

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

**EFEITO HALL EXTRAORDINÁRIO NO
SUPERCONDUTOR MAGNÉTICO $RuSr_2GdCu_2O_8$**

Jorge Luiz Pimentel Júnior

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

Porto Alegre
Março de 2007

*Este trabalho é
dedicado à Águeda.
Obrigado por tudo,
meu amor.*

Agradecimentos

- Ao Professor Dr. Paulo Pureur, pela amizade, pelo seu compromisso e empenho nesse trabalho, pela orientação objetiva desde os tempos da iniciação científica, e por compartilhar comigo sua sabedoria e experiência;

- Ao Professor Dr. Jacob Schaf, pela amizade e disposição com que transmite seus conhecimentos experimentais e teóricos;

- Ao Dr. Alcione Jurelo e Rogério Dobranski pela preparação da amostra;

- Aos Doutores Frederik, Valdemar, Rosângela e Fábio pela amizade e por tudo que me ensinaram;

- Ao pessoal da Criogenia, Luiz Antônio e Rodrigo, por todo o tipo de auxílio no laboratório, pela amizade, pelas pizzas e principalmente pelo fornecimento de nitrogênio e hélio líquidos, indispensáveis à realização deste trabalho;

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

- Ao colega Rodrigo Onzi e aos bolsistas Everton e Bruna pelo auxílio nos experimentos;

- Ao amor da minha vida, Águeda, pelo seu amor e carinho, pela confiança em mim depositada, pelo incentivo e compreensão com relação a este trabalho e pela vida comigo compartilhada.

Resumo

Os compostos $\text{RuSr}_2\text{LnCu}_2\text{O}_8$ (Ru-1212), (Ln = Sm, Eu e Gd), denominados rutenocupratos, são caracterizados pela coexistência entre supercondutividade e magnetismo em escala microscópica. Nesse sistema anisotrópico, planos atômicos de Ru-O₂ são responsáveis pelas propriedades magnéticas, enquanto que as camadas de Cu-O₂ governam as propriedades supercondutoras. Este trabalho consiste de um estudo experimental de propriedades magnéticas e de magnetotransporte de uma amostra policristalina do rutenocuprato Ru(Gd)-1212.

A partir de medidas de magnetização em função da temperatura, realizadas segundo os procedimentos ZFC-FC, e de experimentos de histerese magnética, mostra-se que um estado magneticamente ordenado é estabilizado em $T_N \sim 133$ K. No regime de baixos campos magnéticos, fortes irreversibilidades ZFC-FC indicam a ocorrência de “*canting*”. Além disso, um sinal diamagnético, indicativo do estado supercondutor, é observado em temperaturas inferiores a 30 K nas medidas ZFC de baixo campo.

Os experimentos de resistividade elétrica da amostra de Ru(Gd)-1212 revelam que a transição supercondutora em $T_c \cong 40$ K consiste de um processo de duas etapas, característico de um sistema granular. São também realizadas medidas de magneto-resistência no estado normal e no intervalo correspondente à transição supercondutora. Observa-se uma contribuição positiva à magneto-resistência.

Experimentos de efeito Hall são realizados na fase normal e na fase supercondutora. Na fase normal, o coeficiente Hall mostra um fraco máximo, indicativo da transição magnética em $T_N \sim 133$ K. Abaixo dessa temperatura foi possível separar a contribuição anômala ao efeito Hall. A aplicação da teoria de Karpus-Luttinger para a interpretação desses resultados revela que uma contribuição adicional deve ser considerada para a descrição completa do efeito Hall anômalo no Ru(Gd)-1212. Supõe-se que esta contribuição esteja relacionada à quiralidade dos *spins* do Ru. A quiralidade é uma propriedade fundamental de sistemas magnéticos desordenados, pois está relacionado à fase de Berry no espaço real de elétrons que se propagam num meio magneticamente texturizado.

Abstract

The ruthenocuprates $\text{RuSr}_2\text{LnCu}_2\text{O}_8$ (Ru-1212) (Ln = Sm, Eu and Gd), are characterized by the coexistence between superconductivity and magnetism at microscopic scale. In this anisotropic system, the Ru-O₂ atomic planes are responsible by the magnetic properties, while the Cu-O₂ layer govern the superconducting behavior. This work consist of an experimental study of magnetic and magnetotransport properties of a polycrystalline sample of ruthenocuprate Ru(Gd)-1212.

Magnetization measurements, performed according to ZFC-FC procedures, and hysteresis experiments show that a magnetically ordered state is stabilized bellow $T_N \sim 133$ K. In the low magnetic field regime, strong ZFC-FC irreversibilities indicate the occurrence of canting. Moreover, a diamagnetic contribution, related to the superconductor state, is observed in temperatures below 30 K in the ZFC measurements at low fields.

The electric resistivity experiments show that the superconducting transition in $T_c \cong 40$ K consists of two stage process, characteristics of a granular system. Magneto-resistance measurements are performed in the normal state and in the temperature interval corresponding to the superconductor transition. A positive contribution to the magneto-resistance is observed.

Hall effect experiments are made in the normal and superconductor phases. In the normal phase, the Hall coefficient shows a weak peak related to magnetic transition in $T_N \sim 133$ K. Below this temperature, it is possible to single out the anomalous contribution to the Hall effect. The application of Karpus-Luttinger theory for describing these results reveals that an additional contribution must be considered in order to obtain a complete description of the anomalous Hall effect in Ru(Gd)-1212. We suggest that this term is related to the chirality of the Ru spins. The chirality is a fundamental property of any disordered system, since it is related to the real space Berry phase of electrons propagating in a magnetically textured medium.

Índice

<u>Resumo</u>	4
<u>Abstract</u>	5
<u>Introdução</u>	9
<u>1. O Supercondutor Magnético RuSr₂GdCu₂O₈</u>	
1.1 - Introdução	11
1.2 - Os Supercondutores Magnéticos	12
1.2.1 - As Fases de Chevrel	12
1.2.2 - Os Boretos de Rhódio e Terra-Rara	14
1.2.3 - Os Carbetos de Níquel Boro Terra-Rara	16
1.2.4 - O composto UGe ₂	17
1.3 - O Sistema RBa ₂ Cu ₃ O ₇	18
1.4 - O Composto RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	20
1.4.1 - Estrutura do Composto RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	21
1.4.2 - A Transição Resistiva do RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	23
1.4.3 - Propriedades Magnéticas do RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	24
1.4.4 - A Estrutura Magnética do RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	25
1.4.5 - Um Modelo para a Estrutura Magnética do RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	27
1.4.6 - Efeito Hall no RuSr ₂ GdCu ₂ O ₈	28
<u>2. Conceitos Teóricos</u>	
2.1 - O Efeito Hall Ordinário	31
2.2 - O Efeito Hall Extraordinário	32
2.3 - Quiralidade	34
2.4 - Vidro-Quiral	37
2.5 - Contribuição Quiral ao Efeito Hall	38
2.6 - A Fase de Berry e o Efeito Hall Anômalo	39

2.7 - Efeito Hall em Supercondutores	40
2.8 - O Ângulo de Hall	41
2.9 - Inversão do Sinal Hall em Supercondutores	42

3. Procedimentos Experimentais

3.1 - Preparação da Amostra Policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$	44
3.2 - Técnicas de Medidas Utilizadas	46
3.2.1 - Resistividade Elétrica, Magneto-Resistência e Efeito Hall	46
3.2.1.1 - Contatos Elétricos	46
3.2.1.2 - Equipamento Eletrônico	47
3.2.1.2.1 - Método AC	47
3.2.1.2.1.1 - Resistividade	48
3.2.1.2.1.2 - Efeito Hall	49
3.2.1.2.2 - Método DC	51
3.2.1.3 - Sistema Criogênico	52
3.2.2 - Magnetização DC	54

4. Caracterização de uma amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$

4.1 - A estrutura da amostra	56
4.2 - Transição Resistiva	58
4.3 - Magneto-Resistência	62
4.4 - Magnetização DC	64
4.5 - Histerese Magnética	65

5. Efeito Hall no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$

5.1 - Tensão Hall	69
5.2 - Resistividade Hall na Fase Normal	70
5.3 - Coeficiente Hall	70
5.4 - Análise do Efeito Hall na Fase Normal	73
5.5 - Determinação de M_H	74
5.6 - Determinação dos Coeficientes Hall Ordinário e Anômalo	75
5.6.1 - O Coeficiente Hall Ordinário	76

5.6.2 - O Coeficiente Hall Anômalo	77
5.7 - A Contribuição Quiral ao Efeito Hall Anômalo do Ru(Gd)-1212	78
5.8 - O Ângulo de Hall do Ru(Gd)-1212	79
5.9 - Efeito Hall na Fase Supercondutora do Ru(Gd)-1212	80
<u>Conclusão</u>	82
<u>Referências</u>	84

Resumo

Os compostos $RuSr_2LnCu_2O_8$ ($Ru-1212$), ($Ln = Sm, Eu$ e Gd), denominados rutenocupratos, são caracterizados pela coexistência entre supercondutividade e magnetismo em escala microscópica. Nesse sistema anisotrópico, planos atômicos de $Ru-O_2$ são responsáveis pelas propriedades magnéticas, enquanto que as camadas de $Cu-O_2$ governam as propriedades supercondutoras. Este trabalho consiste de um estudo experimental de propriedades magnéticas e de magnetotransporte de uma amostra policristalina do rutenocuprato $Ru(Gd)-1212$.

A partir de medidas de magnetização em função da temperatura, realizadas segundo os procedimentos ZFC-FC, e de experimentos de histerese magnética, mostra-se que um estado magneticamente ordenado é estabilizado em $T_N \sim 133$ K. No regime de baixos campos magnéticos, fortes irreversibilidades ZFC-FC indicam a ocorrência de “*canting*”. Além disso, um sinal diamagnético, indicativo do estado supercondutor, é observado em temperaturas inferiores a 30 K nas medidas ZFC de baixo campo.

Os experimentos de resistividade elétrica da amostra de $Ru(Gd)-1212$ revelam que a transição supercondutora em $T_c \cong 40$ K consiste de um processo de duas etapas, característico de um sistema granular. São também realizadas medidas de magneto-resistência no estado normal e no intervalo correspondente à transição supercondutora. Observa-se uma contribuição positiva à magneto-resistência.

Experimentos de efeito Hall são realizadas na fase normal e na fase supercondutora. Na fase normal, o coeficiente Hall mostra um fraco máximo, indicativo da transição magnética em $T_N \sim 133$ K. Abaixo dessa temperatura foi possível separar a contribuição anômala ao efeito Hall. A aplicação da teoria de Karpus-Luttinger para a interpretação desses resultados revela que uma contribuição adicional deve ser considerada para a descrição completa do efeito Hall anômalo no $Ru(Gd)-1212$. Supõe-se que esta contribuição esteja relacionada à quiralidade dos *spins* do Ru . A quiralidade é uma propriedade fundamental de sistemas magnéticos desordenados, pois está relacionado à fase de Berry no espaço real de elétrons que se propagam num meio magneticamente texturizado.

