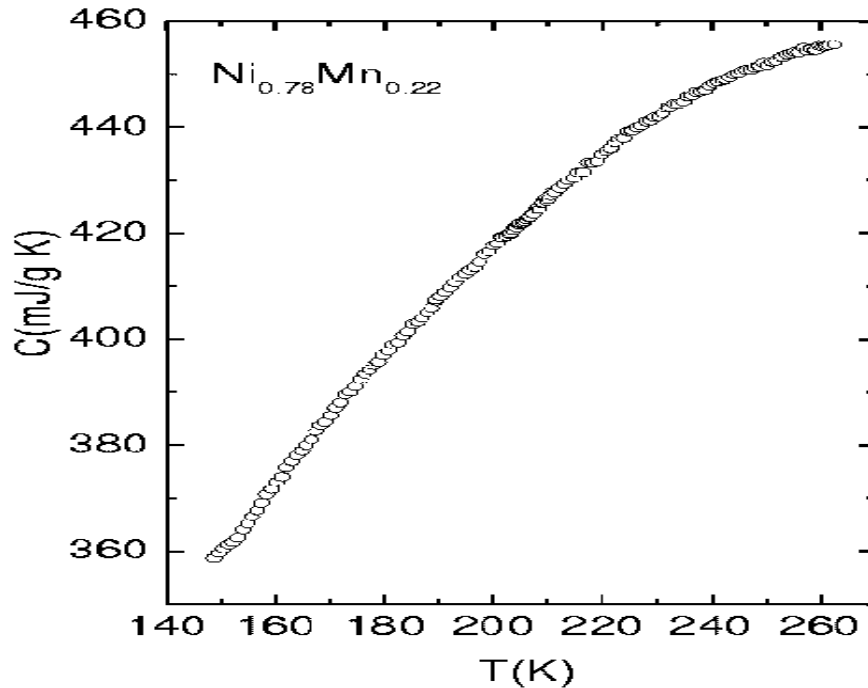


Fig. 5.11: Calor específico como função da temperatura para amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.

5.7.1 Análise com Método de Arrot-Noakes

A partir das isotermas mostradas na Figura 5.3, o gráfico de Arrot modificado mostrado na Figura 5.12 é construído com base na equação de estado de Arrot-Noakes (eq.4.12 do capítulo anterior), ou seja,

$$(H/M)^{1/\gamma} = at + bM^{1/\beta}. \quad (5.1)$$

Obtemos os valores dos expoentes críticos e da temperatura crítica quando as isotermas em diferentes temperaturas tornam-se lineares e paralelas umas às outras. A isoterma que passa pela origem fornece o valor para a temperatura crítica. Neste caso, a temperatura crítica é 229 K. Os valores para os expoentes crítico, $\beta = 0.585$ e $\gamma = 1.71$, linearizaram as isotermas de magnetização tal como mostra a Figura 5.12. Torna-se importante salientar que este ajuste é válido somente na região de campos magnéticos acima de 100 Oe.

A não-linearidade a baixos campos, que é muitas vezes observadas em ligas ferromagnéticas desordenadas, é usualmente associada à anisotropia local. No entanto, a origem deste efeito ainda é muito debatida [91],[59], [92]

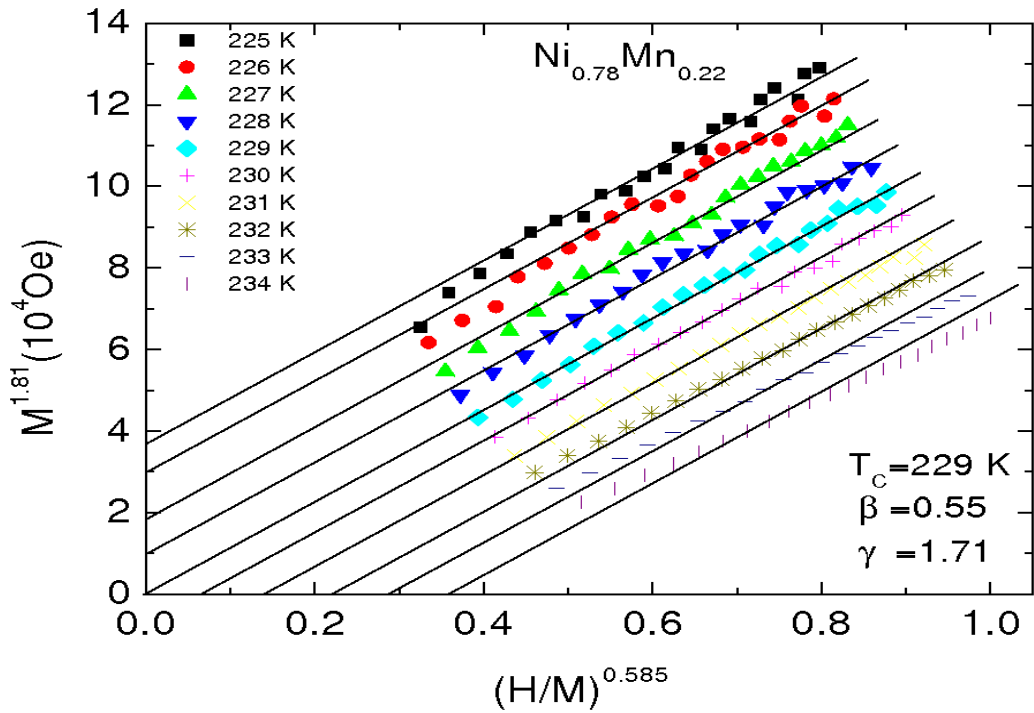


Fig. 5.12: Ajuste de Arrot-Noakes para amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$ nas proximidades da temperatura crítica e para campos magnéticos aplicados entre 100 e 500 Oe.

5.7.2 A Determinação do Expoente δ

Para a obtenção do expoente crítico δ , usamos um procedimento similar ao da seção 4.8.2. Na Figura 5.13 observamos a isoterma crítica em escala logarítmica para a amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$. O ajuste linear define o valor para o expoente crítico estático δ , para o qual obtemos $\delta = 4.7$ em $T_c = 229 \text{ K}$. Em baixos campos observa-se que a isoterma crítica desvia levemente da linearidade.

5.7.3 Análise através do Método de Kouvel-Fisher

Como descrito anteriormente, este método nos permite a obtenção dos expoentes críticos β e γ . Ressaltamos aqui que utilizaremos o mesmo procedimento descrito na seção 4.8.3.

A obtenção do Expoente γ

Através das medidas de magnetização na fase paramagnética da amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$ em função da temperatura (procedimento discutido no Cap2) obtemos o expoentes crítico

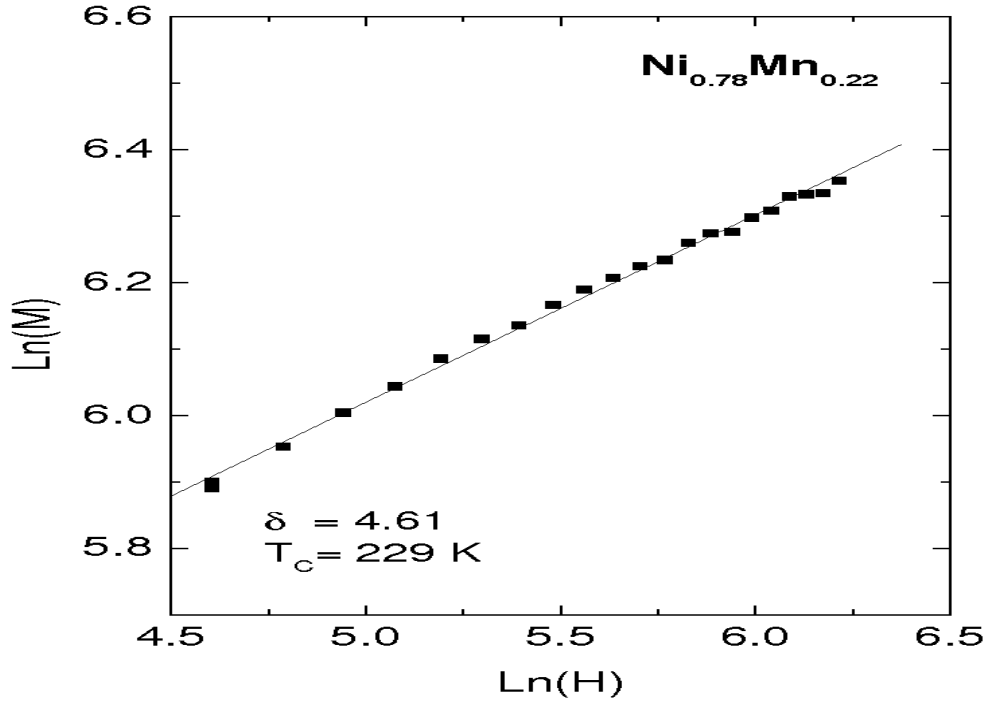


Fig. 5.13: Gráfico logarítmico de magnetização versus campo magnético na isoterma crítica para a amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.

estático γ . A Figura 5.14(a), apresenta o quociente entre a magnetização medida e o campo magnético aplicado de 80 Oe, obtendo-se assim a susceptibilidade ($\chi_{DC} = \frac{M}{H}$) na faixa superior a T_c . Na Figura 5.14(b) observamos, na derivada da susceptibilidade em relação a temperatura, a presença de um mínimo nas proximidades de 220 K, o qual indica a transição de fase para-ferromagnética. Na Figura 5.14 (c) representamos a quantidade $Y = -\chi_{DC}/(d\chi_{DC}/dT)$ em função da temperatura. Esta quantidade mostra comportamentos lineares acima de T_c . O regime próximo à transição na figura 5.14 (c) fornece $\gamma_1 = 1.71$ e $T_c = 223.6$ K para o campo magnético aplicado de 80 Oe. Em temperaturas mais altas outro regime linear é observado e seu expoente é $\gamma_2 = 1.07$. Esse procedimento foi realizado para vários campos magnéticos aplicados entre 20 e 500 Oe. Porém, acima de 100 Oe não foi possível a obtenção do expoente γ devido ao arredondamento das curvas H versus T no regime assintótico, nas proximidades da transição de fase para-ferromagnética. A tabela 5.1 apresenta os valores obtidos para o expoente crítico γ e a temperatura crítica (T_c) em diferentes campos magnéticos aplicados.