Abstract

The ruthenocuprates $RuSr_2LnCu_2O_8$ ($Ru-1212$) ($Ln = Sm, Eu$ and Gd), are characterized by the coexistence between superconductivity and magnetism at microscopic scale. In this anisotropic system, the $Ru-O_2$ atomic planes are responsible by the magnetic properties, while the $Cu-O_2$ layer govern the superconducting behavior. This work consist of an experimental study of magnetic and magnetotransport properties of a polycrystalline sample of ruthenocuprate $Ru(Gd)-1212$.

Magnetization measurements, performed according to ZFC-FC procedures, and hysteresis experiments show that a magnetically ordered state is stabilized bellow $T_N \sim 133 K$. In the low magnetic field regime, strong ZFC-FC irreversibilities indicate the occurrence of canting. Moreover, a diamagnetic contribution, related to the superconductor state, is observed in temperatures below $30 K$ in the ZFC measurements at low fields.

The electric resistivity experiments show that the superconducting transition in $T_c \cong 40 K$ consists of two stage process, characteristics of a granular system. Magneto-resistance measurements are performed in the normal state and in the temperature interval corresponding to the superconductor transition. A positive contribution to the magneto-resistance is observed.

Hall effect experiments are made in the normal and superconductor phases. In the normal phase, the Hall coefficient shows a weak peak related to magnetic transition in $T_N \sim 133 K$. Below this temperature, it is possible to single out the anomalous contribution to the Hall effect. The application of Karpus-Luttinger theory for describing these results reveals that an additional contribution must be considered in order to obtain a complete description of the anomalous Hall effect in $Ru(Gd)-1212$. We suggest that this term is related to the chirality of the Ru spins. The chirality is a fundamental property of any disordered system, since it is related to the real space Berry phase of electrons propagating in a magnetically textured medium.

Introdução

O composto $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (Ru(Gd)-1212), que é membro da família dos ruteno-cupratos, faz parte de uma nova classe de supercondutores de alta temperatura crítica que tem atraído a atenção da comunidade científica em virtude da possível coexistência de supercondutividade e magnetismo. A descoberta de sistemas em que supercondutividade e magnetismo atuam de forma cooperativa em escala microscópica confronta diretamente a concepção tradicional da supercondutividade. Em geral, a possibilidade de coexistência de um estado supercondutor estável com um ordenamento magnético é descartada, uma vez que a interação eletromagnética propicia a quebra dos pares de Cooper.

Estruturalmente análogo aos cupratos supercondutores de alta temperatura crítica, o Ru(Gd)-1212 possui estrutura cristalina fortemente anisotrópica, constituída por uma sucessão de planos atômicos de Ru-O_2 e Cu-O_2 , intercalados por camadas de Sr-O e Gd. A supercondutividade deste sistema deve-se aos planos de Cu-O_2 , enquanto que as propriedades magnéticas estão basicamente relacionadas aos planos de Ru-O_2 . A temperatura crítica supercondutora desse composto é extremamente dependente da preparação da amostra.

A ordem magnética que esse sistema apresenta tem motivado de muita discussão. Primeiramente, o composto foi reportado como não magnético^[33]. Entretanto, logo após sua descoberta, verificou-se a ocorrência de uma transição magnética em aproximadamente 133 K onde o ordenamento é predominantemente antiferromagnético^[37]. Contudo, uma componente fracamente ferromagnética, paralela aos planos de Ru-O_2 , também tem sido observada em diversas técnicas experimentais, influenciando as propriedades do estado supercondutor que se estabiliza em $T_c = 40$ K.

Neste estudo realiza-se experiências de efeito Hall e medidas de resistividade elétrica, em função da temperatura e na presença de diversos campos magnéticos, numa amostra policristalina de Ru(Gd)-1212. São também realizadas medidas de magnetização, nos mesmos intervalos de temperatura e campos. Estes resultados são fundamentais para a caracterização do sistema. O efeito Hall na fase normal evidencia a transição magnética em T_N , e, combinado com a análise dos resultados de magnetização, permite a obtenção da contribuição extraordinária à constante Hall. Na fase supercondutora, a resistividade Hall apresenta uma inversão de sinal e adquire grande amplitude antes de se anular em temperaturas muito baixas.

No Capítulo 1 é feito um breve histórico sobre a competição entre supercondutividade e magnetismo. São apresentados alguns dos sistemas em que se verifica a coexistência desses dois fenômenos. Além disso, são descritas as propriedades físicas do composto $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

No Capítulo 2 são apresentados os conceitos teóricos necessários para a descrição dos resultados experimentais desse trabalho. Descreve-se a origem do efeito Hall anômalo e como é feita a introdução do conceito de quiralidade em sua descrição. Também são apresentadas algumas características do efeito Hall observadas em supercondutores.

No Capítulo 3 realiza-se a descrição dos procedimentos experimentais utilizados na preparação e caracterização da amostra de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. São apresentadas as técnicas de medidas adotadas e os equipamentos envolvidos nos experimentos.

O Capítulo 4 contém os resultados obtidos na caracterização da amostra de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. São apresentadas medidas de resistividade elétrica, magneto-resistência e magnetização, além da caracterização estrutural da amostra.

No Capítulo 5 são apresentados os resultados do estudo do efeito Hall anômalo na fase normal da amostra $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. É feita uma discussão sobre a origem do termo anômalo, que pode ser atribuído à quiralidade. Também são apresentados os resultados do efeito Hall na fase supercondutora.

Capítulo 1 - O Supercondutor Magnético

$\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

Neste capítulo é apresentado um breve histórico sobre os aspectos gerais envolvendo as correlações entre supercondutividade e magnetismo. São também descritas as características principais do composto $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$, alvo de estudo deste trabalho.

1.1 - Introdução

Grande parte da pesquisa em supercondutividade compreende estudos detalhados do comportamento dos sistemas supercondutores sob ação de campos magnéticos. A resposta supercondutora frente à aplicação de um campo magnético é, conhecidamente, diamagnética. A busca pelo entendimento da supercondutividade, porém, tem conduzido à descoberta de vários sistemas supercondutores nos quais o comportamento frente a campos magnéticos, externos ou internos, não é convencional.

Supercondutividade e magnetismo, de um modo geral, são fenômenos mutuamente excludentes. O interesse sobre os efeitos competitivos entre supercondutividade e magnetismo teve início na década de 1950. O trabalho teórico publicado por Ginzburg^[1] sobre ferromagnetismo e supercondutividade foi o primeiro a ressaltar o caráter antagônico desses dois fenômenos. Sabe-se que a inclusão de momentos magnéticos locais na estrutura de um supercondutor reduz sua temperatura crítica (T_c) em virtude das interações de troca entre o momento magnético localizado e os elétrons do par de Cooper.

Nos supercondutores convencionais do tipo onda-s ocorre um efeito, chamado de quebra de pares por efeito magnético (“*magnetic pair-breaking*”), em que momentos magnéticos locais quebram o singlete de *spin* dos pares de Cooper, suprimindo a supercondutividade. Isso explica o fato de que, em grande parte dos supercondutores, a presença de pequenas concentrações de impurezas magnéticas é capaz de destruir completamente a supercondutividade. O comportamento de T_c em função da concentração de impurezas magnéticas em sistemas supercondutores foi previsto, de forma precisa, por Abrikosov e Gorkov^[2]. Posteriormente, essa predição foi verificada experimentalmente no sistema $\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$ ^[3].

1.2 - Os Supercondutores Magnéticos

A pesquisa de uma nova classe de supercondutores, chamados de supercondutores magnéticos, teve início com a descoberta das fases de Chevrel. Outra classe de materiais deste tipo são os compostos ternários RRh_4B_4 ^{[4], [5]} (R é um terra-rara), onde, mesmo com a presença de átomos com momento magnético não nulo, foi verificada a ocorrência da supercondutividade. Eisake^[6], ao estudar as propriedades do sistema TNi_2B_2C (T = Ho, Er, Tm), verificou a ocorrência da competição entre a supercondutividade e o magnetismo dos átomos T nesses compostos.

1.2.1 - As Fases de Chevrel

As fases de Chevrel tiveram papel precursor na discussão relacionada às propriedades de sistemas em que ocorre a coexistência de ordem magnética com supercondutividade. Em 1971, R. Chevrel e colaboradores^[7] reportaram a existência de uma série de compostos ternários do tipo $X_yMo_6S_8$, onde X é um átomo metálico (X= Li, Na, Mg, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Rb, Sr, Ag, Cd, Sn, Cs, Ba, Pb) e y assume valores entre 1 e 4, dependendo de X. A peculiar estrutura na forma de clusters desses compostos está representada na Figura 1.1^{*}. O composto $SnMo_6S_7$ já havia sido reportado em 1967 por Espelund^[8], mas coube a Roger Chevrel evidenciar a existência de uma nova classe de materiais deste tipo. Em homenagem a ele, os compostos derivados do sistema $X_yMo_6S_8$ receberam a denominação de Fases de Chevrel.

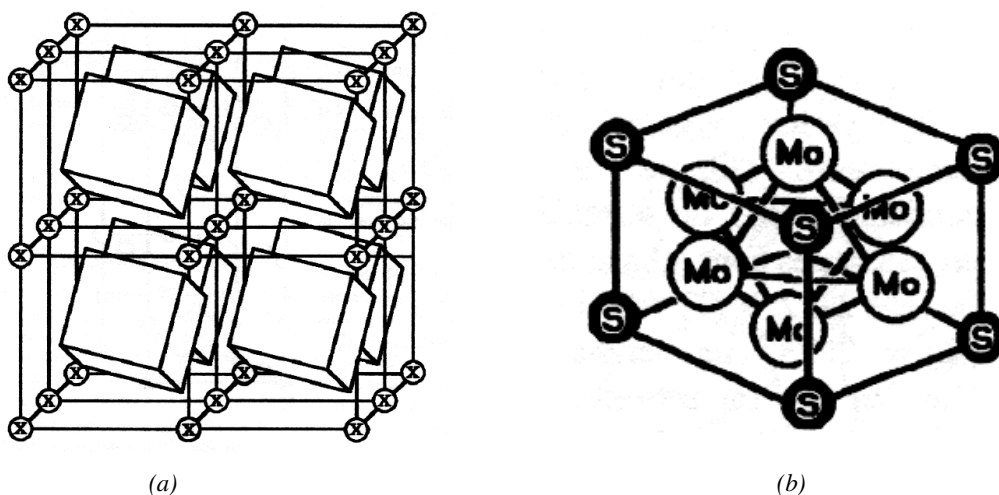


Figura 1.1 - (a) Estrutura das fases de Chevrel (os cubos representam os clusters de Molibdênio-Enxofre (Mo-S), X=Li, Na, Mg, K, Ca, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, Cu, Zn, Rb, Sr, Ag, Cd, Sn, Cs, Ba, Pb). (b) Cluster de Mo-S.