Utilizamos um processo análogo para analisar as medidas de susceptibilidade AC,

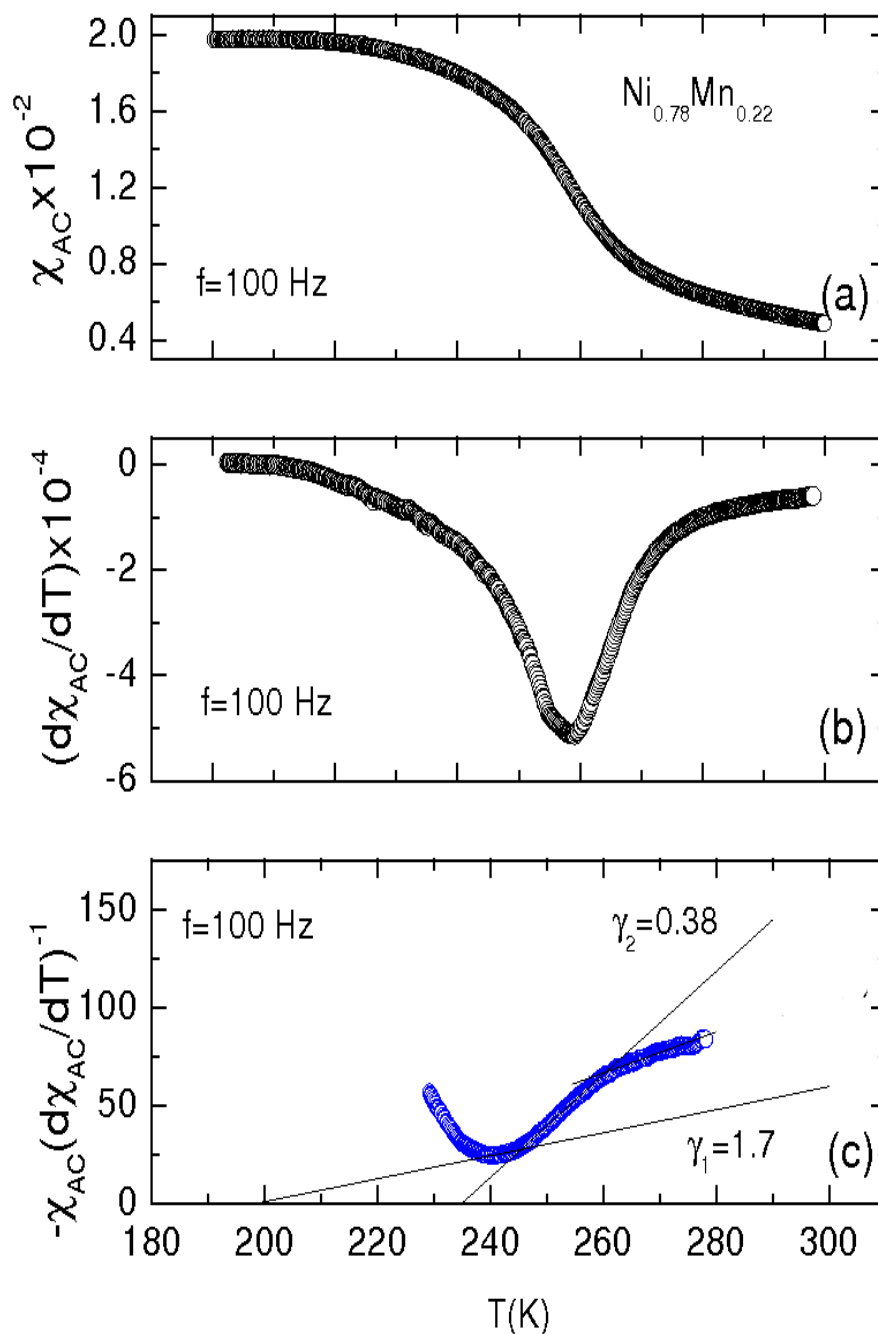


Fig. 5.14: (a) Susceptibilidade DC em função da temperatura para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. (b) Derivada da susceptibilidade em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel Fisher, eq.4.10, para a susceptibilidade paramagnética do $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.

Sistema	H(Oe)	T_C	γ
$Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	10	212.08 ± 1	1.72 ± 0.07
	20	216.2 ± 1	1.70 ± 0.09
	30	216.8 ± 1	1.71 ± 0.07
	40	216.9 ± 1	1.71 ± 0.05
	50	216.3 ± 1	1.72 ± 0.09
	60	223.9 ± 3	1.71 ± 0.01
	70	223.7 ± 4	1.72 ± 0.02
	80	223.6 ± 3	1.71 ± 0.02
	100	223.7 ± 3	1.71 ± 0.01
média		219.2 ± 4	1.71 ± 0.06

Tab. 5.1: O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$, em diversos campos aplicados no limite $H < 100$ Oe.

as quais estão representados na Figura 5.15 para medidas em campo de excitação $h_{ac}=10$ Oe e frequência de 600 Hz. A função Y, relativa ao método de Kouvel-Fisher aplicado à susceptibilidade AC, mostra um comportamento peculiar neste sistema.

Um estreito regime assintótico logo acima de T_c é caracterizado pelo expoente $\gamma_1=1.75$. Este valor é aproximadamente coincidente com aquele determinado através dos resultados de susceptibilidade DC. Porém, a temperatura crítica extrapolada é significativamente inferior àquela deduzida das medidas DC, tanto com o método Arrot-Noakes quanto com o método de Kouvel-Fisher. Acima do regime assintótico ocorre uma região caracterizada por um expoente anômalo, $\gamma_2 = 0.37$, conforme mostrado na Figura 5.15(c). A origem deste comportamento é desconhecida até o momento. Para temperaturas maiores ocorre um crossover para o comportamento do tipo campo-médio, com expoente $\gamma_3 \simeq 1$. Análises similares ao exemplo representativo da Figura 5.15 foram realizadas em medidas de susceptibilidade AC obtidas para outras frequências. Os resultados para o expoente assintótico e temperatura crítica estão listados na Tabela 5.2 para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$.

A mesma sistemática, foi empregada na análise dos resultados de magnetização na fase paramagnética da amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Neste caso, foram aplicados campos magnéticos no intervalo entre 40 a 1200 Oe. Porém a função de Kouvel-Fisher obtida das medidas DC não mostra linearidade com a temperatura em nenhum intervalo estudado acima de T_c . Portanto, não foi possível a obtenção do expoente γ . Por outro lado, medidas

Sistema	f(Hz)	T_C	γ
$Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	100	$198.70 \pm$	1.71 ± 0.13
	200	199.50 ± 1	1.70 ± 0.07
	300	203.52 ± 1	1.69 ± 0.10
	600	202.89 ± 2	1.75 ± 0.20
média		201.15 ± 2.8	1.71 ± 0.02

Tab. 5.2: O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ em diferentes frequências. O campo de excitação é $h_{ac} = 10Oe$.

Sistema	f(Hz)	T_C	γ
$Ni_{0.79}Mn_{0.21}$	100	278.4 ± 1	$1,71 \pm 0.06$
	200	283.5 ± 1	1.71 ± 0.01
	300	279.1 ± 1	1.70 ± 0.05
	600	283.1 ± 1	1.71 ± 0.04
	1000	283.8 ± 2	1.70 ± 0.04
	2000	279.5 ± 1	1.71 ± 0.05
	6000	279.7 ± 1	1.71 ± 0.04
média		281 ± 2	1.71 ± 0.01

Tab. 5.3: O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher para o sistema de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$,

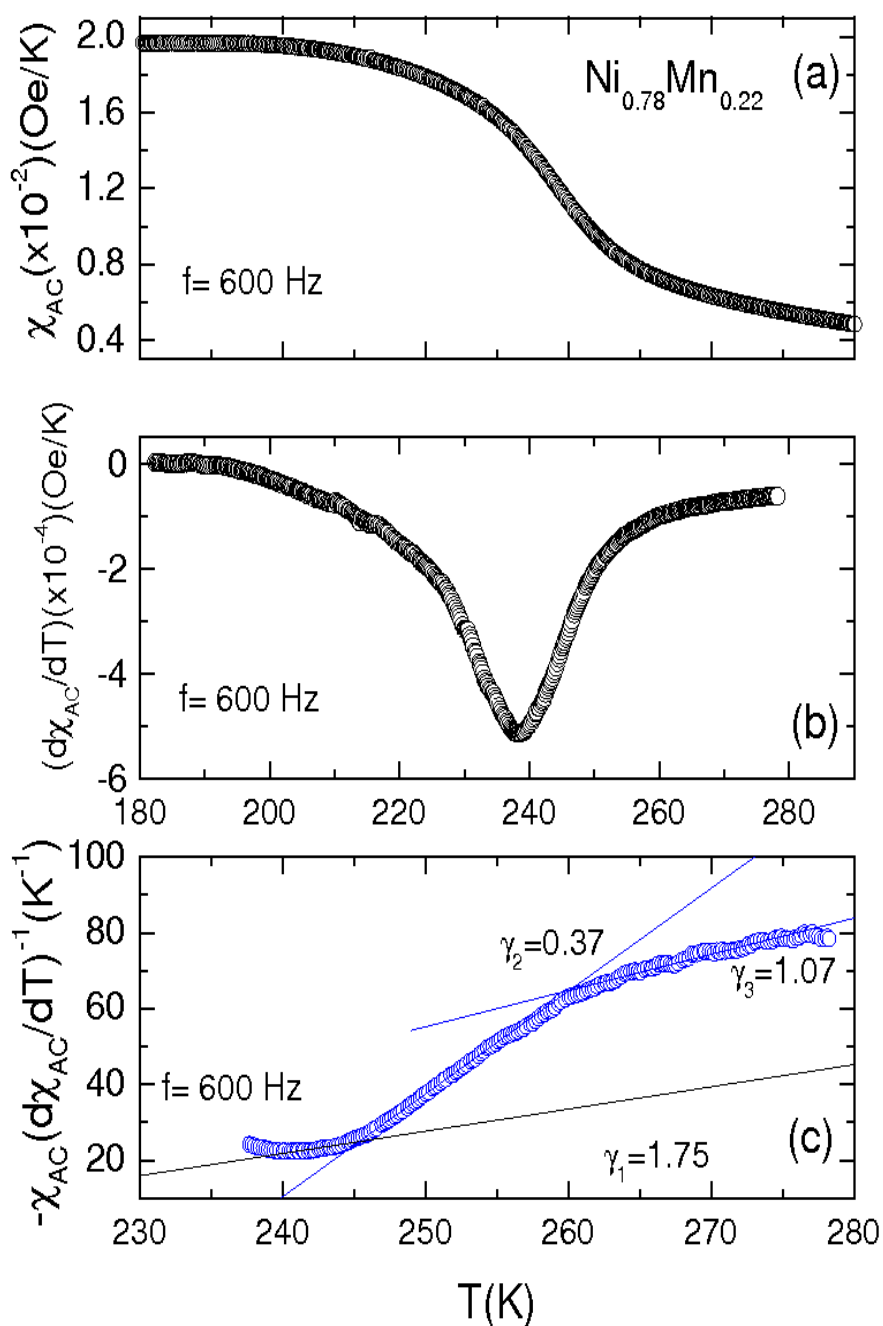


Fig. 5.15: (a) Medida típica de susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra de $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$. (b) Derivada da susceptibilidade AC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel-Fisher. O campo excitação aplicado foi $h_{ac} = 10 \text{ Oe}$.

de susceptibilidade AC em frequências do intervalo de 100 a 6000 Hz nos permitiram estimar o expoente crítico γ , no regime assintótico, conforme ilustra Figura 5.16. Neste exemplo é aplicada a frequência de 2000 Hz e o campo de excitação aplicado é de $h_{ac}=5$ Oe. Para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, obtemos $\gamma = 1.71$ e $T_c = 281$ K. Esta amostra também apresenta um regime em lei de potência acima de 300 K, caracterizado pelo expoente anômalo $\gamma=0.78$. Neste intervalo de temperatura já seria esperado um comportamento tipo Curie Weiss, com o expoente crítico igual a 1. Os valores do expoente crítico γ para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ obtidos a partir de medidas de susceptibilidade AC em diferentes frequências (intervalo entre 100 e 6000 Hz) são mostrados na Tabela 5.3.

A Determinação do Expoente β

Para esta análise é necessário tomar os dados de magnetização em relação à temperatura para valores abaixo de T_c (ver Figura 5.17). Como já foi discutido no capítulo 4, deve-se corrigir os dados da magnetização pelos efeitos do campo desmagnetizante. Este procedimento está descrito detalhadamente na seção 4.8.5.

Assim, limitamos a análise do comportamento crítico da magnetização com o método de Kouvel-Fisher ao intervalo de campos magnéticos entre 150 Oe e 500 Oe. Mesmo neste intervalo, os efeitos do campo desmagnetizante são relevantes.