*ÉCOLE POLYTECHNIQUE FÉDÉRALE DE LAUSANNE, http://lanoswww.epfl.ch/studinfo/courses/cours_supra/Materiaux/default.htm

Em 1972, B. T. Matthias e colaboradores^[9] reportaram que muitas dessas novas fases eram supercondutoras. A maior temperatura crítica alcançada foi na composição PbMo_6S_8 , onde $T_c \approx 13,7$ K. Um ano depois, Ø. Fischer e colaboradores^{[10],[11]} descobriram que muitos desses novos compostos eram supercondutores mesmo quando submetidos a elevados campos magnéticos. A seqüência^[12] deste trabalho, influenciada pela descoberta dos compostos binários Mo_6Se_8 e Mo_6Te_8 , reportados por Opalowski e Fedorov^[13] e por Spiesser e colaboradores^[14], conduziu à descoberta de novas séries do tipo $\text{X}_y\text{Mo}_6\text{Se}_8$ e $\text{X}_y\text{Mo}_6\text{Te}_8$.

A descoberta da supercondutividade no sistema REMo_6S_8 ^[15] (RE = La, Ce, Pr, Nd, Sm, Eu, Gd, Tb, Dy, Ho, Er, Tm, Yb, Lu, Y) causou impacto na comunidade científica. Era a primeira vez que se observava a ocorrência de supercondutividade em um sistema contendo uma rede regular de íons magnéticos. A ordem magnética que foi encontrada nesses sistemas foi presumida como sendo de curto alcance, do tipo vidro de *spin*^{[16],[17],[18]}. A Figura 1.2 mostra a dependência da temperatura crítica com a concentração x de íons de Eu na série $\text{Sn}_{1,2(1-x)}\text{Eu}_x\text{Mo}_{6,35}\text{S}_6$.

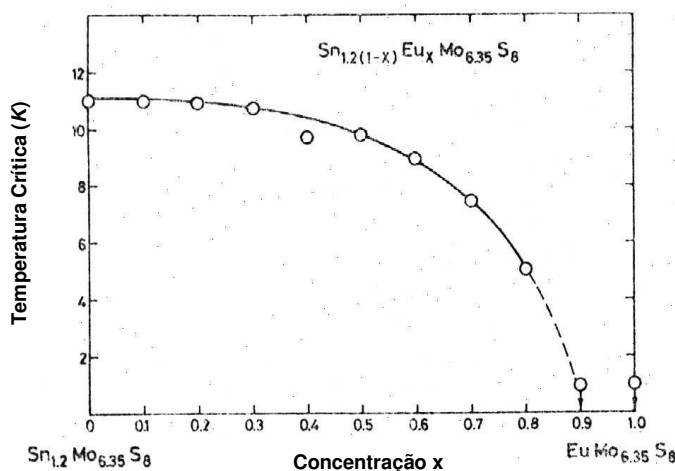


Figura 1.2 - Temperatura crítica versus concentração x dos íons de Eu no composto $\text{Sn}_{1,2(1-x)}\text{Eu}_x\text{Mo}_{6,35}\text{S}_6$.^[15]

As propriedades magnéticas das fases de Chevrel com íons terra-rara foram amplamente estudadas^[19]. A primeira indicação de uma transição de fase magnética no estado supercondutor foi obtida em uma medida de calor específico no GdMo_6Se_8 ^[20]. Esse composto apresentou uma anomalia do tipo λ em $T = 3,5$ K, que é inferior àquela em que se estabiliza o estado supercondutor, em $T_c = 5,5$ K. Esse comportamento é mostrado na Figura 1.3, juntamente com a dependência do calor específico com a temperatura dos compostos LaMo_6Se_8 e $\text{Lu}_{1,2}\text{Mo}_6\text{Se}_8$. O pico observado em $T = 3,5$ K não é atribuído a uma ordem magnética de longo alcance, pois não corresponde a um

ordenamento completo dos *spins* do Gd. Entretanto, o outro pico em $T = 0,8$ K, medido posteriormente, foi reportado como resultado de um completo ordenamento magnético desses íons.

Ishikawa e Fischer^[21] propuseram a coexistência de supercondutividade com uma ordem antiferromagnética em $RE_{1,2}Mo_6S_8$ para $RE = Gd, Tb, Dy$ e Er , posteriormente confirmada por experimentos de espalhamento de nêutrons^[20].

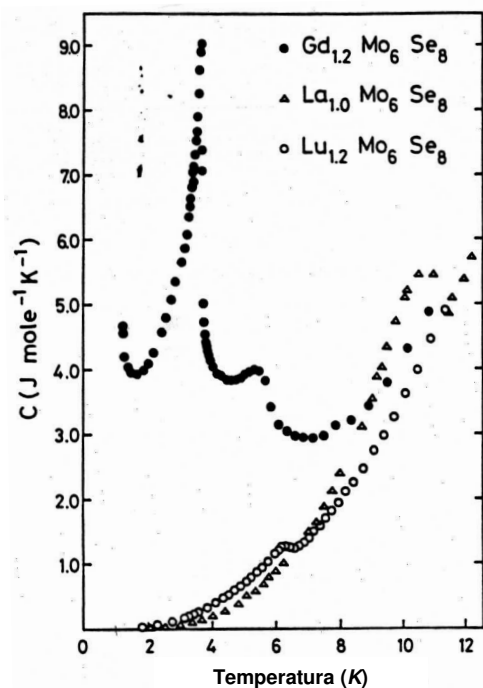


Figura 1.3 - Anomalia do calor específico do $GdMo_6S_8$.^[20]

Não foi encontrada nenhuma correlação entre a ocorrência da supercondutividade nas fases de Chevrel $X_yMo_6S_8$ e as propriedades supercondutoras do elemento X. Esse resultado, combinado à existência de supercondutividade no sistema $RE_xMo_6Q_8$ ($x = 1,0$ ou $1,2$; $RE =$ Terra Rara, exceto Ce e Eu; $Q = Se$ ou S), aos elevados campos críticos e à particular estrutura de clusters de muitos desses compostos, levou a conclusão de que os elétrons de condução nesses sistemas são elétrons 4d do Molibdênio^[15]. A supercondutividade foi, portanto, atribuída aos clusters de Mo, enquanto que o elemento X entra na fase de Chevrel como um íon transferindo carga para o cluster.

1.2.2 - Os Boretos de Rhódio e Terra-Rara

No sistema $RERh_4B_4$, compostos com $RE = Nd, Sm, Er, Tm$ ou Lu exibem supercondutividade, enquanto que compostos com $RE = Gd, Ho, Tb$ ou Dy evoluem para um ordenamento ferromagnético^{[22],[23]}. A pesquisa desenvolvida a partir das fases de Chevrel mostrou

que supercondutividade pode coexistir com um ordenamento antiferromagnético nesses sistemas. Entretanto, nenhuma evidência experimental havia sido encontrada, até então, da coexistência de supercondutividade e uma ordem magnética de longo alcance. A presença de supercondutividade e ferromagnetismo no sistema $RERh_4B_4$ ($RE =$ terra-rara) sugeriu que esses dois fenômenos pudessem coexistir em alguns compostos dessa série. W. A. Fertig^[5] reportou que abaixo da temperatura de transição supercondutora do composto $ErRh_4B_4$ ($T_{c1} \sim 8,7$ K) ocorre uma segunda transição, em $T_{c2} \sim 0,9$ K, onde o estado resistivo normal é re-estabelecido e o composto exibe um ordenamento magnético de longo alcance devido ao momento magnético do Er^{3+} (Figura 1.4).

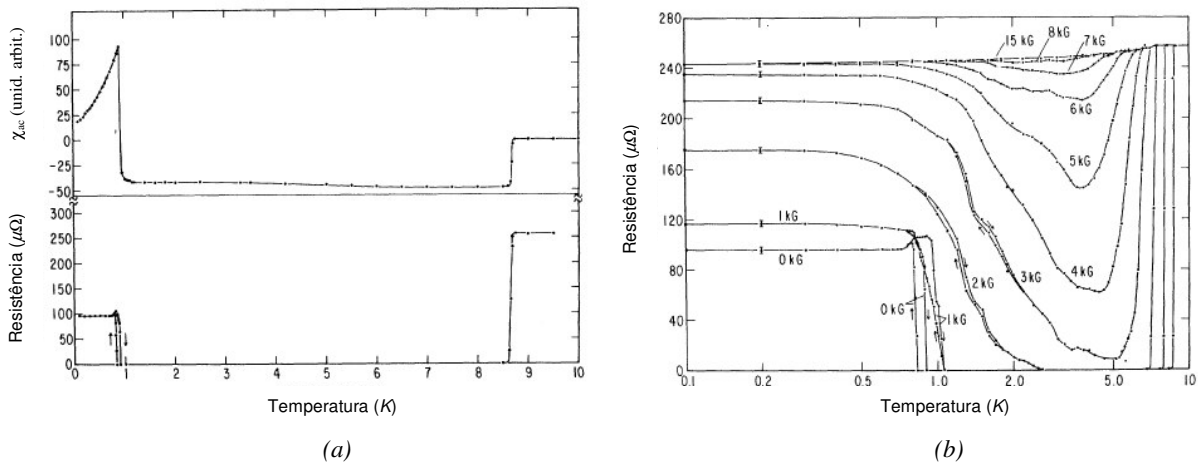


Figura 1.4 - (a) Susceptibilidade magnética (acima) e resistência elétrica (abaixo) versus temperatura para o $ErRh_4B_4$ em campo nulo. (b) Resistência elétrica AC (15Hz) versus temperatura para $ErRh_4B_4$ para campos aplicados entre 0 e 15 kG.^[5]

Os íons de Er, que estabilizam a fase supercondutora (tetragonal primitiva) do $ErRh_4B_4$, são os mesmos que, em baixas temperaturas, destroem a supercondutividade nesse composto. Em contraste com os resultados reportados para o sistema $RE_xMo_6Se_8$ ($x = 1,0$ ou $1,2$; RE = Terra Rara)^[24], onde o ordenamento magnético de longo alcance não destrói a supercondutividade, o ordenamento magnético que acompanha o retorno ao estado normal do $ErRh_4B_4$ foi a primeira evidência do fenômeno de reentrância que caracteriza a competição entre ordens supercondutora e magnética.

Dois tipos de ordenamento magnético foram reportados para o $ErRh_4B_4$. Para policristais de estrutura tetragonal primitiva, o ordenamento é ferromagnético^[5], enquanto que para monocristais de estrutura tetragonal de corpo centrado é a ordem antiferromagnética que se estabiliza^[25].

1.2.3 - Os Carbetos de Níquel, Boro e Terra-Rara

Em 1994 descobriu-se que os compostos da série $RENi_2B_2C$ ($RE = Lu, Tm, Er, Ho, Y$)^[26], denominados carbetos de níquel/boro/terra-rara, ou simplesmente borocarbeto, evoluíram para o estado supercondutor, incluindo aqueles em que contavam com os íons terra-rara magnéticos, Tm, Er, Ho ($T_c=7,5$ K para o Ho). A maior temperatura crítica alcançada, $T_c=16,6$ K, ocorre para a composição $LuNi_2B_2C$. Nesse mesmo ano, observou-se que os compostos da série $RENi_2B_2C$ ($RE = Ho, Tm, Er, Dy, Tb$)^[6] pertenciam à mesma classe das famílias $RERh_4B_4$ e $REMo_6S_8$, apresentando coexistência entre supercondutividade e antiferromagnetismo. A Figura 1.5 mostra as transições resistivas para os borocarbeto de Tm, Er, Ho na presença de campos magnéticos aplicados.