Conhecendo a dependência da magnetização com o campo magnético para vários valores de temperatura, reconstruímos a curva $M \times T$ para um campo magnético interno fixo de 400 Oe. O campo interno, conforme a eq.4.4, é dado por $H_i = H_a - \eta M$, onde H_a representa o campo aplicado. A magnetização foi calculada através da expressão 4.17 para cada uma das temperaturas. Supomos que o campo $H_i=400$ Oe é suficientemente baixo para não afastar significamente o sistema do ponto crítico. Assim, consideramos que os dados para a magnetização no campo interno de 400 Oe são representativos da magnetização espontânea, idealmente medida em campo aplicado nulo. Então, determinamos o expoente crítico β através da eq.(4.11). O resultado pode ser observado na Figura 5.17, da qual é extraído o valor $\beta=0.55$. Para verificar o quão confiável é o método, repetimos o mesmo procedimento para $H_i=300$ Oe e $H_i=500$ Oe e obtivemos $\beta=0.55$ para os dois campos. No entanto, para a amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ não obtivemos resultados consistentes

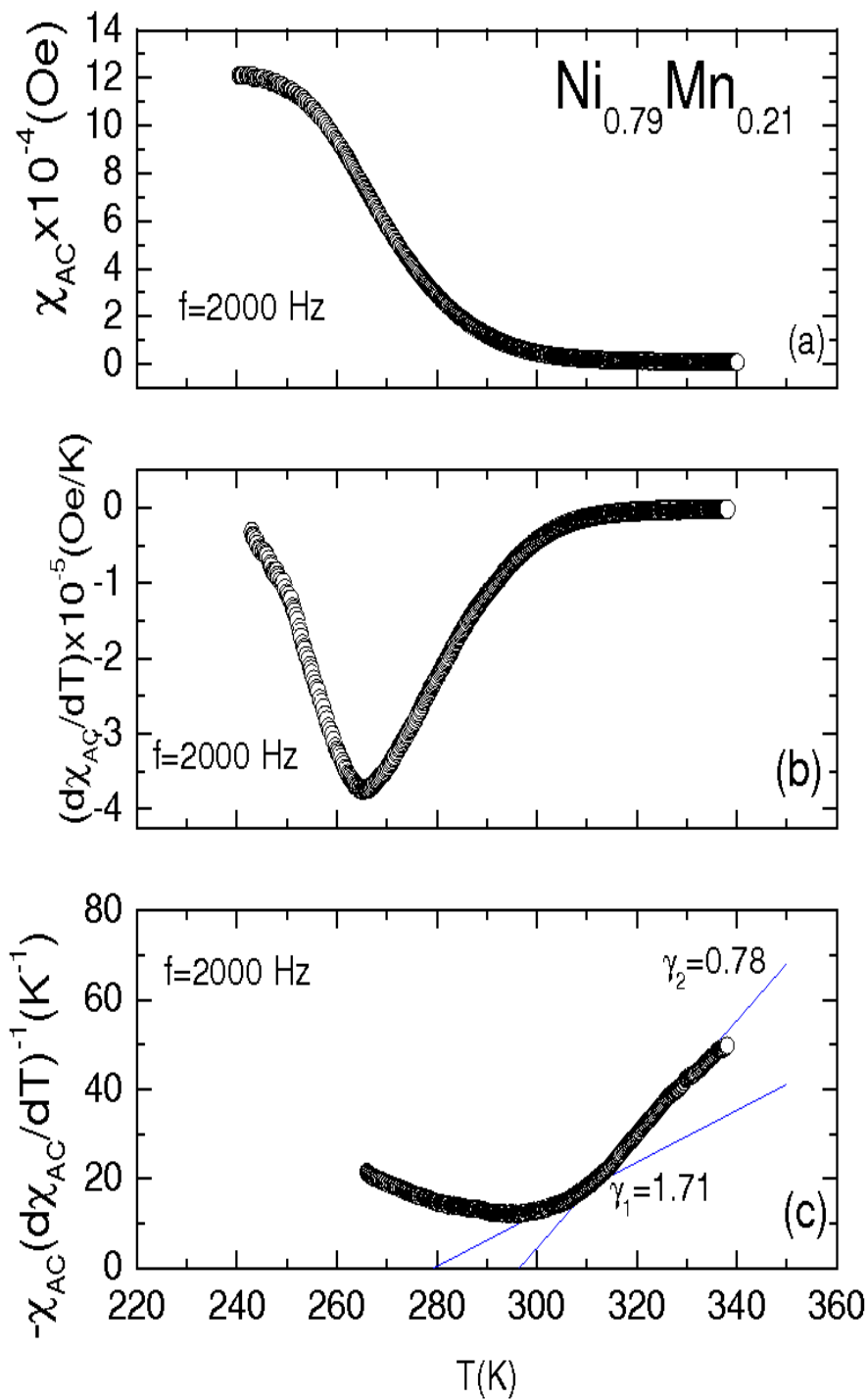


Fig. 5.16: (a) Medida típica de susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra de $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. (b) Derivada da susceptibilidade AC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel-Fisher. O campo excitação aplicado na amostra foi $h_{ac} = 5$ Oe.

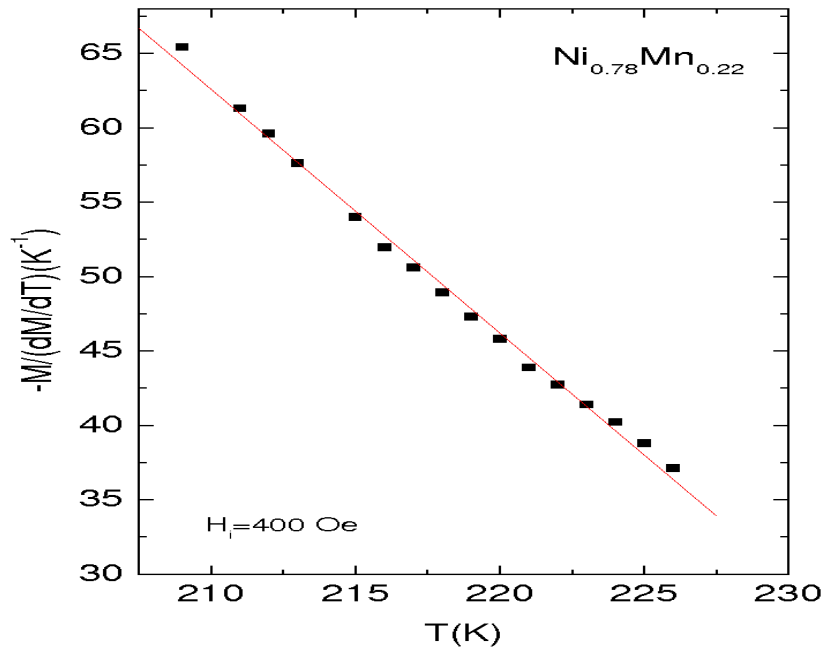


Fig. 5.17: Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ medida no campo interno $H_i=400$ Oe. O campo interno é obtido conforme explicado no texto

para o expoente crítico β usando este método.

5.7.4 O Método de Scaling

Após a obtenção dos expoentes críticos pelos métodos de Arrot-Noakes e Kouvel-Fisher, realiza-se a análise de comportamento crítico da magnetização através do método de scaling. Este método, baseia-se no colapso de uma curva de plots logarítmicos de $M|t|^{-\beta}$ versus $H|t|^{-\beta+\gamma}$ para diversas medidas realizadas no intervalo de temperaturas em torno T_c . O resultado é mostrado na Figura 5.18 para a amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. O escalonamento foi obtido para os valores $\beta=0.55$, e $\gamma=1.71$ e $T_c=229$ K, no intervalo de 100 Oe a 500 Oe. Este resultado confirma os valores dos parâmetros críticos obtidos através dos métodos de Arrot-Noakes e Kouvel-Fisher.

O método de scaling não foi aplicado no caso da amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Todas as análises de fenomenologia crítica nesta amostra são prejudicadas pelo fato de que a temperatura crítica está muito próxima da temperatura ambiente e o equipamento experimental disponível não permite a realização de medidas em temperaturas muito superiores a T_c .

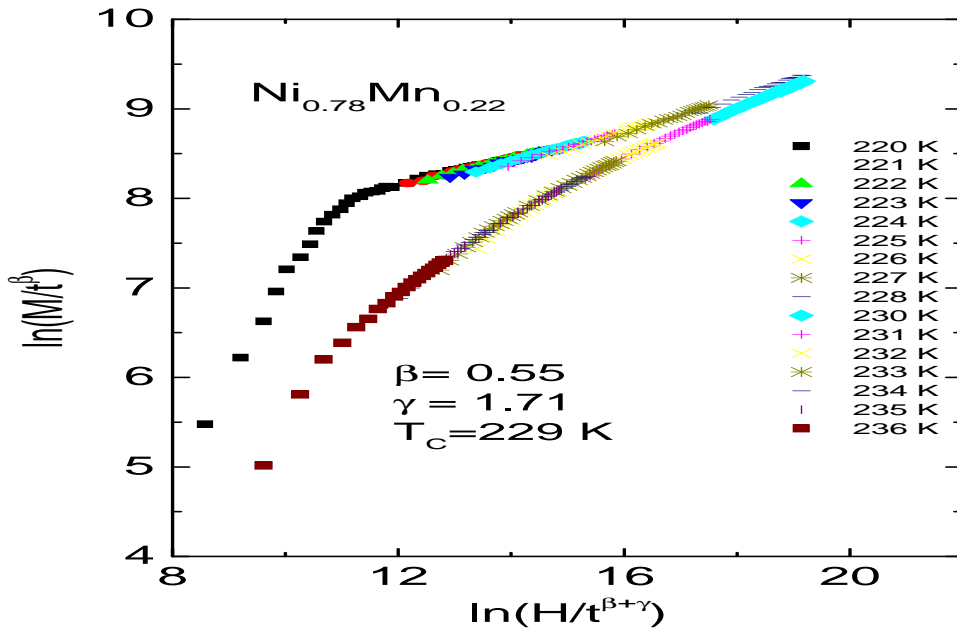


Fig. 5.18: *Scaling da magnetização para a amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$ nas proximidades da temperatura crítica para campos magnéticos aplicados de 100 a 500 Oe.*

5.7.5 A Determinação do Expoente Crítico α

Como foi visto no capítulo 4, o expoente crítico α caracteriza o comportamento crítico do calor específico. Nas vizinhanças de uma transição de fase de segunda ordem, a variação em temperatura do calor específico é dado pela lei de potência descrita na eq(2.9). Todavia, em nossas amostras $\text{Ni} - \text{Mn}$ nenhuma anomalia foi observada no calor específico nas vizinhanças da transição de fase para-ferromagnética.

Alternativamente, o expoente crítico α pode ser estimado a partir da análise da derivada da resistividade elétrica em função de temperatura, que diverge do mesmo modo que calor específico na região crítica, ou seja:

$$\frac{d\rho}{dT} = \frac{C^\pm}{\alpha} (t^{-\alpha} - 1) + D^\pm, \quad (5.2)$$

onde C^\pm são amplitudes críticas, D^\pm são constantes que representam a contribuição não crítica à resistividade, e α é o expoente crítico do calor específico. Os símbolos \pm referem-se à região de temperaturas acima(+) e a abaixo(-) da temperatura crítica.

A Figura 5.19 mostra um resultado para $d\rho/dT$ nas proximidades da transição ferromagnética para a amostra de $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$. O campo magnético aplicado é de 75 Oe. O

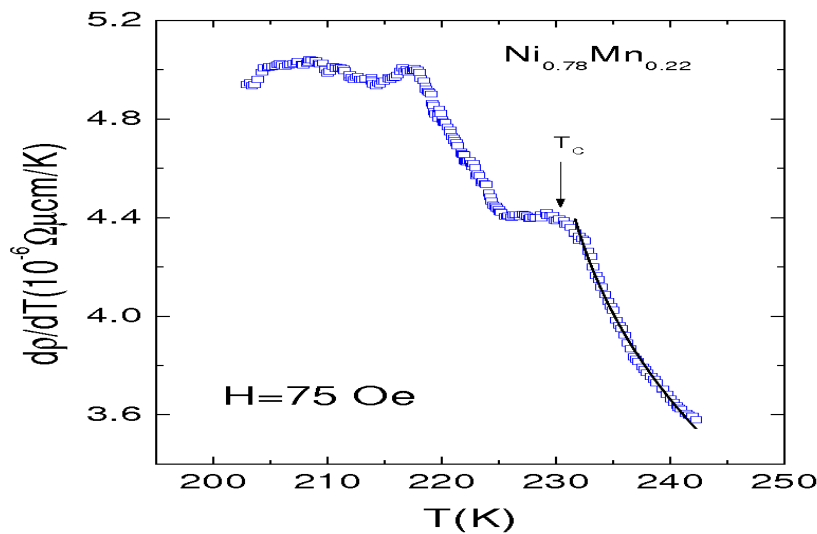


Fig. 5.19: Derivada da resistividade em função da temperatura para a amostra $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$ nas vizinhanças da temperatura de Curie na presença de campo magnético aplicado de 75 Oe. A linha corresponde a um ajuste com a equação 5.20.

ajuste da Eq. 5.2 aos dados experimentais corresponde à linha contínua na Figura 5.19. O qual ajuste foi realizado somente para temperaturas acima de T_c . Abaixo de T_c a análise é complicada pela ocorrência do efeito de superzona, que fica evidente nas curvas ρ versus T , mostradas na Figura 5.5.