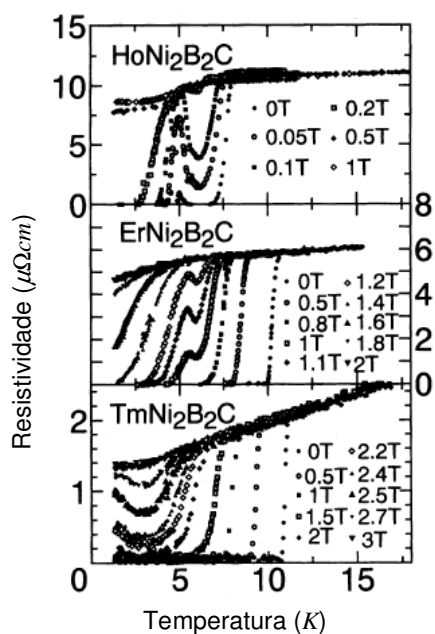


Figura 1.5 - Dependência da resistividade com a temperatura na presença de campos magnéticos para os compostos $HoNi_2B_2C$, $ErNi_2B_2C$ e $TmNi_2B_2C$.^[6]

A anomalia mais pronunciada é observada no composto com Ho, onde nas medidas com campos abaixo de 0,2 T a primeira transição resistiva para o estado supercondutor ocorre em torno de 7 K. Porém, em 5 K observa-se um pico na resistividade, indicando que a amostra recupera o estado resistivo normal, retornando em seguida para o estado supercondutor em temperaturas mais baixas. Nesse composto, quando um campo magnético maior que H_{c2} é aplicado, observa-se também um decréscimo na susceptibilidade abaixo de 5 K, indicando que a temperatura em que ocorre o

ordenamento magnético coincide com a temperatura em que começa o comportamento resistivo reentrante, dando fortes evidências de que a reentrância é associada ao antiferromagnetismo.

A Figura 1.6 (a) mostra o comportamento anômalo de H_{c2} em função da temperatura que os compostos em que RE = Tm, Er e Ho comparativamente ao comportamento normal dos sistemas em que RE = Y e Lu. A Figura 1.6 (b) apresenta resultados de susceptibilidade magnética em função da temperatura para os compostos em que RE = Dy e Ho.

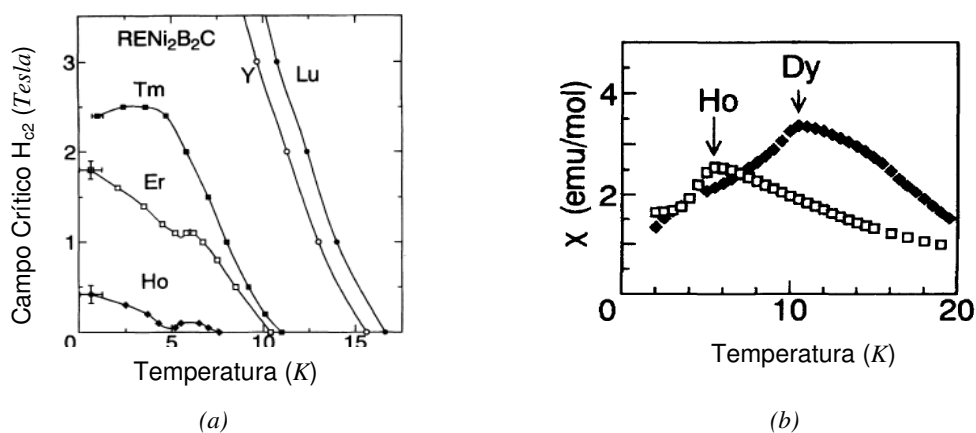


Figura 1.6 - (a) Campo crítico superior H_{c2} como função da temperatura para os compostos $HoNi_2B_2C$, $ErNi_2B_2C$ e $TmNi_2B_2C$. (b) Susceptibilidade como função da temperatura para os compostos $HoNi_2B_2C$ e $DyNi_2B_2C$. Para o $HoNi_2B_2C$ um campo magnético de 5 kG, maior que H_{c2} , foi aplicado para eliminar a contribuição diamagnética devido à supercondutividade^[6] (subtende-se que a susceptibilidade em unidades de emu/mol seja equivalente a emu/mol.Oe).

Nos sistemas da série $RENi_2B_2C$ (RE= Er, Ho, Tm, Dy, Tb), ocorre tanto a transição para o estado supercondutor quanto a estabilização de uma ordem antiferromagnética. As temperaturas críticas de transição supercondutora desses compostos estão entre 2 K e 15 K, enquanto que o ordenamento antiferromagnético geralmente ocorre a temperaturas mais baixas, sendo que a razão típica T_N/T_c é da ordem de 0,1 ~ 0,5, onde T_N é a temperatura de Néel.

Supercondutividade e magnetismo atuando de forma cooperativa, em escala microscópica, é, portanto, uma realidade em alguns sistemas. Isso, porém, contraria as previsões dos estudos teóricos de Ginzburg^[1], que descartam a possibilidade de tal coexistência devido à quebra dos pares do Cooper causado pela interação eletromagnética. Atribui-se a peculiar coexistência entre supercondutividade e magnetismo nos compostos mencionados ao fato de que as estabilizações das ordens magnética e da supercondutora estarem relacionadas a sítios cristalográficos diferentes. Dessa forma, os íons magnéticos estão espacialmente isolados dos caminhos da supercorrente, o que enfraquece a interação dos momentos magnéticos locais com os elétrons de condução.

1.2.4 - O composto UGe_2

Em todos os exemplos de sistemas em que ocorre a coexistência de supercondutividade com magnetismo citados nessa seção, as estabilizações da ordem magnética e do estado superconductor ocorrem em sítios cristalográficos distintos. Entretanto, recentemente verificou-se que em alguns compostos ($ZrZn_2$ ^[123] e UGe_2 ^[117]) a coexistência ocorre de forma genuína. No caso do UGe_2 , a supercondutividade deve-se não mais a formação tipo singleto-de-*spin*, mas a partir da estabilização dos pares de cooper num estado tipo tripleto-de-*spin*. Nesse composto a supercondutividade se estabiliza dentro da fase ferromagnética em torno de 1 K num regime de altas pressões (entre 1 e 1,5 GPa). A Figura 1.7 ilustra a estrutura do UGe_2 e o diagrama de fases Temperatura versus Pressão.

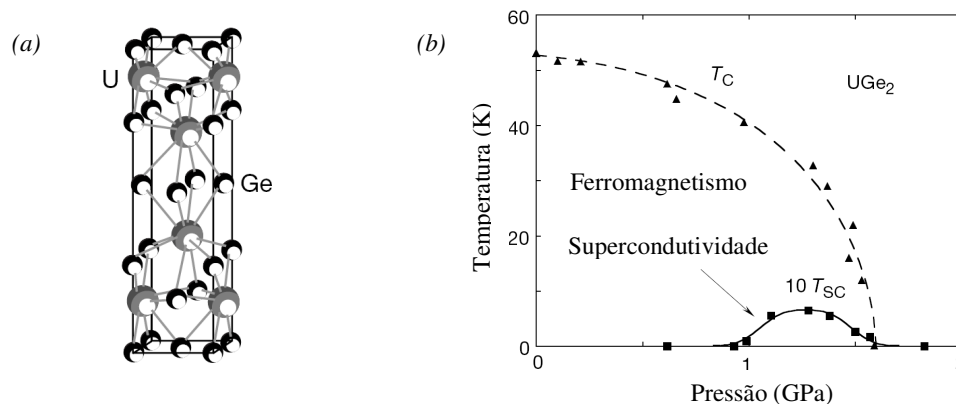


Figura 1.7 - (a) Estrutura do UGe_2 . (b) Diagrama de fase temperatura pressão para o composto UGe_2 . T_c denota a temperatura de Curie, enquanto que T_{sc} corresponde à temperatura de transição supercondutora.^[117]

1.3 - O Sistema $RBa_2Cu_3O_7$

O $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ^[27] foi o primeiro composto a exibir supercondutividade numa temperatura superior ao ponto de ebulição do nitrogênio líquido ($T_c \approx 92$ K). Esta descoberta motivou a substituição do íon Y por elementos terras-raras. Em especial, os sistemas $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (RBCO, R = Nd, Gd, Sm, Dy, Er, Ho)^[116] apresentam temperaturas críticas superiores a 90 K e ordenam-se antiferromagneticamente em temperaturas muito baixas (ver Tabela 1.1). Esse resultado não era esperado, pois a expectativa era que a presença de um íon magnético tipo 4f (R^{3+}) suprimisse a supercondutividade, como, em geral, ocorre nos supercondutores convencionais.

Íon R^{3+}	T_N (K)
Ho ^[107]	0,17
Nd ^[106]	0,5
Er ^[107]	0,6
Sm ^[106]	0,7
Dy ^{[106],[107]}	0,95
Gd ^[106]	2,23

Tabela 1.1 - Temperatura de Néel para amostras do sistema $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$.

A supercondutividade de alta temperatura nos $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ levantou várias questões relativas à coexistência de magnetismo e supercondutividade nestes compostos. Diversas técnicas experimentais reportam que os íons R^{3+} não exercem influência sobre a temperatura de transição supercondutora. Esses resultados têm sido interpretados com base na estrutura cristalina dos $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, onde os íons R^{3+} estão isoladamente posicionados em relação às camadas de Cu-O₂ responsáveis pela condução (Figura 1.8). Assim, espera-se^[29] que existam apenas interações fracas, insuficientes para degradar a supercondutividade, entre os momentos dos íons R^{3+} e as camadas supercondutoras. Estudos teóricos^[30] reforçam a idéia de que a interação dipolo-dipolo é responsável pela transição magnética, observada em baixas temperaturas nos compostos $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, sugerindo que os elétrons de condução não estão acoplados com os íons magnéticos.

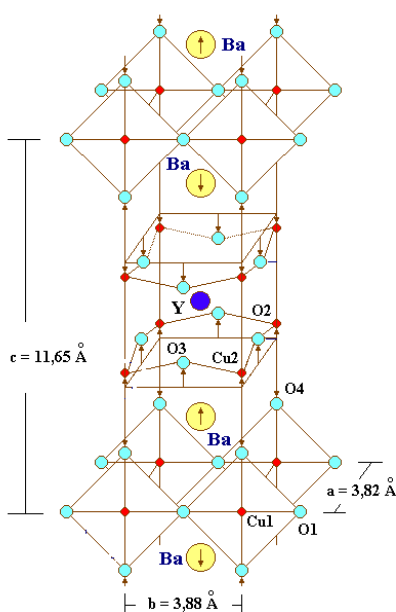


Figura 1.8 - Estrutura cristalina da célula unitária do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. A estrutura cristalina dos compostos do tipo $RBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ é obtida substituindo-se com o átomo de Y pelo terra-rara (R).^[108]

1.4 - O Composto $RuSr_2GdCu_2O_8$

Muita ênfase foi dada na substituição atômica nos materiais RBCO, possibilitando a geração de novos compostos supercondutores magnéticos. Entre eles, encontramos os sistemas $MRE_{1,5}Ce_{0,5}Sr_2Cu_2O_{10}$ (M-1222, M = Nb, Ru, Ta, RE = Terra Rara, em geral Eu ou Gd)^{[31], [32]} e $RuSr_2(Gd,Eu)Cu_2O_8$ (Ru-1212)^[33]. Este último diferencia-se dos outros compostos óxidos supercondutores, apresentando um ordenamento magnético de longo alcance em $T_M \approx 122-180$ K. Essa temperatura é mais elevada que a da transição supercondutora, que ocorre em $T_c \approx 15-50$ K. A temperatura de transição dos compostos tipo Ru-1212 é fortemente dependente do método de preparação da amostra, e, em média, fica em torno de 40 K. Segundo a literatura, a temperatura crítica mais elevada reportada para este composto é $T_c = 50$ K^[34].

Os compostos $RuSr_2LnCu_2O_8$ (Ru-1212) e $RuSr_2(Ln_{1,5}Ce_{0,5})Cu_2O_{10}$ (Ru-1222), onde Ln = Gd, Eu, Sm, denominados de rutenocupratos, amplamente estudados e caracterizados, foram reportados em 1995 como sendo supercondutores não magnéticos por L. Bauernfeind e colaboradores^{[33], [35]}. Em 1997, I. Felner e colaboradores^[28] reportaram a ocorrência de uma transição magnética nos rutenocupratos em torno de 133 K. A ordem magnética foi presumida como sendo do tipo ferromagnética. Em 1999, uma série de trabalhos^{[36], [37], [38], [39], [40]} intensificou os estudos a respeito da coexistência entre supercondutividade e magnetismo nos rutenocupratos. Alguns trabalhos^{[41], [42]} indicavam que as propriedades magnéticas e supercondutoras eram dependentes do método de preparação das amostras.

1.4.1 - Estrutura do Composto $RuSr_2GdCu_2O_8$

A estrutura cristalina do $RuSr_2GdCu_2O_8$, analisada por difração de raios x^[43] e por difração de nêutrons^[44], é tetragonal ($a = b < c$). Os difratogramas das Figuras 1.9 e 1.10 mostram que numa amostra policristalina de $RuSr_2GdCu_2O_8$ (Ru(Gd)-1212) pode ocorrer a formação de fases espúrias de $CuGd_2O_4$ e $SrRuO_3$. No Ru-1212 formam-se planos de CuO_2 e RuO_2 que se empilham, alternadamente, na direção perpendicular ao eixo-c. Comparando com o $YBa_2Cu_3O_7$, observa-se a semelhança estrutural entre estes dois compostos. Substituindo os átomos de Y, Ba e o Cu das cadeias atômicas Cu-O do $YBa_2Cu_3O_7$ por Gd, Sr e Ru, respectivamente, obtêm-se a estrutura do $RuGd_2SrCu_2O_8$ ^[45] (Figura 1.11). Por ser pentavalente, o íon de Ru no Ru(Gd)-1212 liga-se a um átomo de oxigênio a mais do que o íon de Y no $YBa_2Cu_3O_7$. Assim, no Ru(Gd)-1212 não existem as cadeias de Cu-O paralelas ao eixo cristalino b, tal como no $YBa_2Cu_3O_7$, que é ortorrômbico.

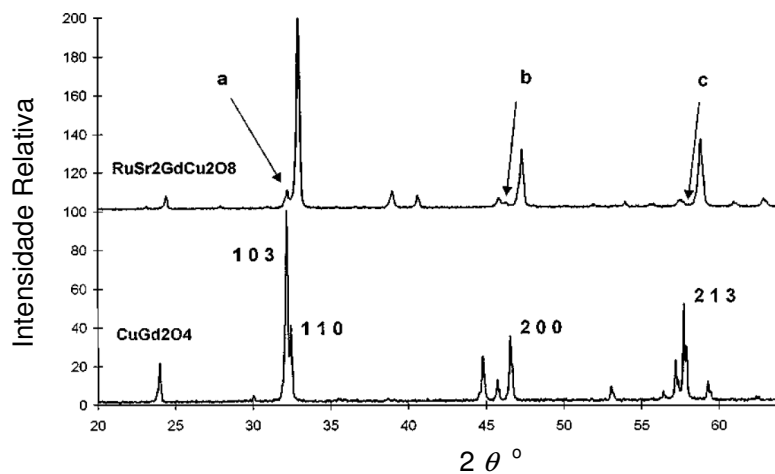


Figura 1.9 - Difratograma de Raios X de uma amostras de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. As letras a, b e c representam, respectivamente, os picos relativos ao planos (103), (110), (200) e (213) da fase CuGd_2O_4 .^[47]

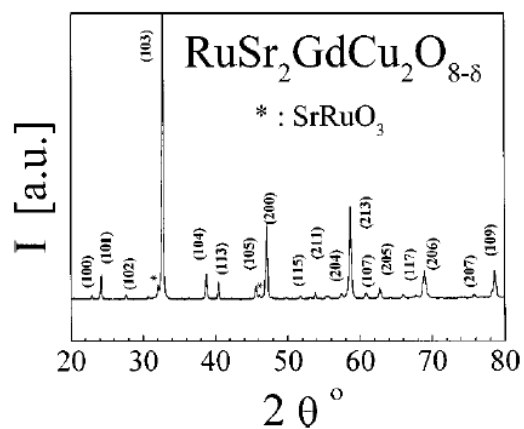


Figura 1.10 - Difratograma de Raios X de uma amostras de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. Os parâmetros de rede são $a = b = 3.8218(6) \text{ \AA}$ e $c = 11.476(1) \text{ \AA}$. * Foi observado, nessa amostra, uma pequena quantidade de SrRuO_3 .^[46]

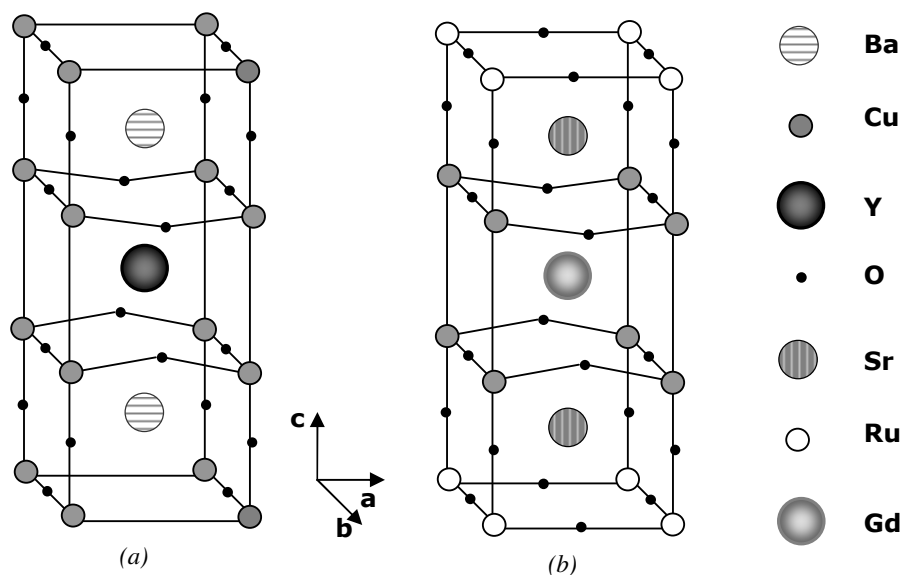


Figura 1.11 - Estruturas do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ (a) e do $\text{RuGd}_2\text{SrCu}_2\text{O}_8$ (b).

A cela unitária do Ru-1212 pode ser descrita^[38], também, como sendo formada por um octaedro com íons de oxigênio nos vértices e um átomo de Ru no centro. Os átomos de Cu encontram-se numa posição coordenada por cinco íons de oxigênio, formando uma estrutura piramidal. A Figura 1.12 – (a) ilustra essa estrutura.

A distância inter-atômica Cu-O(1) (2,190 Å) é maior que a Ru-O(1) (1,912 Å). Então, o Cu interage mais fracamente com o O(1). Assim, os planos de Cu-O(1) podem ser considerados como estruturas eletrônicas bidimensionais (2D). Para preencher o espaço com maior eficiência^[45], os octaedros RuO₆ (Figura 1.12 -(b)) sofrem uma rotação de aproximadamente 14° em torno do eixo-c. Assim, a estrutura do Ru-1212 é melhor caracterizada^[45] pelo grupo espacial *P4/mbm*. Isso faz com que ocorram modificações nas posições dos sítios cristalográficos de alguns átomos. Essa distorção estrutural pode perturbar fortemente o magnetismo do Ru.

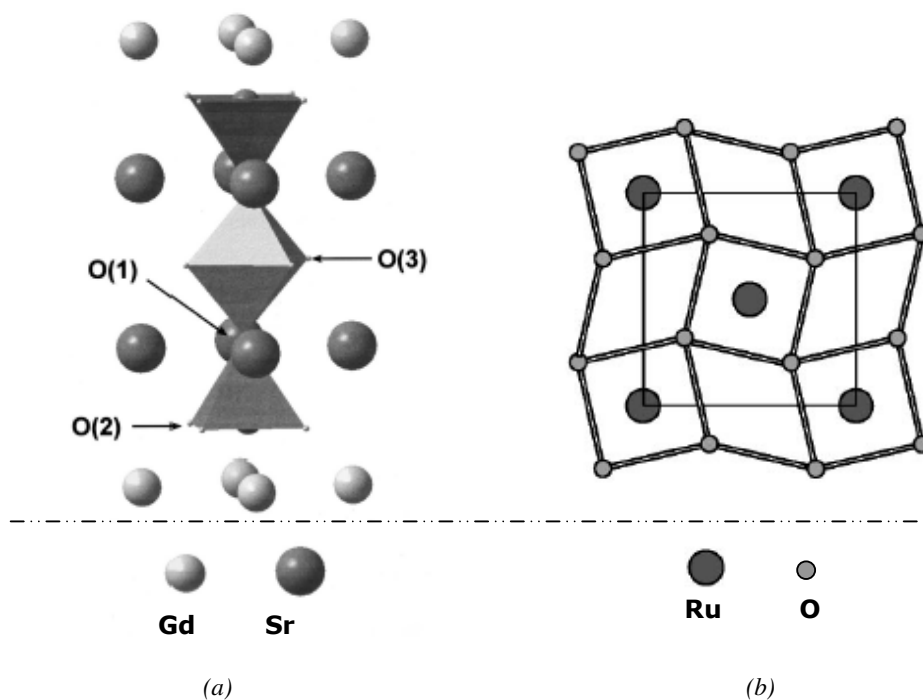


Figura 1.12 - Estrutura do RuGd-1212: (a) O átomo de Ru encontra-se no centro do octaedro. Os átomos de Cu encontram-se no centro da base das pirâmides. A posição O(1) é denominada apical. A posição O(2) é coordenada com os átomos de Cu, enquanto que a posição O(3) é coordenada com o átomo de Ru^[38]. (b) Distorções no plano Ru-O(3)^[48].