Sistema	H(Oe)	α
$\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$	0	-0.82 ± 0.03
	10	-0.81 ± 0.08
	30	-0.82 ± 0.09
	50	-0.77 ± 0.04
	75	-0.78 ± 0.01
	100	-0.82 ± 0.09

Tab. 5.4: Valores do expoente crítico α obtidos através da análise da derivada dp/dt para as medidas de resistividade elétrica nas amostras $\text{Ni}_{0.78}\text{Mn}_{0.22}$

Sistema	α	β	γ	δ	método
$Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ neste trabalho		0.585	1.71	4.69	Arrot-Noakes, isoterma crítica.
		0.55	1.71		Kouvel-Fisher
			1.71		suscep.AC Kouvel-Fisher
	0.8	0.55	1.71		Scaling resistividade(acima de T_C)
$Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ neste trabalho		0.55	1.71	5.23	Arrot-Noakes, isoterma crítica.
		0.55	1.71		Kouvel-Fisher
			1.71		suscep.AC Kouvel-Fisher
		0.55	1.71		Scaling
médias	-0.8	0.55 ± 0.01	1.71 ± 0.01		

Tab. 5.5: *Expoentes críticos para os sistemas reentrantes $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ determinado neste trabalho.*

5.8 Resumo sobre o Comportamento Crítico nas Ligas $Ni - Mn$

A tabela 5.5 apresenta os resultados obtidos para os expoentes críticos nas proximidades de T_c para os sistemas reentrantes $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$ através de medidas de resistividade elétrica, magnetização e susceptibilidade AC.

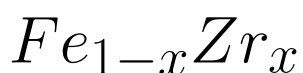
Em nossos sistemas $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$, os expoentes críticos β e γ apresentam valores intermediários entre aqueles de um ferromagnético clássico e os encontrados em sistemas vidro-de-spin. Este fato evidencia que o estado intermediário ferromagnético em sistemas reentrantes é afetado pela frustração associada à desordem. A desordem não-trivial é um elemento importante no comportamento crítico destes sistemas.

Observamos a existência de um regime em lei de potência intermediário entre o regime crítico assintótico e a região campo médio nas medidas de susceptibilidade AC. Neste regime, os valores do expoente crítico γ encontrados são da ordem de $\gamma=0.38$ para amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $\gamma=0.78$ para amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Não se conhece exatamente a origem deste regime intermediário. Possivelmente, ele está associado à desordem [93] e à estabilização de uma fase antiferromagnética em regiões limitadas da amostra em temperaturas próximas a T_c , conforme mostram as medidas de resistividade.

Tomando os valores médios dos expoentes críticos reportados na Tabela 5.5, podemos observar que as relações de scaling de Rushbroohke, Griffitts e Windon são satisfeitas.

Capítulo 6

Sistemas Magnéticos Reentrantes



Neste capítulo estudaremos fitas amorfas de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$. O estudo concentra-se apenas em medidas de magnetização e susceptibilidade AC em função da temperatura. Estas técnicas experimentais já foram descritas em capítulos anteriores. Descreveremos também a preparação das amostras e discutiremos seu comportamento crítico nas vizinhanças da transição para-ferromagnética.

6.1 Preparação das Amostras

As amostras de $Fe_{1-x}Zr_x$ utilizadas neste estudo apresentam concentração de Zr variando entre 8 a 10% e foram preparadas por D.H. Ryan e col.[28] do Department of Pure and Applied Physics, Trinity College, Dublin. As amostras foram cedidas para o desenvolvimento deste trabalho. As fitas amorfas, as quais se encontram em um estado metaestável, são produzidas pela técnica de solidificação ultra rápida, “melt spinning”. Esta técnica consiste em ejetar a liga metálica em estado líquido sobre a superfície polida de um cilindro metálico que gira em alta rotação, e que se encontra a temperatura ambiente. O procedimento é realizado de tal forma que o contato térmico é muito eficiente, produzindo uma taxa de resfriamento da ordem de 10^6 °C/s. Isto faz com que a liga retorne ao estado sólido, mas aprisionando uma configuração característica de seu estado líquido, correspondente a uma estrutura atômica completamente desordenada.

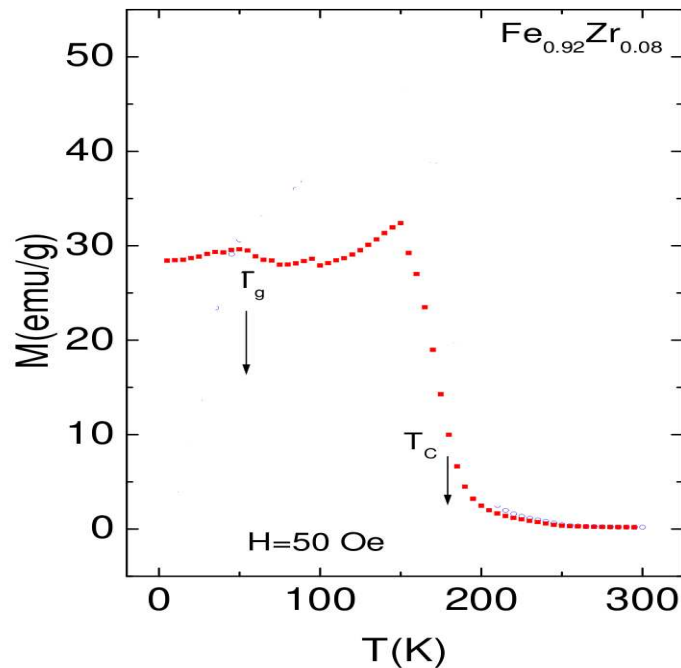


Fig. 6.1: Magnetização em função da temperatura para amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$ medida segundo o procedimento FC. O campo magnético aplicado de $H = 50$ Oe.

6.2 Magnetização

Nosso estudo da magnetização das fitas amorfas de $Fe - Zr$ realizou-se através de medidas no magnetômetro de SQUID, já descrito anteriormente. Foram obtidas medidas de magnetização em função da temperatura, para intensidade de campos magnéticos constante, por meio dos procedimentos ZFC (ver a Figura 6.1) e FC.. Podemos observar o comportamento da transição magnética para uma amostra de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$ na Figura 6.1, a qual apresenta a magnetização em função da temperatura num campo magnético aplicado de 50 Oe. A resposta magnética manifesta o surgimento de magnetização espontânea. A temperatura da transição ferro-paramagnética é aproximadamente $T_c \simeq 186$ K. Nota-se que abaixo de T_c , a magnetização FC cresce até atingir um valor aproximadamente constante.

A magnetização ZFC, apresenta uma inflexão acentuada na temperatura de congelamento $T_g = 50$ K. Supõe-se que nesta temperatura o sistema evolui para uma fase do tipo vidro de spin. Este comportamento é geralmente descrito como característico de um sistema reentrante. Segundo a interpretação usual, para temperaturas abaixo de $T_g = 50$ K, ocorre o congelamento das componentes transversais dos spins em direções aleatórias,

o qual é causado pela frustração gerada pela desordem atômica e a competição entre as interações spin-spin do tipo ferromagnética e antiferromagnética. Também foram realizadas medidas de magnetização para uma amostra de $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$, obtendo-se a temperatura crítica $T_c = 215$ K e a transição tipo vidro-de-spin nas proximidades de $T_g = 70$ K.

6.3 Susceptibilidade AC

Podemos ver na Figura 6.2(a) a componente real da susceptibilidade AC (χ') em função da temperatura na faixa de temperaturas entre 0 a 275 K para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$. As frequências aplicadas nesta medida variam entre 100 e 3000 Hz, com campo de excitação de $h_{ac} = 10$ Oe. Observa-se que a variação da frequência não altera a parte real da susceptibilidade. Para temperaturas superiores a 200 K, a susceptibilidade χ' mostra um comportamento típico de um sistema paramagnético. A transição magnética é bem definida e ocorre nas proximidades de 186 K. A componente real χ' mostra uma inflexão em $T_g \simeq 50$ K de acordo com a magnetização ZFC da Figura 6.1(a)). A Figura 6.2(b) mostra a componente imaginária da susceptibilidade AC (χ'') nos mesmos intervalos de temperatura e frequência para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$. Observa-se que a frequência de medida influencia fortemente χ'' em toda a faixa de temperatura inferiores a T_c . Na fase magneticamente ordenada, χ'' mostra um comportamento complexo, passando por um máximo cuja a posição (entre 130 e 150 K) aumenta com a frequência e mostrando inflexões em aproximadamente 80 K e 50 K.

A Figura 6.3(a) mostra a componente real da susceptibilidade AC χ' para a amostra $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ em função da temperatura em frequências entre 100 e 3000 Hz e $h_{ac} = 10$ Oe. O resultado é similar aquele obtido para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, porém a temperatura crítica desloca-se para $T_c = 215$ K. O comportamento da parte imaginária χ'' está mostrado na Figura 6.3(b).

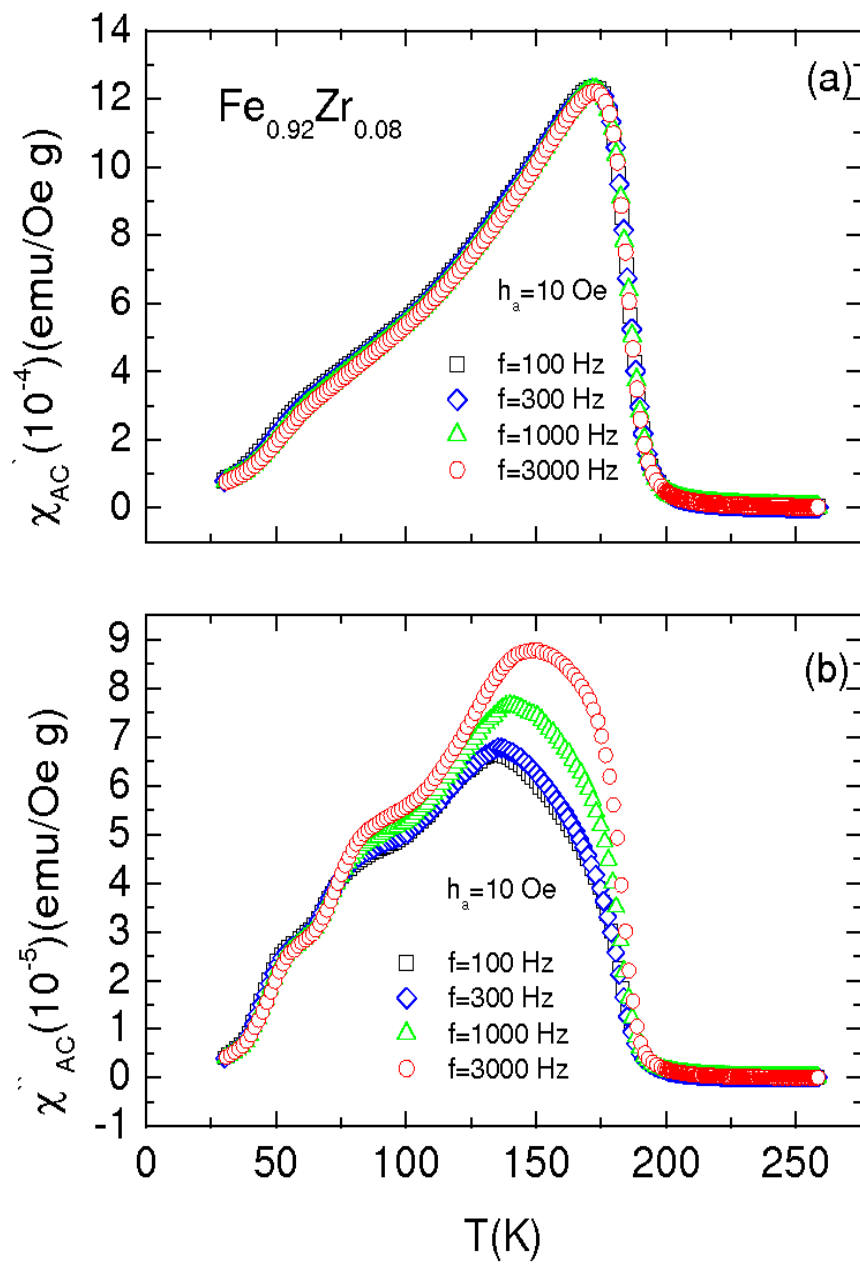


Fig. 6.2: (a) Componente real susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $\text{Fe}_{0.92}\text{Zr}_{0.08}$ medida em diferentes frequências. (b) Componente imaginária da susceptibilidade AC para a mesma amostra nas mesmas frequências e temperaturas.

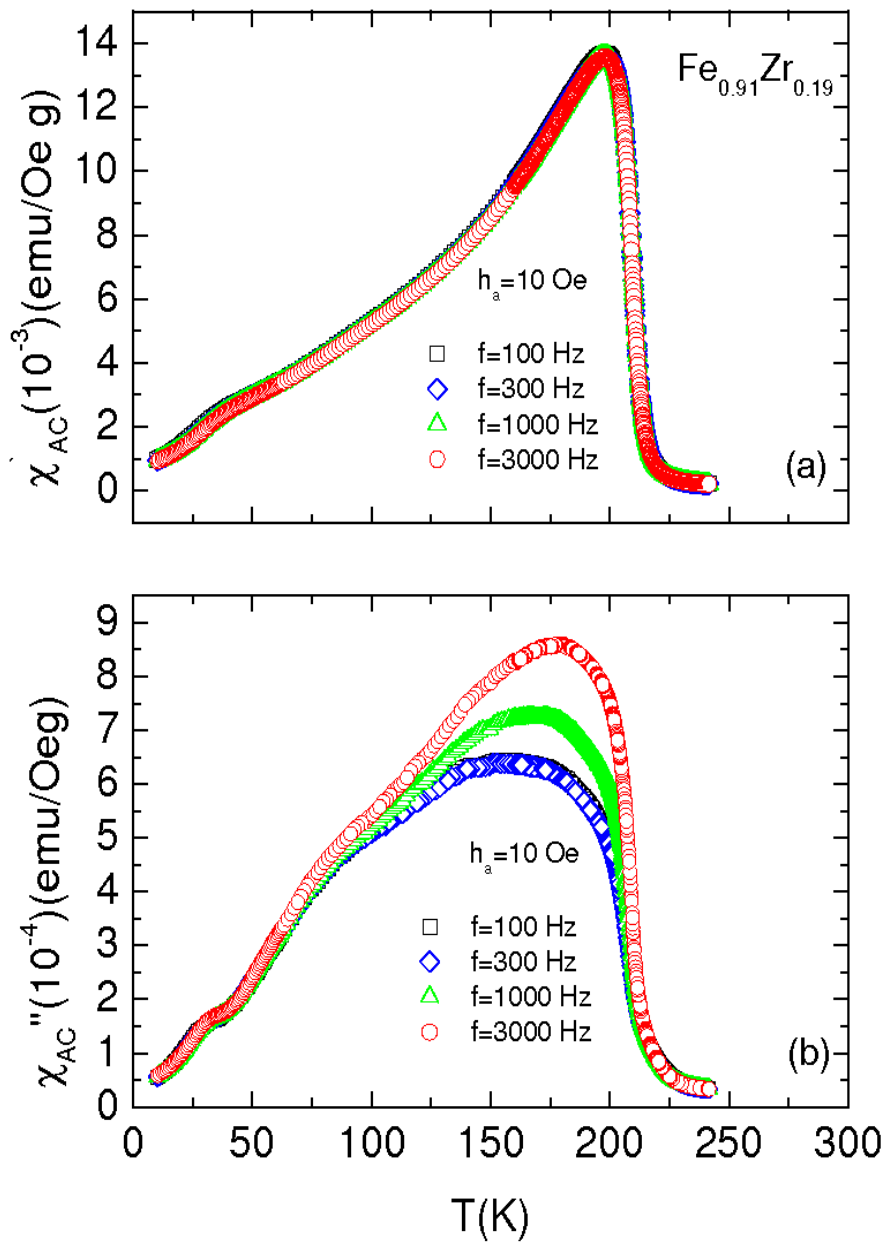


Fig. 6.3: (a) Componente real susceptibilidade AC em função da temperatura para a amostra $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ em diferentes frequências. (b) Componente imaginária da susceptibilidade AC para a mesma amostra nas mesmas frequências e temperaturas.

6.4 Determinação Experimental dos Expoentes Críticos

Nesta seção realizaremos análises referentes à determinação dos expoentes críticos com base nos dados experimentais de magnetização e susceptibilidade AC para as amostras $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$, utilizando o método de Kouvel-Fisher [59] descrito no capítulo 4.

6.4.1 Análise através do Método de Kouvel-Fisher

Como discutido anteriormente este método nos permite a obtenção dos expoentes críticos β e γ . Ressaltamos aqui que utilizaremos o mesmo procedimento descrito na seção 4.8.3.

6.4.2 A Obtenção do Expoente γ

A Figura 6.4(a) apresenta χ'_{AC} para uma frequência de 1000 Hz e campo magnético de excitação $h_{ac} = 10$ Oe. Calculamos então a derivada de χ'_{AC} em relação à T, a qual é mostrada na Figura 6.4(b). A presença de um mínimo pronunciado em $T \simeq 182$ K indica a transição de fase para-ferromagnética. O painel (c) representa a quantidade $Y = -\chi'_{AC}/(d\chi'_{AC}/dT)$ em função da temperatura. Esta quantidade mostra um comportamento linear acima de T_c . O regime mostrado na Figura 6.4 fornece os valores: $\gamma = 1.78$ e $T_c = 185$ K. A tabela 6.1 apresenta os valores obtidos para o expoente crítico γ e a temperatura crítica (T_c) em diferentes frequências para a amostra de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$.

Realizando o mesmo procedimento com as medidas susceptibilidade AC para amostra $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ obtemos o expoente crítico γ para esta amostra. Na Figura 6.5 temos resultados obtidos para a frequência aplicada de 100 Hz e o campo de excitação de $h_{ac} = 10$ Oe. Da análise mostrada no painel 6.5(c), obtemos $\gamma = 1.75 \pm 0.02$ e $T_c = 207.3 \pm 3$ K.

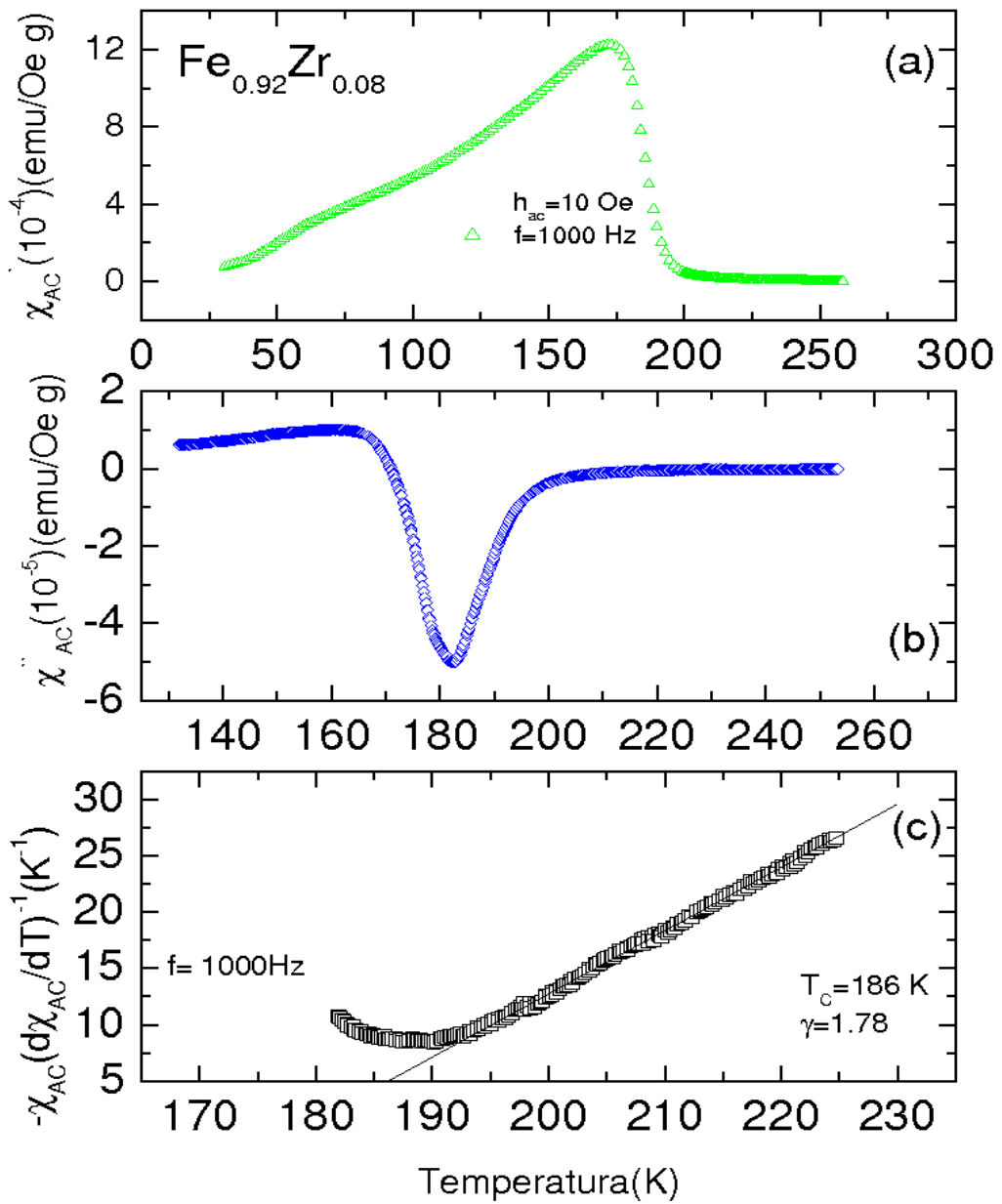


Fig. 6.4: (a) Medida típica de susceptibilidade AC em função da temperatura para amostra de $\text{Fe}_{0.92}\text{Zr}_{0.08}$. (b) Derivada da susceptibilidade AC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel-Fisher $Y = -\chi_{AC}/(d\chi'_{AC}/dT)$ versus T . O campo de excitação aplicado foi $h_{ac} = 10 \text{ Oe}$.

Sistema	f(Hz)	T_C	γ
$Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	100	184.67 ± 0.8	1.77 ± 0.03
	300	184.65 ± 0.7	1.76 ± 0.03
	1000	185.02 ± 0.8	1.77 ± 0.01
	3000	185 ± 1	1.74 ± 0.01
média		184.8 ± 0.2	1.76 ± 0.01

Tab. 6.1: O expoente crítico γ obtido pela técnica de Kouvel-Fisher aplicada para a susceptibilidade AC para o sistema de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, em diferentes frequências e em campo de excitação $h_{ac}=10$ Oe.

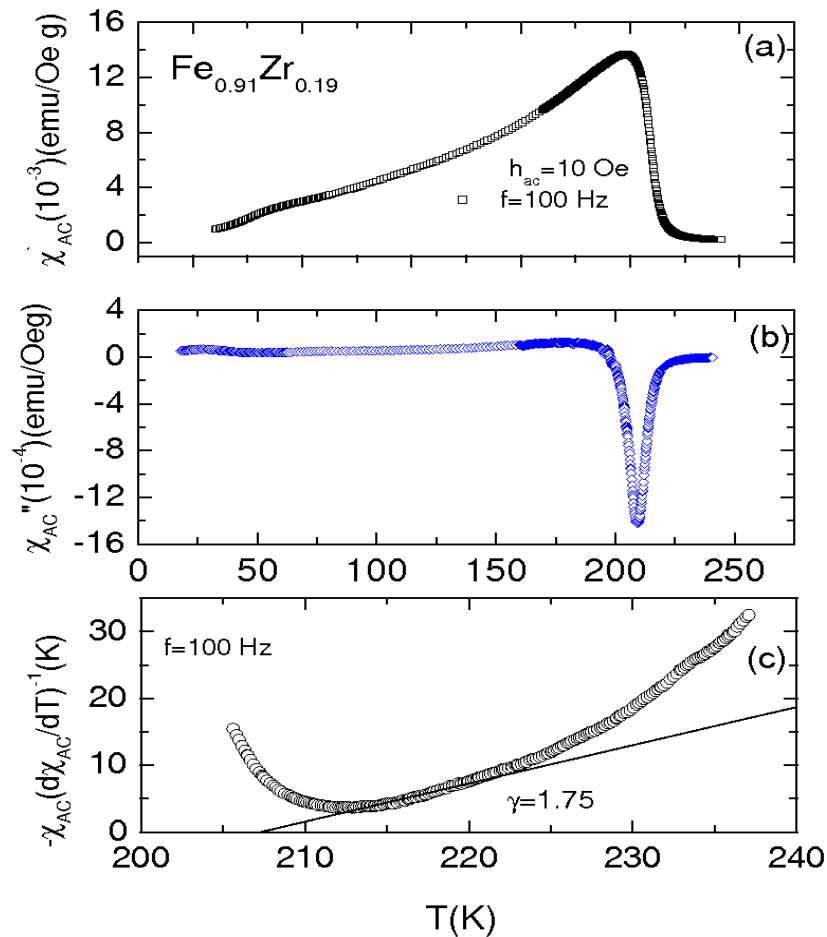


Fig. 6.5: (a) Medida típica de susceptibilidade AC em função da temperatura para amostra a $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$. (b) Derivada da susceptibilidade AC em função da temperatura. (c) Gráfico de Kouvel-Fisher. O campo excitação aplicado foi $h_{ac}=10$ Oe e frequência de $f=100$ Hz.