1.4.2 - A Transição Resistiva do RuSr₂GdCu₂O₈.

Uma característica inerente aos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica é a dependência quase linear e crescente da resistividade elétrica com a temperatura em uma região que se estende desde temperaturas superiores à ambiente, até valores próximos à transição

supercondutora. Esse comportamento ilustra o caráter do tipo metálico apresentado por esses compostos nesse intervalo de temperatura. No $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$, esse comportamento é observado até próximo de $T_N \approx 133$ K, onde ocorre uma transição magnética (Figura 1.13). Abaixo de $T \approx 100$ K, o comportamento resistivo de certas amostras desse sistema é semelhante ao de um semiconductor, até a transição supercondutora.

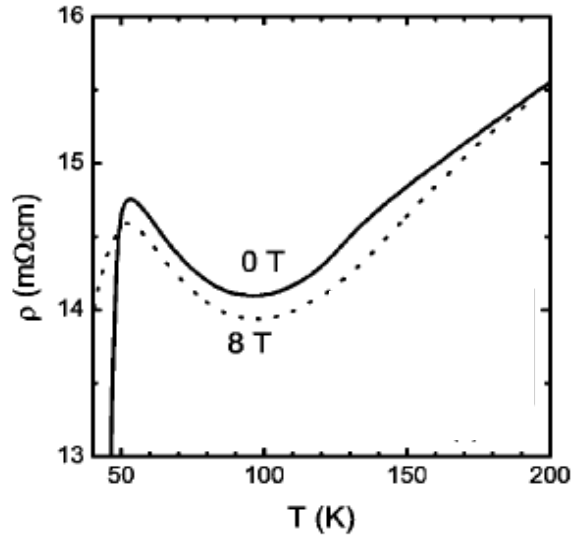


Figura 1.13 - Resultado representativo para a dependência com a temperatura da resistividade elétrica do $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ em campo nulo e em 8 T. ^[54]

1.4.3 - Propriedades Magnéticas do $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

As primeiras caracterizações do $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (RuGd-1212) descreviam-no ^{[37], [40]} como sendo um sistema onde é estabelecida uma ordem ferromagnética associada aos momentos magnéticos do Ru ($\mu^{\text{Ru}} \approx 1\mu_B$) em $T_{\text{Curie}} \approx 133\text{-}136$ K. A cúspide observada na susceptibilidade ZFC desse composto (Figura 1.14-(a)) e a magnetização FC (Figura 1.14-(b)) foram interpretadas como evidências de ordenamento ferromagnético. A substituição do Gd por Y no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$, resultou no composto $\text{RuSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$ ^[49], onde se pôde eliminar a contribuição magnética do Gd, comprovando, em medidas de NMR ^[49], que a transição magnética observada em ~ 133 K deve-se ao Ru. No RuGd-1212 , a transição para o estado supercondutor ocorre em $T_c \approx 15\text{-}40$ K. Somente em 2,6 K os íons de Gd ($\mu^{\text{Gd}} \approx 7,4\mu_B$) ordenam-se antiferromagneticamente ^[37], provavelmente em razão da interação dipolar. Nesse sistema, a surpresa maior foi a descoberta de que a ordem do tipo ferromagnética se mantinha inalterada mesmo no regime supercondutor. Este fato gerou questionamento acerca da coexistência destes estados em escala microscópica. Medidas de calor específico ^[50] indicam uma transição supercondutora dentro da fase magnética, enquanto que

experimentos de “*muon spin rotation* (μ SR)[†]” sugerem que a fase ferromagnética é homogênea em escala microscópica e não impede o surgimento do estado supercondutor.^{[36], [37], [38], [39]}

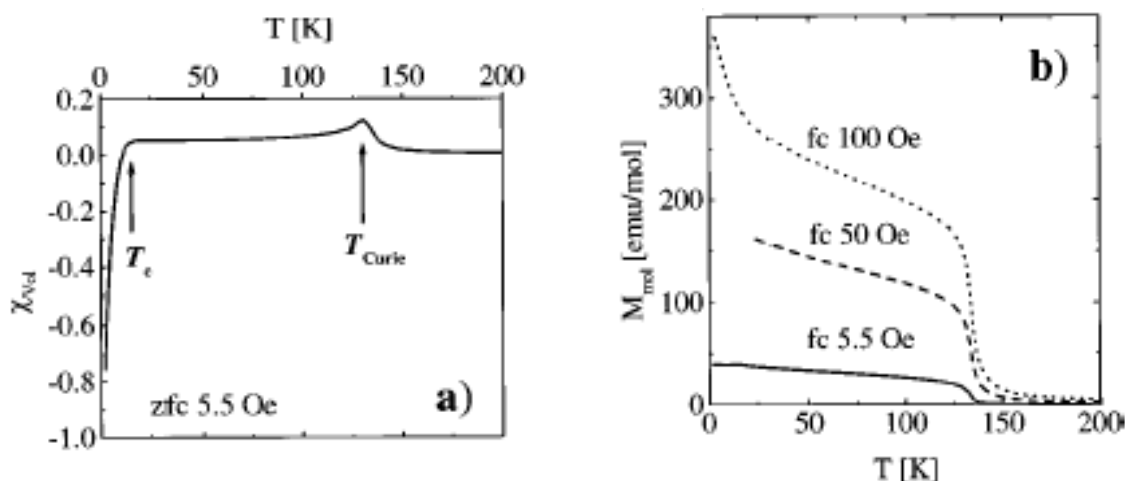


Figura 1.14 - Dependência com a temperatura, da susceptibilidade magnética ZFC (a) e da magnetização FC (b) do $RuSr_2GdCu_2O_8$.^[37]

A fase tipo ferromagnética do $RuSr_2GdCu_2O_8$ foi atribuída aos momentos ordenados dos íons de rutênio alinhados paralelamente aos planos RuO_2 , enquanto que a supercondutividade se desenvolve nos planos CuO_2 ; ou seja, o transporte de carga elétrica é puramente bidimensional e é feito somente nos planos de CuO_2 ^[37]. Devido a essa configuração, o efeito de quebra de pares causado pela interação eletromagnética é minimizado, possibilitando a coincidência dessas duas fases.

1.4.4 - A estrutura Magnética do $RuSr_2GdCu_2O_8$.

A determinação da estrutura magnética do Ru-1212 é causa de muita discussão na comunidade científica. Medidas de difração de nêutrons^[51] indicam que a ordem magnética do Rutênio é, na verdade, predominantemente antiferromagnética. Com isso, o ordenamento magnético que se estabelece em 133 K é do tipo antiferromagnético, elevando o composto $RuGd_2SrCu_2O_8$ ao posto de sistema com ordenamento antiferromagnético coexistindo com supercondutividade à maior temperatura até então conhecida. Nakamura e Freeman^[48] calcularam a estrutura magnética do

[†] A técnica de μ SR pode ser aplicada ao estudo de materiais magnéticos. Ela fornece informações a respeito da homogeneidade do estado magnético em escala microscópica. As medidas permitem detectar campos magnéticos internos num extenso intervalo entre 0,1 G e muitos Teslas. (A. Schenck, *Muon Spin Rotation: Principles and Applications in Solid State Physics* (Adam Hilger, Bristol, 1986)).

Ru-1212 considerando três combinações possíveis (Figura 1.15) entre os ordenamentos magnéticos dos momentos do Ru e do Gd:

- i) Uma estrutura Ferromagnética (FM) com ordens ferromagnéticas para ambos os momentos de Ru e Gd;
- ii) Uma estrutura Antiferromagnética (AFM-I) com ordem antiferromagnética do tipo-c para os momentos do Ru e ferromagnética para os momentos do Gd;
- iii) Uma estrutura Antiferromagnética (AFM-II) com ordem antiferromagnética do tipo-c para ambos momentos do Ru e do Gd.

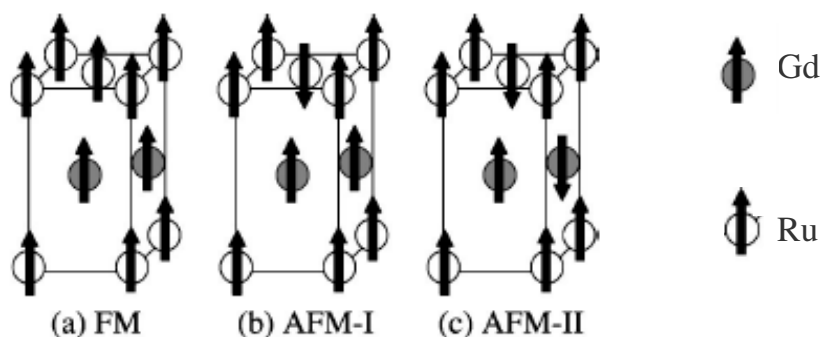


Figura 1.15 - Estrutura Magnética dos momentos do Ru e Gd, no composto $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$, apresentando ordenamento (a) Ferromagnético, (b) Antiferromagnético (que também pode ser caracterizado como Ferrimagnético), (c) Antiferromagnético.^[52] Os átomos de Cu, O(1) O(2), e O(3) não são mostrados.

Os resultados reportados por Nakamura e Freeman^[48] indicam que o alinhamento antiferromagnético dos momentos magnéticos do Ru é energeticamente mais favorável do que o ferromagnético, estabelecendo uma consistência com as experiências de difração de nêutrons de Lynn e colaboradores^[51], tornando a coexistência de supercondutividade e antiferromagnetismo claramente possível. Verificaram também que uma ordem antiferromagnética (AFM-II) para os momentos do Gd reduz a energia total da estrutura por $2,3 \text{ meV/átomo}$ de Gd.

Os estudos mais recentes de difração de nêutrons de Jorgensen e colaboradores^[53] reportam que, na estrutura magnética deste composto, os momentos magnéticos do Ru estão ordenados antiferromagneticamente ao longo do eixo-c. Estes autores propõem a existência de um “canting” dos momentos magnéticos na orientação perpendicular a esse eixo, que induziria um ferromagnetismo fraco na orientação paralela aos planos de Ru-O₂ (Figura 1.16 - (a)). Isso poderia explicar a histerese observada no RuGd-1212.

A Figura 1.16 - (b) mostra ciclos de histerese magnética em temperaturas acima de T_N , em 200 K, entre T_N e T_c , em 50 K, e abaixo de T_c , em 5 K.^[37] Observa-se uma pequena histerese que se

alarga conforme a temperatura diminui, acusando uma contribuição do tipo ferromagnética na magnetização do sistema.

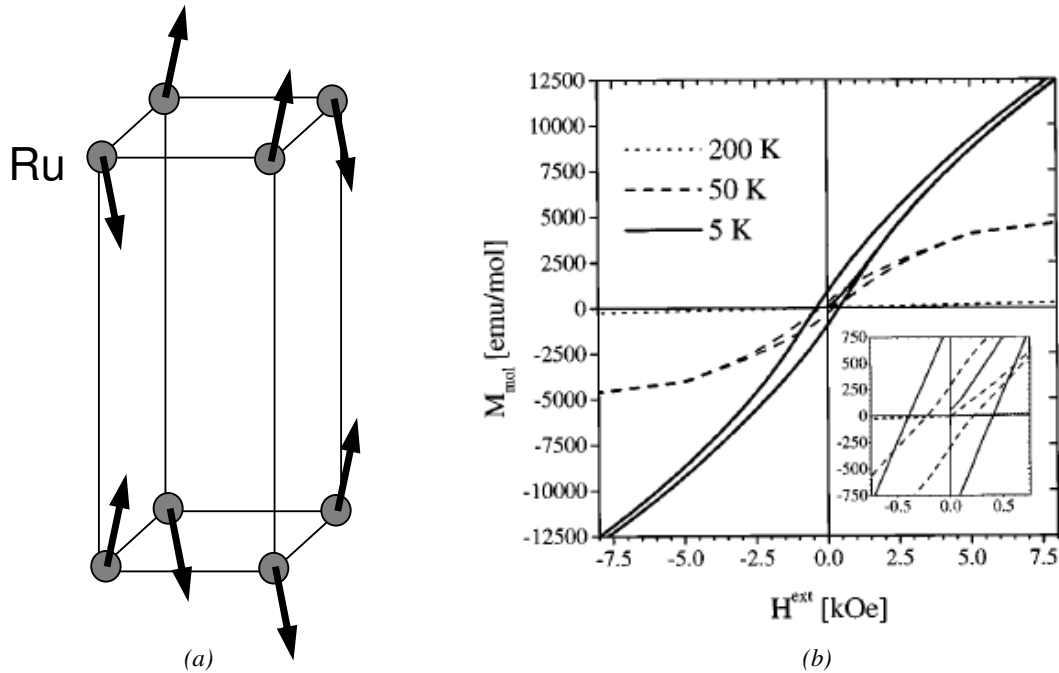


Figura 1.16 - (a) Modelo para a estrutura magnética do $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.^[53] (b) Histerese magnética do $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.^[37]

1.4.5 - O modelo de polarons magnéticos para o $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

Aligia e Gusmão^[100] propuseram um modelo para explicar o comportamento tipo ferromagnético que se estabelece nos compostos $\text{RuSr}_2(\text{Eu,Gd})\text{Cu}_2\text{O}_8$ sugerindo que ocorra a transferência de carga entre os planos de Cu-O_2 (dopados com lacunas) e de Ru-O_2 (dopados com elétrons). O modelo, no caso “não dopado” (sem essa transferência de carga), é equivalente a um mecanismo de super troca que favorece um acoplamento antiferromagnético entre *spins* localizados. No caso “dopado” (com a transferência), os planos de Ru-O_2 podem ser considerados como uma matriz antiferromagnética onde ocorre a formação de polarons ferromagnéticos através do mecanismo de dupla troca^{[118],[119]}. Os polarons seriam estabilizados em torno de íons Ru 4+ resultantes da dopagem por elétrons. Como esses polarons são móveis, poderia ocorrer condução por elétrons nos planos de Ru-O_2 , embora a condução no RuGd-1212 seja majoritariamente feita por lacunas nos planos de Cu-O_2 .

1.4.6 - Efeito Hall no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

A Figura 1.17-(a) apresenta os resultados obtidos por M. Požec^[54], onde a resistividade Hall (ρ_H) de uma amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ foi medida como função do campo aplicado em temperaturas constantes acima e abaixo da transição magnética. Observa-se que ρ_H é positivo no intervalo de temperaturas acima de T_c , o que indica que os portadores de carga são lacunas. Na temperatura de 124,5 K, abaixo de T_N , em campos aplicados menores que 1 T, observou-se um aumento não-linear da resistividade Hall com o campo. Para campos magnéticos mais intensos, domina a dependência linear de ρ_H com o campo magnético. O aumento não-linear de ρ_H foi reportado como sendo fruto da componente Hall extraordinária, que será discutida no Capítulo 2, devida ao ordenamento magnético que se estabelece abaixo de T_N .

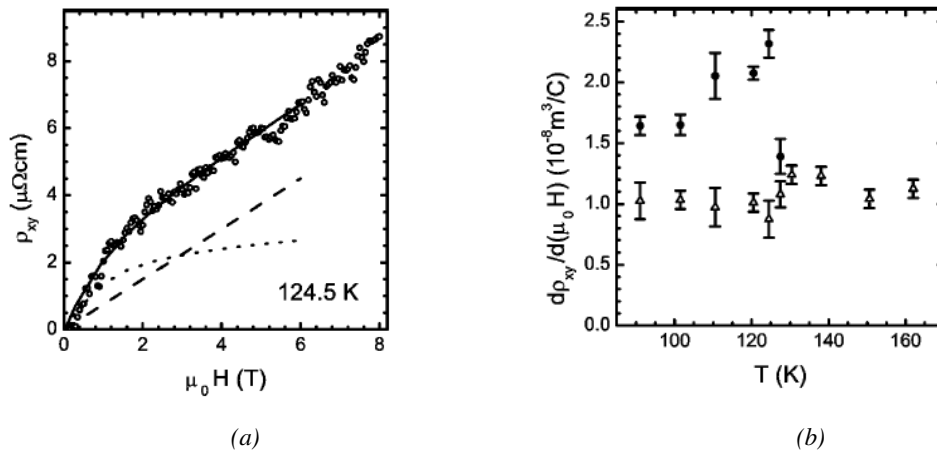


Figura 1.17 - (a) Resistividade Hall numa amostra cerâmica de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ em 124,5 K (círculos). A linha tracejada representa a componente ordinária da resistividade Hall, enquanto que a linha pontilhada representa a sua componente extraordinária^[54]. (b) $d\rho_H/d(\mu_0 H)$ versus temperatura no regime de baixo campo (círculos preenchidos) e alto campo (triângulos vazios) numa amostra cerâmica de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$.^[54]

O desenvolvimento do efeito Hall extraordinário pode ser visto na Figura 1.17-(b), onde mostra-se a variação da resistividade Hall com o campo magnético, $d\rho_H/d(\mu_0 H)$, em regimes de altos e baixos campos. Em altos campos, $d\rho_H/d(\mu_0 H)$ é praticamente independente da temperatura e, para $T < T_N$, os valores reportados são menores do que no regime de baixos campos.^[54]

O fato de que $d\rho_H/d(\mu_0 H)$ no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$ é pouco maior que o observado no $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ^[55] ($R_H \sim 0,8 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ C}^{-1}$) e muito maior do que o observado no SrRuO_3 ^[56] ($R_H \sim 0,06 \cdot 10^{-8} \text{ m}^3 \text{ C}^{-1}$), sugere que o efeito Hall ordinário decorre predominantemente da condução por lacunas nos planos de Cu-O_2 . Entretanto, a ocorrência do efeito Hall extraordinário nesse

composto indica que os planos de Ru-O também participam da condução. A Figura 1.18 apresenta a densidade de portadores, em 293 K, para as séries de $Ru_{1-x}Sr_2GdCu_{2+x}O_{8-\delta}$ ^[57], em função da dopagem de Cu no sítio do Ru, obtida a partir de experimentos de efeito Hall utilizando a equação $n_H = \frac{1}{R_H e}$. Para a amostra não dopada ($x = 0$), a estimativa para a densidade de lacunas é $n_H \approx 1,6 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$.

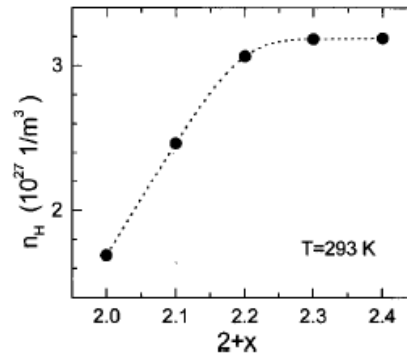


Figura 1.18 - Densidade de portadores versus quantidade de Cu na série $Ru_{1-x}Sr_2GdCu_{2+x}O_{8-\delta}$ ^[57].

Capítulo 2 - Efeito Hall

Neste capítulo serão apresentados os conceitos teóricos relevantes ao entendimento da física do efeito Hall. Estas noções serão importantes para posterior análise dos resultados experimentais obtidos numa amostra do supercondutor-magnético Ru(Gd)-1212.

2.1 - O Efeito Hall Ordinário

O efeito Hall é observado quando um campo magnético é aplicado perpendicularmente ao plano de condução de um material que esteja transportando corrente elétrica. A corrente de portadores é defletida pela força de Lorentz associada ao campo magnético. Como consequência, ocorre um acúmulo de cargas nas extremidades laterais do material, que gera um campo elétrico transversal chamado campo de Hall (Figura 2.1).

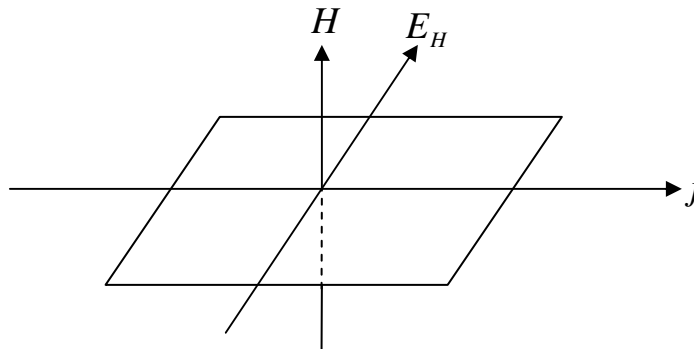


Figura 2.1 - A aplicação de um campo magnético H perpendicular à densidade de corrente j , tem como consequência o surgimento de um campo elétrico transversal (campo de Hall E_H) na amostra.

O campo de Hall é expresso por:

$$E_H = \rho_o j = R_o j B, \quad (2.1)$$

onde ρ_o é a resistividade Hall de Lorentz, j é a densidade de corrente, $B = \mu_o H$ é a indução magnética aplicada, $\mu_o = 4\pi \cdot 10^{-7} \text{TmA}^{-1}$ e R_o é chamado de coeficiente Hall de

Lorentz, ou coeficiente Hall ordinário. Num condutor não-magnético, onde o transporte é feito por uma única banda, o coeficiente Hall ordinário é dado por:

$$R_o = \frac{1}{nq} \quad , \quad (2.2)$$

onde n é a densidade de portadores e q o valor das suas cargas. A determinação experimental do coeficiente R_o é importante, pois com ela obtemos diretamente a densidade de cargas do material. Seu sinal indica se a condução é feita por elétrons ($q = -e = -1,16 \cdot 10^{-19} \text{ C} \Rightarrow R_o < 0$) ou por lacunas ($q = e = 1,16 \cdot 10^{-19} \text{ C} \Rightarrow R_o > 0$). O coeficiente Hall de Lorentz R_o é praticamente independente da temperatura.