6.4.3 A Determinação do Expoente β

Para esta análise foi necessário tomar os dados de magnetização em função da temperatura abaixo da temperatura crítica. Neste caso consideramos o fator desmagnetizante nulo pois as amostras apresentam a forma de uma fita muito delgada. Para a obtenção do expoente β para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$ utilizamos o procedimento descrito no cap.2. A Figura 6.6 apresenta $y = M/(dM/dT)$ em função da temperatura para $H=100$ Oe, onde obtemos o valor do expoente $\beta = 0.66 \pm 0.02$ e $T_c=187,9$ K. Na Tabela 6.2 estão listados os valores do expoente β obtidas para as outras amostras de Fe-Zr investigadas neste trabalho.

Sistema	H(Oe))	T_C	β
$Fe_{0.92}Zr_{0.08}$	30	186.9 ± 6	0.62 ± 0.03
	70	186.06 ± 4	0.66 ± 0.02
	100	187.9 ± 4	0.66 ± 0.02
$Fe_{0.91}Zr_{0.09}$	70	213.3 ± 4	0.66 ± 0.01
$Fe_{0.90}Zr_{0.10}$	60	212.7 ± 24	0.66 ± 0.02
média			0.65 ± 0.02

Tab. 6.2: O expoente crítico β obtido pela técnica de Kouvel-Fisher aplicado à magnetização dos sistemas de Fe-Zr estudados neste trabalho. Diferentes campos magnético são aplicados.

6.4.4 A Determinação do Expoente δ

Para a obtenção do expoente crítico δ , usamos um procedimento similar ao da seção 4.8.2. Na Figura 6.7 observamos a isoterma crítica em escala logarítmica para a amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$. O ajuste linear define o valor para o expoente crítico δ , para o qual obtemos $\delta= 3.22$, em $T_c= 186$ K.

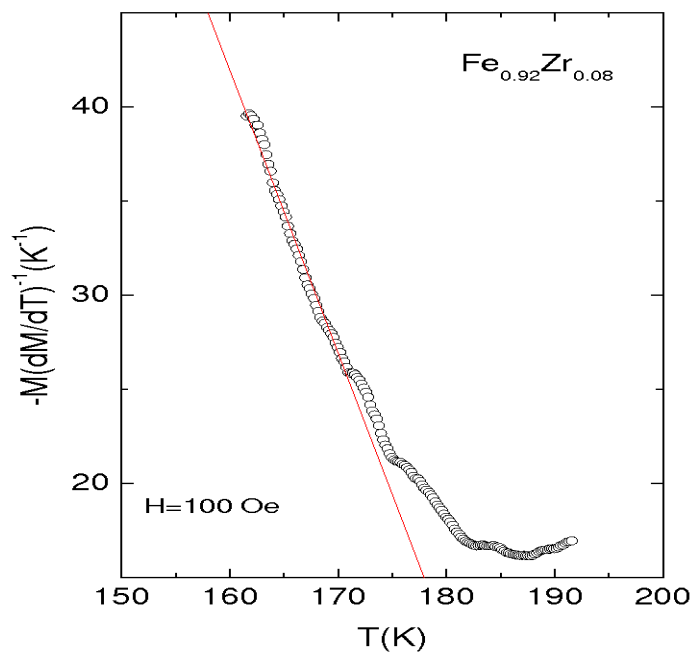


Fig. 6.6: Gráfico de Kouvel-Fisher para magnetização da amostra $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, medida no campo magnético $H=100$ Oe.

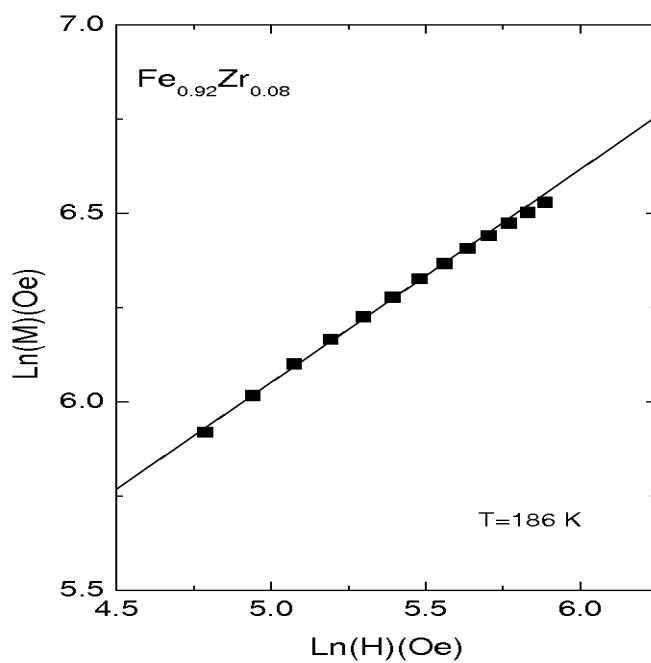


Fig. 6.7: Gráfico do logaritmo de magnetização versus campo magnético para a isoterma crítica da amostra de $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$.

6.5 Comportamento dos Expoentes Críticos nas Ligas $Fe - Zr$

A Tabela 6.3 apresenta os expoentes críticos obtidos para nossas amostras $Fe_{0.92}Zr_{0.08}$, $Fe_{0.91}Zr_{0.09}$ e $Fe_{0.90}Zr_{0.10}$ juntamente com valores reportados na literatura. Neste estudo nós investigamos somente a magnetização e a susceptibilidade AC e aplicamos também apenas o método de Kouvel-Fisher para extrair os expoentes críticos β e γ .

Fica evidente que os valores para os expoentes encontrados nos sistemas de Fe-Zr amorfo são anômalos. Embora nossos resultados mostrem uma certa sistemática, ocorre uma dispersão significativa entre estes índices, mesmo para as ligas que têm a mesma composição, quando os comparamos com os dados referidos na literatura. Este fato é uma indicação de que o comportamento crítico nestes ferromagnetos amorfos é fortemente dependente de amostra. Algumas amostras tem comportamento típico de sistemas reentrantes, onde a desordem é não-trivial e relevante para a fenomenologia crítica. Por outro lado, resultados obtidos em outras amostras de mesmo sistema indicam que a desordem é irrelevante.

Assim, existe uma controvérsia sobre os valores para os expoentes críticos estáticos do sistema $Fe_{1-x}Zr_x$ amorfo. Os autores Yamauchi [95] e Winchuh[97] encontraram valores para β , γ e δ , substancialmente maiores do que esperado para ferromagnetos clássicos. Estes resultados estão de acordo com a tendência por nós observada. Por outro lado Kaul [59], Reisser e col [98] e Ma e col.[99] encontraram uma transição descrita por expoentes típicos do modelo de Heisenberg do caso ordenado.

Sistema	α	β	γ	δ	T_c	referências
$Fe_{0.92}Zr_{0.08}$		0.66	1.76	3.22	186	nosso trabalho
		0.62	1.92	5.82	174.6	[95]
	-1.1					[96]
$Fe_{0.90}Zr_{0.10}$		0.365	1.386	5.15	181.9	[99]
		0.67	1.79			nosso trabalho
		0.365	1.386	4.55	237.3	[99]
		0.56	1.87	4.84	227.6	[95]
	0.68	0.44	1.79	5.10	230	[97]
$Fe_{0.91}Zr_{0.09}$		0.3646	1.38	4.803		[98]
		0.65	1.79			nosso trabalho
		0.365	1.386	4.85	200.2	[99]
$Fe_{0.895}Zr_{0.105}$	-0.93	0.47	2.00	5.31	224	[97]
médias		0.66 ± 0.01	1.78 ± 0.02	3.22		nosso trabalho

Tab. 6.3: *Expoentes críticos para os sistemas reentrantes $Fe_{1-x}Zr_x$ determinadas neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais da literatura. As médias reportadas na última linha referem-se apenas às medidas do presente trabalho.*

Sistema	α	β	γ	δ	referências
$Au_{0.81}Fe_{0.19}$		0.54	1.64	4.73	nosso trabalho
		0.52	1.63	4.69	[90]
		-1^a	2^a		[79]
$Ni_{0.78}Mn_{0.22}$	-0.8^b	0.55	1.71	4.61	nosso trabalho.
	-0.81^b	0.54	1.72		[79]
$Ni_{0.79}Mn_{0.21}$			1.71		nosso trabalho
$Fe_{0.92}Zr_{0.08}$		0.66	1.76	3.22	este trabalho
		0.62	1.92	5.82	[95]
	-1.1				[96]
$Fe_{0.90}Zr_{0.10}$		0.67	1.79		este trabalho
	0.68	0.44	1.79	5.10	[97]
$Fe_{0.91}Zr_{0.09}$		0.65	1.79		este trabalho
$Fe_{0.895}Zr_{0.105}$	-0.93	0.47	2.00	5.31	[97]
$Cd(Cr_{1-x}In_x)_2S_4$	-1^a		2		[100]
$Eu_{0.7}Sr_{0.3}S$	-0.48^c				[101]
$Eu_{0.8}Sr_{0.2}S_{0.3}Se_{0.3}$		0.44	1.84	5.0	[102]
$(PdFe)Mn$		0.53	1.64	0.41	[103]
médias	-0.8	0.52	1.75	4.6	
campo médio	0.0	0.50	1.00	3.0	[77]
modelo Heisenberg	-0.12	0.36	1.39	4.8	grupo renorm.[74]
Ni	-0.10	0.38	1.34	4.5	[59]
vidro-de-spin	-2.12	1.0	2.2	3.1	Ag-Mn[75]
Heisenberg desordenados	1	0.50	2	5	grupo renorm[84]

Tab. 7.1: Expoentes críticos para os sistemas reentrantes determinado neste trabalho, comparados com outros resultados experimentais e previsões teóricas. (a) estima através das relações de scaling, (b) obtida através da derivada dp/dT e utilizado o resultado nas relações Rushbooke, e Griffiths. (c) derivada do calor específico

estudaram o comportamento crítico de ferromagnetos no limite de extrema desordem para uma pequena concentração de átomos magnéticos. Estes autores reportam os expoentes críticos $\beta = 0.5$, $\gamma = 2.0$ e $\delta = 5.0$, cujos os valores são próximos de nossas determinações experimentais. Os resultados nesta tabela nos levam a propor os seguintes valores para os expoentes críticos estáticos na transição ferro-paramagnética de nosso sistema reentrante Au-Fe $\alpha = -0.08 \pm 0.04$, $\beta = 0.54$, $\delta = 4.73 \pm 0.01$ e $\gamma = 1.64 \pm 0.05$. Tais expoentes críticos satisfazem as relação de scaling de Windon. Porém as relações de scaling de Rushbrooke e Griffiths não são satisfeitas devido ao pequeno valor do expoente crítico α . Como discutido anteriormente acreditamos que o expoente α seja tão pequeno devido uma provável formação de clusters de Fe, já que medidas de resistividade foram feitas muito tempo após a preparação da amostra.

Nas amostras Ni-Mn obtemos os seguintes valores para os expoentes críticos estáticos na transição ferro-paramagnética $\alpha = -0.81 \pm 0.05$, $\beta = 0.55 \pm 0.01$, $\delta = 4.96 \pm 0.03$ e $\gamma = 1.72 \pm 0.05$. No entanto observa-se também a ocorrência de um regime em lei de potência intermediário nas medidas de susceptibilidade AC. Neste regime os valores do expoente crítico são $\gamma=0.38$ para amostra $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ e $\gamma=0.78$ para amostra $Ni_{0.79}Mn_{0.21}$. Não se conhece exatamente a origem destes regimes. Acreditamos que estejam associados à desordem [93] e à estabilização de uma fase antiferromagnética em regiões limitadas da amostra em temperaturas próximas a T_c , conforme mostram as medidas de resistividade.

Com poucas exceções nota-se que os valores para expoentes críticos estáticos dos sistemas reentrantes são muito diferentes daqueles observados e previstos para os sistemas ferromagnéticos clássicos. Desta forma podemos concluir que a desordem é um fator relevante na fenomenologia crítica relativa à transição ferromagnética dos sistemas reentrantes. A tabela 7.1 revela que os valores dos expoentes críticos α , β e γ obtidos em nosso trabalho estão sistematicamente entre aqueles que descrevem a transição de fase de materiais ferromagnéticos tridimensionais clássicos e os da transição vidro-de-spin.

O efeito de desordem não trivial, que está associada ao “canting” dos momentos magnéticos localizados e à frustração é uma característica distinta dos sistema reentrantes. Provavelmente está característica esteja a origem da fenomenologia crítica não convencional destes sistemas. Em outros termos, a desordem não-trivial deve ser tomada como um

parâmetro termodinâmico relevante para descrever a transição da fase ferromagnética dos sistemas reentrantes.

Com base nos resultados mostrados na tabela 7.1 não podemos afirmar que existe uma classe de universalidade única para a transição ferromagnética dos reentrantes. Dado as incertezas experimentais relatadas para os expoentes listados, se pode no máximo admitir a existência da possibilidade classe de universalidade fraca, de forma a permitir alguma dispersão em torno de valores médios dados por:

$$\alpha_m = -0.8(+0.3, -0.2), \quad \beta_m = 0.52(+0.03, -0.08), \quad (7.1)$$

$$\gamma_m = 1.75(+0.15, -0.12) \text{ e } \delta_m = 4.6(+0.4, 0.5) \quad (7.2)$$

Os valores médios dos expoentes, α_m , β_m e γ_m são compatíveis com as relações de Rushbrooke ($\alpha_m + 2\beta_m + \gamma_m = 2$) e Griffiths ($\alpha_m + \beta_m(\delta_m + 1) = 2$). As relações de Widom e hyperscaling são igualmente compatíveis com os valores médios acima relatados dentro dos intervalos da dispersão.

O problema da influência da desordem não trivial(que está associada ao ‘‘canting’’ à frustração) na fenomenologia crítica da transição ferromagnética é pouca estudada hoje em dia, tanto experimentalmente como teoricamente. Alguns esforços recentes para sistematizar o comportamento crítico de sistemas com diferentes graus de desordem e exemplificar as dificuldades encontradas para desenhar um panorama geral sobre este assunto foi realizados por Belayachi[93]. Nossos resultados se encaixam em uma sistemática representada pela Tabela 7.1 para uma série de sistemas reentrantes, tanto metálicos quanto isolantes. Esta Tabela que parece definir uma classe de universalidade fraca, onde os expoentes são distribuídos em intervalos significativos em torno de valores médios. No entanto, uma classe universalidade descrevendo uma única fenomenologia crítica perto da temperatura de Curie dos sistemas reentrantes é provavelmente inexistente, devido aos vários mecanismos microscópicos que onduzem a desordem de spins em sistemas diferentes. Um resultado relevante do nosso trabalho relacionados com esta questão é a observação do efeito de superzona na resistividade junto á transição ferromagnéticos de $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$. Isto implica

que, neste caso, a frustração se origina pela competição entre ordens ferro e antiferromagnética em “clusters” cujo o tamanho é, no mínimo, igual á do livre caminho médio eletrônico. este mecanismo é certamente distinto do que ocorre no Au-Fe, onde a desordem tem um caráter microscópico. De fato, neste sistema, a segregação de Fe em grãos ferromagnéticos corresponde ao estado de equilíbrio termodinâmico, que é alcançado quando a liga é recozida (mesmo em temperatura ambiente, por intervalos de tempos longos).

Como conclusão geral, obtemos que a desordem não-trivial, característica dos sistemas de reentrantes, leva a expoentes críticos estáticos cujos, valores são significativamente diferentes daqueles observados e previsto teoricamente para os ferromagnetos ordenados.

Referências Bibliográficas

- [1] BINDER, K.; YOUNG, A.P. Spin glasses: Experimental facts, theoretical concepts and open questions. **Reviews of Modern Physics**, New York, v.58, 801-976, Oct. 1986.
- [2] COLES, B.R.; SARKISSIAN, B.V.B.; TAYLOR, R.H. The role of infinite magnetic clusters in Au-Fe alloys near the percolation concentration. **Philosophical Magazine B**, London, v.37, n.4, 489-498, March 1978.
- [3] YOSHIZAWA, H.; MITSUDA, S.; ARUGA H. e ITO, A. Mixed phase of spin-glass ordering and antiferromagnetism in an Ising system, $\text{Fe}_x\text{Mn}_{1-x}\text{TiO}_3$. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.59, n.20, 2364-2367, Nov. 1987.
- [4] FISHER, K.H., HERTZ, J.A., Spin Glasses, Cambridge University Press. England, 1991.
- [5] KOUVEL, J.S.; ABDUL-RAZZAQ, W.; ZIQ, Kh. Ferro-spin-glass domain model for disordered Ni-Mn. **Physical Review B**, Woodbury, v.35, n.4, 1768-1775, Feb. 1987.
- [6] SENOUSI, S. Reentrant magnetism: New aspects. **Physical Review B**, Woodbury, v.31, n.9, 6086-6088, May. 1985.
- [7] MAARTENSE, I.; WILLIAMS, G. Ac susceptibility of the ferromagnetic phase of the AuFe system. **Physical Review B**, Woodbury, v.17, n.1, 377-384, Jan. 1978.
- [8] PUREUR, P.; HAETINGER, C. Fenômenos Críticos em sistemas magnéticos reentrantes. In: Escola Brasileira de Magnetismo -[São Paulo]: EBM, Agost. 1999

- [9] FERT, A. and LEVY, P.M. Role of anisotropic exchange interactions in determining the properties of spin-glasses. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.44, n.23, 1538-1541, June 1980.
- [10] PUREUR, P.; HAETINGER, C. Fenômenos Críticos em sistemas magnéticos reentrantes. In: Escola Brasileira de Magnetismo -[São Paulo]: EBM, Agost. 1999
- [11] BAO, W.; RAYMOND, S.; SHAPIRO, S.M. et al. Unconventional Ferromagnetic and Spin-Glass States of the Reentrant Spin Glass $Fe_{0.7}Al_{0.3}$. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.82, n.23, 4711-4714, June 1999.
- [12] SUMIYAMA, K.; NISHI, K.; NAKAMURA, Y. et al. Reentrant spin-glass ordering in fcc $Cu_{0.74}Fe_{0.26}$ alloys. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.96, 329 -334, June 1991.
- [13] TAKANO, H., MIYAKO, Y., GODINHO, M. and Tholence, J.L. Dynamic scaling relation in reentrant spin glass $Pd_{1-x-y}Fe_xMn_y$ **Journal of Physical Society of Japan**, Tokyo, v.57, n.10, 3514-3519, March 1988.
- [14] SARKISSAN, B.V.B. The appearance of critical behaviour at the onset of ferromagnetism in AuFe alloys **Journal of Physics F: Metal Physics, Philadelphia**, v.11, 2191-2208, May 1981.
- [15] MALETTA, H. Magnetic ordering in $Eu_xSr_{1-x}S$, a diluted Heisenberg system with competing interactions. **Journal Applied Physics**, Woodbury, v.53, n.3, 2185-2190, March 1982.
- [16] JONASON, K.; MATTOSON, J.; NORDBLAND, P. Chaos in the Ferromagnetic Phase of Reentrant Ferromagnet. **Physical Review Letters**, Woodbury. v.77, n.10, 2562-2565, Set. 1996
- [17] KUNKEL, H.; ROSHKO, R.M.; RUAN, W. et al. Critical behavior in two reentrant NiMn ferromagnets. **Journal Applied Physics**, Woodbury, v.69, n.15, 5060-5062, April 1991.

- [18] GABAY, M.; TOULOUSE, G. Coexistence of Spin-Glass and ferromagnetic Orderings. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.47, n.3, 201-204, April 1981.
- [19] ALMEIDA, J.R.L.; TOULESS, D.J. Stability of Sherrington-Kirkpatrick solution of a spin glass model. **Journal Physical A: Math.Gen.**, Britol , v.11, n.5, 983-990, Dec. 1978
- [20] SOMMER, R.L.; SCHMIDT, J.E.; GOMES, A.A. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, V.103, 25-29, Jan. 1992.
- [21] SENOUSI, S.; ÖNER, Y. On the low-temperature magnetic state of the alloys $\text{Ni}_{0.79}\text{Mn}_{0.21}$. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.40, n1-2, 12-16, Dec. 1983.
- [22] AEPPLI, G.; SHAPIRO, S.M; MALETTA, H. et al. Spin correlation near the ferromagnetic-to-spin-glass crossover (invited). **Journal Applied Physics**, Woodbury , v.55, n.6, 1628-1633, March 1984.
- [23] ENDOH, Y. Neutron Depolarization from reentrant spin glasses, **Progress of theoretical Physica Supplement**, n.101. Nov. 1990.
- [24] MIREBEAU, I.; ITOH, S.; MITSUDA, S. et al. Neutron depolarization in a reentrant spin-glass system: Amorphous Fe-Mn. **Physical Review B**, Woodbury, v.41, n.16, 11405-11416, June 1990.
- [25] MIREBEAU, I.; ITOH, S.; MITSUDA, S. et al. Neutron depolarization in a reentrant spin-glasses: $\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x$. **Journal Applied Physics**, Woodbury , v.67, n.9, 5232-5234 May 1990.
- [26] VARRET, F.; HAMZIĆ, A.; CAMPBELL, I.A. Spin canting and ferromagnetism in a AuFe alloys: Mössbauer and magnetic measurements. **Physical Review B**, Woodbury, v.26, n.9, 5285-5288, July 1982.
- [27] CAMPBELL, I.A. and SENOUSI, S. **Philosophical Magazine B**, London, Part. B, v.65, 1267-1274, Aug. 1992

- [28] RYAN, D.H.; COEY, J.M.D et al. Magnetic properties of iron-rich Fe-Zr glasses. **Physical Review B**, Woodbury, v.35, n.16, 8630-8638, June 1987.
- [29] KITTEL, C. On the theory of ferromagnetic resonance absorption. **Physical Review**, Woodbury, v.73, n.2, 155-161, Jan. 1948.
- [30] CULLITY, B.D. Fundamentals of magnetostriction. **Journal of Metals**, v.23, n.1, 35-45, Jan 1971.
- [31] ÖNER, Y.; AKTAS, B.; APAYDIN, F. et al. Ferromagnetic resonance study of $\text{Ni}_{0.71}\text{Mn}_{0.29}$ alloys. **Physical Review B**, Woodbury, v.37, n.10, 5866-5869, April 1988.
- [32] HURDEQUINT, H.; KOUVEL, J.S.; MONOD, P. Electron spin resonance study of a disordered Ni-Mn alloy. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.31-34, 1429-1431, 1983.
- [33] HURDEQUINT, H.; KOUVEL, J.S. Electron spin resonance in reentrant Ni-Mn alloys. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.54-57, Part 1, 167-169, Feb. 1986.
- [34] SARKISSIAN, B.V. Resonance and relaxation effects in solid-solution alloys. **Philosophical Magazine B**, London, v.39, n.5, 413-436, 1979.
- [35] ÖNER, Y.; ELKHATOURI, D.; SENOUSI, S. The resistivity of $\text{Ni}_{1-x}\text{Mn}_x$ in the reentrant and spin-glass phases. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.54-57, Part 1, 159-160, Feb. 1986.
- [36] SENOUSI, S.; ÖNER, Y. Manifestation of transition from a frustrated state to ferromagnetic state in NiMn alloys: Resistivity minima. **Physical Review B**, Woodbury, v.28, n.1, 455-458, July 1983.
- [37] SENOUSI, S., ÖNER, Y. Anomalous behavior of the magnetoresistance of NiMn alloys in the spin-glass and ferromagnetic states. **Journal Applied Physics**, Woodbury, v.55, n.6, 1472-1476, March 1984.

- [38] SCHAF, J., PUREUR, P. Magnetotransport in $Ni_{0.71}Mn_{0.29}$ as a function of magnetic and atomic ordering. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.68, 358-364, April 1987.
- [39] MYDOSH, J.A.; BUDNICK, J. I.; KAWATRA, M. P.; SKALSKI, E. S. Magnetic Ordering in Palladium-Iron Alloys. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.21, 1346-1349, Oct.1968.
- [40] KAWATRA, M.P. E col., Proceeding of the 12th Internacional Conference on Low Temperature Physics, Kyoto-1970, editado por E.Kanda (Keigaku Publishing Co., Tokyo, p.773, 1971.
- [41] MYDOSH, J.A., FORD, P.J., KAWATRA, M.P., et al. Electrical resistivity of AuFe alloys in the spin-glass, mictomagnetic, and ferromagnetic regimes. **Physical Review B**, Woodbury, v.10, n.7, 2845-2855, Oct. 1974.
- [42] SHERRINGTON, D.; KIRKPATRICK, S. Solvable Model of Spin-Glass. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.35, n.26, 1792-1976, Dec. 1975.
- [43] CALLEN, H.B. **Thermodynamics and an introduction to thermostatics**. New York, John Wiley, 1985.
- [44] FISHER, M. E. Scaling, Universality and Renormalization Group Theory. In: HAHNE, F.Y.W. (Ed.) Critical phenomena. Berlin: Springer- Verlag, 1983. p-4-57. (Lecture Notes in Physics, 186)
- [45] YEOMANS, J.M. Statistical Mechanics of Phase Transitions, Oxford Science Publications, 1992.
- [46] FISHER, M. J. ; LANGER, J. S. Resistive Anomalies at Magnetic Critical Points. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 20, 665-668, Mach 1968.
- [47] ZUMSTAG, F.; C., PARKS; R.D. Electrical Resistivity of Nickel Near the Curie Point. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 24, 520-524, Mach 1970
- [48] HOHENBERG, P. C.; HALPERIN, B.I. Theory of dynamic critical phenomena. **Reviews of Modern Physics**, New York, v. 49, 435-479, 1977.

- [49] Weiss, P., **J.Phys. Radium**, Paris 6, p.667, 1907.
- [50] STANLEY, H.E. Introduction phase transition and critical phenomena, Oxford: Clarendon Press, 1971.
- [51] EDWARDS, S.F., ANDERSON, P.W. Theory of spin glasses. **Journal of Physics F: Metal Physics, Philadelphia** , v5, p.965-974, 1975.
- [52] LE GUILLOU, J.C.; ZINN-JUSTIN, J. Critical exponents for the n-vector model in three dimensions from field theory. **Physical Review B**, Woodbury, v.11, p.95-98, 1977, july.
- [53] JAE-KOW, K. ; PATRASCIO, A. Critical Behavior of the Specific Heat in the Two Dimensional Site Diluted Ising System. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 72, n. 17, 2785-2788, April 1994.
- [54] CHANG, X.S; HOHENEMSER .Static critical behavior of annealed disordered alloys: Fe_{1-x}V_x **Physical Review B**, Woodbury, v. 37, 261, 1988.
- [55] HARRIS, A.B. Effect of random defects on the critical behaviour of Ising models **Journal Physics C: Solid State Phys.**, v.7, 1671-1692, May 1974.
- [56] JUG, G. Critical singularities of the random two-dimensional Ising Model **Physical Review B**, Woodbury, v.27, 4518-4521, 1983.
- [57] DOTSENKO, V.S. Critical phenomena and quenched disorder Critical behavior of the 2D Ising model with impurity bond. **Physics Uspekhi** 38 (5), 457-496, 1995.sept.
- [58] DOTSENKO V.S. Critical behavior of the 2D Ising model with impurity bond. **Journal Physics C: Solid State Phys.**, v.15, L557-L563, 1983.
- [59] KAUL, S.N. Static critical phenomena in ferromagnets with queched disorder. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.53, p.5-53, Nov. 1985.

- [60] SENOUSI, S.; HADJOUJ, S.; FOURMEAUX, R. Magnetic Structures in Reentrant Spin-Glasses Observed by Transmission Electron Microscopy. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.61, p.1013-1016, 1988.
- [61] SOMMER, R.L.; SCHMIDT, J. E. ; GOMES, A. Magnetic Noise In The Reentrant System Ni(1-X)Mn(X): Power Spectra. *Journal of Applied Physics*, Woodbury NY, USA, v. 73, p. 5497, 1993.
- [62] BAO, W. e col. Unconventional ferromagnetic and Spin-Glass States of the reentrant spin glass $Fe_{0.7}Al_{0.3}$. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.82, p.4711-4714, 1999, June.
- [63] BOUCHIAT, H. Determination of the critical exponents in the Ag Mn spin glass. **Journal de Physique**, v. 47, 71, 1986. Jan
- [64] ARAJS, S.; TEHAN, B. L.; ANDERSON, E. E. e STELMACH A. A. **Int. J. Magn.** 1, 41 (1970)
- [65] ROCKER, W. ; KOHLHASS, P.; ANGEW, Z. **Phys.**, v. 23, 146, 1967.
- [66] KOUVEL, J.S. ; RODBELL, D.S. Magnetic Equation of State for CrO_2 and Nickel near Their Curie Points. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 18, 215-218 (1967)
- [67] STONER, E.C. The Demagnetizing Factors for Ellipsoids. **Philosophical Magazine B**, London, v.36, p.803, n.236, dec, 1945.
- [68] OSBORN, J.A. Demagnetizing Factors of the General Ellipsoid **Physical Review Letters**, Woodbury, v.67, n.11/12, p.351-357, june 1945.
- [69] BOZORTH, **Ferromagnetism** first published ,1993 por IEEE Press, New York ISBN 0-7803-1032-2.
- [70] BOZORTH, R.M.; CHAPIN, D.M. Demagnetizing Factors of Rods. **Journal Applied Physics**, Woodbury , v13, p.320-327, 1942

- [71] CULLITY, **Introduction to Magnetic Materials**, Publisher: IEEE Computer Society Press Edição Hardcover p-56,57,619.
- [72] KOUVEL, J.S. ; FISHER, M.E., Detailed Magnetic Behavior of Nickel Near its Curie Point. **Physical Review**, Woodbury, v.136, A1626-A1632, 1964.
- [73] ARROT,A. ; NOAKES, J.E. Approximate Equation of State For Nickel Near its Critical Temperature. **Physical Review Letters**, Woodbury, v.19, 786-789 ,1967. July.
- [74] LE GUILLOU, J.C ; ZINN-JUSTIN. Critical exponents from field theory **Physical Review B**, Woodbury, v.21, 3976-3998, 1980.May
- [75] BOUCHIAT,H.Determination of the critical exponents in the Ag Mn spin glass. **Le Journal de Physique Colloques**,Paris , v.47, p.71, 1986.
- [76] CRAIG, P.P; GOLBURG, W.I.; KITCHENS, T.A.; BUDNICK, J.I.Transport Properties at Critical Points: The Resistivity of Nickel .**Physical Review Letters**, Woodbury, v.19, n23, 1334-1337 1967.Oct.
- [77] STANLEY, H.E. **Introduction phase transition and critical phenomena**, Oxford: Clarendon Press, 1971.
- [78] SUHL,H. Anomalous Concentration Dependence of Resistivity in Dilute Magnetic Alloys.**Physical Review Letters**, Woodbury, v.20, 656, 1968.
- [79] PAPAS, C.; ALBA, M.; BRULET, A.; VIEL, V.; MEZEI, F. Ferromagnetic critical correlations and dynamics in AuFe reentrant ferromagnets **Journal Applied Physics**,Woodbury , V79, 6158-6160, 1996.
- [80] STÜSSER,N.; REKVELT, M.TH.; SPRUIJT, T. Determination of the critical exponents β and γ in iron by neutron depolarization. **Physical Review B**, Woodbury, 31, 5905,1985.
- [81] GINZBURG, V.L; LANDAU, L.D. **Zh. Eksp: Teor. Fiz.**, 20, 1064, 1950.

- [82] GANGOPADHYAY, A.K; ROY, S.B.; MAJUMDAR, A.K. Phase transition to long-range ferromagnetism in $Au_{82}Fe_{18}$ and the associated critical exponents. **Physical Review B**, Woodbury., V33 , N7, 5010-5015, 1986.
- [83] GENNES, P.G., FRIEDEL, J. Anomalies de resistivit dans certains metaux magnques **Journal Physics Chemistry of Solids**, , v4, p.71-77. 1958.
- [84] SOBOTTA, G. Critical phenomena of random spin systems: Second order epsilon (Porson)-expansion . **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v28, 1-19, 1982.
- [85] ABDUL-RAZZAK, W.KOUVEL, J.S. Magnetic phase diagram of disordered Ni-Mn near the multicritical point. **Physical Review B**, Woodbury, v.35, p-1764-1767, feb,1987.
- [86] SENOUSSE, S. Reentrant magnetism: New aspects. **Physical Review B**, Woodbury, v.31, p.6086-6088, may, 1985
- [87] KOUVEL, J.S., ABDUL-RAZZAK, W., KH.ZIG .Ferro-spin-glass domain model for disordered Ni-Mn. **Physical Review B**, Woodbury, v.35, p-1768,1987.
- [88] PUREUR, P., SCHAF, J., SCHREINER, W.H., MOSCA, D.H., KUNZLER, J.V., RYAN, D.H., COEY, J.M.D., JOURNAL DE PHYSIQUE, colloque C8, 12, dec., 1988.
- [89] CABLE, J.W.; CHID, D.H.R. Ferro-spin-glass domain model for disordered Ni-Mn. **Physical Review B**, Woodbury, v.10, p.4607-4615, n11, dec, 1974.
- [90] HAETINGER, C.; GHIVELDER, L.; SCHAF, J. e PUREUR, P .Static critical exponents of the ferromagnetic transition in spin glass. J. Phys.: Condens. Matter , 21 , 506006, 2009. HAETINGER, C.; PUREUR, P. E GHIVELDER, L. Critical behavior near the para?ferromagnetic transition of the reentrant systems $Au_{0.81}Fe_{0.19}$ and $Ni_{0.78}Mn_{0.22}$ Journal of Magnetism and Magnetic Materials, Volumes 226-230, Part 1, May 2001, Pages 564-565

- [91] AHARONI, A. Amorphicity, heterogeneity, and the Arrott plots. **Journal Applied Physics**, Woodbury , v56, p.3479-3484, 1984.
- [92] SEEGER, M.; KAUL, S.N.; KRONMÜLLER, H. Asymptotic critical behavior of Ni. **Physical Review B**, Woodbury, v.51, p.12585-12594, 1995.
- [93] BELAYACHI, A.A.; DORMANN, J.L. e NOGUÈS, M. Critical analysis of magnetically semi-disordered systems: critical exponents at various transitions. **J. Phys.: Condens. Matter**, v.10, p.1599, 1998.
- [94] WINSCHUH, K., ROSENBERG, M. Critical behavior of amorphous $Fe_{1-x}M_x)_{90}Zr_{10}$ alloys with M=Co, Ni, and $0 < x < 0.04$. **Journal Applied Physics**, Woodbury , v61, p. 4401-4403, april 1987.
- [95] YAMAUCHI, H., ONODERA, H., YAMAMOTO, H. Anomalous Critical Behavior of Amorphous $Fe_{100-x}Zr_x$ Ferromagnets ($x=8$ and $x=10$). **Journal of Physical Society of Japan**, Tokyo, v.53, p.747-753, set.1984
- [96] PUREUR, P., FRAGA, G.L., SCHREINER, W.H., BRANDÃO, D.E., HURD, J. Critical Resistivity and low field magnetoresistance in Pd_2MnSn . **Le Journal de Physique Colloques**, Paris . v49, C8-179, dec.1988.
- [97] WINSCHUH, K., ROSENBERG, M. Critical behavior of amorphous $(Fe_{1-x}M_x)_{90}Zr_{10}$ alloys with M=Co, Ni, and $0 < x < 0.04$. **Journal Applied Physics**, Woodbury , v61, p. 4401-4403, april 1987
- [98] REISSER, R., FÄHNLE, M., KRONMÜLLER. The magnetic phase transition in amorphous $Fe_{90}Zr_{10}$. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.75, p.45-52, nov. 1988.
- [99] MA, H. KUNKEL, H.P., WILLIAM, G. Linear and non-linear magnetic response of potentially re-entrant Fe-Zr glasses. **Journal of Physics: Condensed Matter**, Bristol , v.3, p.5563, july 1991

- [100] POUGET, S.; ALBA, M.; NOGUES, M. Influence of disorder on the static critical behavior in the frustrated ferromagnetic system $\text{CdCr}_2(1-x)\text{In}_2x\text{S}_4$ **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.140, 1531-1532, 1995.
- [101] WOSNITZA, J.; LÖHNEYSEN, H. **Le Journal de Physique Colloques**, Paris , v.49, C8-1203, 1988.
- [102] WOSTERHOLT, K.; SOBOTTA, G. **Journal of Physics F: Metal Physics**, Philadelphia , V.13, 2371, 1983.
- [103] KUNKEL, H.P.; WILLIAMS, G. AC susceptibility of the re-entrant system (PdFe)Mn. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.75, p.98-110, 1988.

Apêndice A