2.2 - O Efeito Hall Extraordinário

Em materiais magnéticos ocorre uma contribuição adicional ao efeito Hall que é proporcional à magnetização do material. Essa contribuição, primeiramente observada em 1910 por Alpheus W. Smith^[109], é denominada de efeito Hall extraordinário, ou efeito Hall anômalo. R. Karplus e J. M. Luttinger estudaram o efeito Hall em materiais ferromagnéticos e atribuíram a origem da contribuição anômala ao efeito Hall à polarização de *spin* e ao acoplamento *spin*-órbita que ocorre durante o espalhamento dos elétrons^[58].

Para o entendimento do efeito Hall extraordinário, consideremos a diluição de impurezas magnéticas (átomos com momentos magnéticos não nulos) num metal não-magnético. Supomos que a magnetização produzida por essas impurezas é perpendicular à superfície da amostra na forma de placa utilizada numa experiência Hall. Passamos uma corrente elétrica paralela à superfície da placa. Devido ao momento magnético das impurezas, os elétrons são espalhados de forma assimétrica (Figura 2.2 – (b)).

A assimetria no espalhamento gera um campo elétrico perpendicular à corrente e à magnetização, chamado de campo Hall anômalo^[59], aditivo ao campo Hall de Lorentz. O campo Hall anômalo, proporcional à magnetização M e à densidade de corrente j , é expresso por^[60]:

$$E_s = \rho_s j = R_s \mu_0 M j \quad , \quad (2.3)$$

onde ρ_s é a resistividade Hall anômala e R_s é o coeficiente Hall anômalo, ou coeficiente Hall extraordinário.

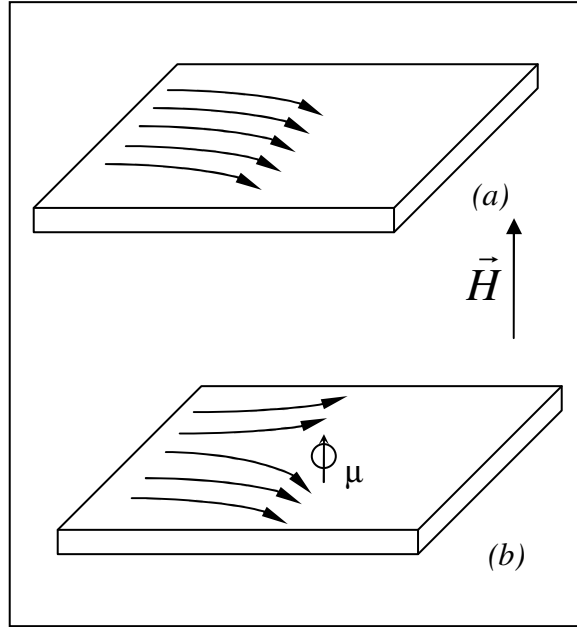


Figura 2.2 - Origens do Efeito Hall: (a) Deflexão da corrente dos portadores causada pelo campo magnético. Como resultado, ocorre o acúmulo de cargas de mesmo sinal num lado e o acúmulo de cargas de sinal contrário do outro. (b) A presença de um átomo magnético causa um espalhamento assimétrico dos portadores de carga.

A resistividade Hall total tem, portanto, um termo ordinário, $\rho_o = R_o B$, devido à indução magnética aplicada, e um termo extraordinário (anômalo), $\rho_s = R_s \mu_0 M$, devido à magnetização. Assim, a resistividade Hall total de uma amostra de magnetização M submetida a um campo magnético externo H é dada por:

$$\rho_H = R_o B + R_s \mu_0 M . \quad (2.5)$$

A contribuição anômala ao efeito Hall pode ser originada a partir de duas componentes. Uma delas é extrínseca e deve-se ao espalhamento dos elétrons de condução pelas impurezas magnéticas. Dois mecanismos extrínsecos são identificados. A interação direta entre os *spins* dos elétrons de condução com os momentos orbitais das impurezas magnéticas resulta numa componente denominada de “*skew scattering*”^[58]. Essa contribuição é diretamente proporcional à concentração de íons magnéticos. A outra componente extrínseca deve-se a um deslocamento lateral do centro de massa do pacote de onda do elétron devido à interação com a impureza magnética. Esta contribuição, denominada de “*side jump*”^[61], é um termo não clássico proporcional ao quadrado da resistividade longitudinal (ρ). A outra contribuição ao efeito Hall é intrínseca e é dominante

num cristal em que os íons magnéticos estão distribuídos num arranjo periódico. Essa contribuição, denominada de termo de Karpus-Luttinger, deve-se à velocidade de grupo anômala, transversal à magnetização, adquirida pelo pacote de onda eletrônico ao se propagar num meio polarizado magneticamente e na presença da interação *spin*-órbita.

A resistividade elétrica ρ de uma liga diluída com átomos magnéticos pode ser considerada como sendo proporcional à concentração das impurezas. Dessa forma, a contribuição à resistividade Hall anômala, ρ_s^{ext} , devida às componentes relacionadas aos mecanismos de “*side-jump*” e “*skew scattering*”, pode ser calculada como^[77]:

$$\rho_s^{ext} \cong -\lambda M (A\rho + B\rho^2) \quad (2.6)$$

onde λ é a constante de acoplamento *spin*-órbita, M é a magnetização e A e B são constantes positivas e dependentes do material.

A contribuição à resistividade de Hall anômala devida ao processo intrínseco de Karpus-Luttinger também é proporcional à ρ^2 , ou seja,

$$\rho_s^{K-L} \cong C\rho^2 \quad (2.7)$$

2.3 - Quiralidade

Nos sistemas tipo *vidros-de-spin* originados pela diluição de um metal de transição magnético *3d* em uma matriz de metal nobre, a interação entre os momentos localizados é do tipo *Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida* (*RKKY*)^{[62],[63]}. Essa interação é mediada pelos elétrons de condução através do acoplamento de troca *s-d*. Devido à natureza oscilatória dessa interação, e à distribuição espacial aleatória dos momentos localizados, ocorre desordem e frustração nesses sistemas.

No espaço dos *spins* a interação *RKKY* é isotrópica, conferindo aos *vidros-de-spin* essa propriedade. Dessa forma, esses sistemas podem ser descritos pelo modelo de Heisenberg tridimensional. Entretanto, o efeito combinado entre o acoplamento *s-d* e a interação *spin*-órbita produz uma fraca anisotropia magnética local e aleatória. Isso se deve à existência de uma interação do tipo *Dzyaloshinski-Moriya* (*DM*)^{[64],[65]} nesse sistema. A anisotropia *DM* é descrita pela soma de termos *spin-spin* na forma $\vec{D}_{ij} \cdot (\vec{S}_i \times \vec{S}_j)$, onde \vec{D}_{ij} é um vetor ligado à rede cristalina que representa a interação *spin*-órbita e \vec{S}_i é o vetor unitário de *spin* no sítio de rede i .

Quando um elétron se propaga num sólido na presença de um campo magnético \vec{B} , a fase quantum-mecânica de sua função de onda é acrescida de um fator de fase complexo determinado pelo potencial vetor \vec{A} , tal que $\vec{B} = \nabla \times \vec{A}$. Em magnetos metálicos desordenados, o fator complexo surge quando um elétron se propaga ao longo de uma rede de *spins* não-coplanares. Nesse caso, ocorre uma contribuição adicional ao campo magnético efetivo que é representada pela quiralidade de *spin*. Espera-se^[66] que o espalhamento causado por esse campo magnético efetivo contribua ao efeito Hall, manifestando-se em sua componente anômala.

A quiralidade é um conceito muito utilizado na química molecular. A proposta de sua aplicação no estudo de materiais magnéticos foi feita por Villain^[67] em 1977 através do modelo XY. Este modelo não leva em consideração o campo externo e efeitos de blindagem, e é definido pelo Hamiltoniano:

$$H = -\sum_{i,j} J_{i,j} \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j = -\sum_{i,j} J_{i,j} \cos(\varphi_i - \varphi_j), \quad (2.7)$$

onde $\vec{S}_i = (\cos \varphi_i, \sin \varphi_i)$ é o vetor unitário de *spin*.

A frustração em um sistema de *spins* vetoriais conduz ao ordenamento não-colinear. O arranjo resultante pode ser caracterizado pelos chamados graus de liberdade quirais. A Figura 2.3 exemplifica este conceito. Nela está representada uma cela de uma rede de *spins* triangular.

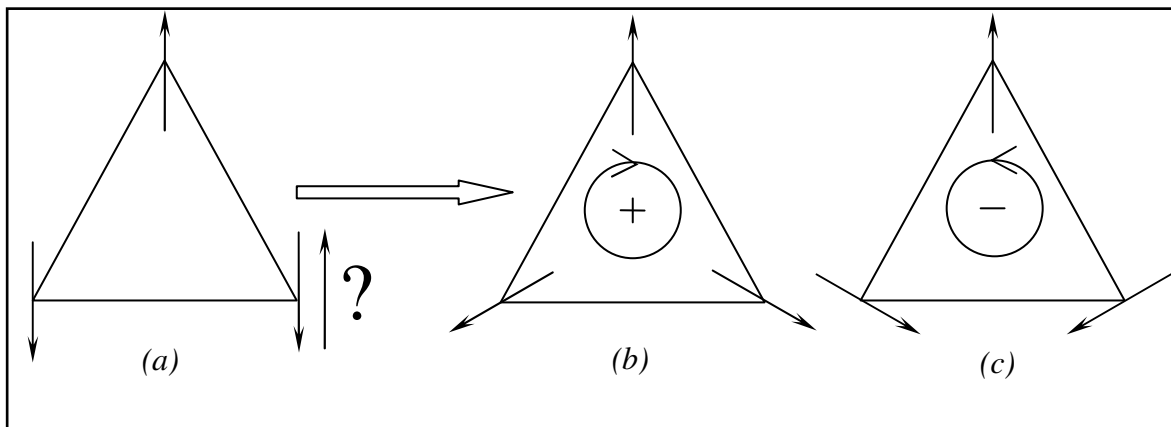


Figura 2.3 – Configuração do estado fundamental de um sistema 2D de três spins, numa rede triangular, acoplados antiferromagneticamente. (a) A minimização da energia, satisfazendo todas as ligações, é impossível. O estado fundamental é duplamente degenerado. Os spins giram no sentido horário (b) ou anti-horário (c). Os ângulos entre os spins vizinhos são 120° para (b) e -120° para (c).

A interação entre *spins* localizados nos vértices do arranjo triangular é antiferromagnética ($J_{i,j} = J < 0$). O estado fundamental dos *spins* é dito “*canted*” e frustrado, visto que não é possível minimizar simultaneamente a energia de todos os pares de *spins* (Figura 2.3(a)). Como mostram as figuras 2.3 (b) e (c), o estado fundamental resultante mostra um arranjo não colinear dos *spins* (*canting*) e é duplamente degenerado. A energia desse sistema é superior à energia de um sistema equivalente não frustrado, como por exemplo, no caso de alinhamento ferromagnético.

O parâmetro χ , denominado de quiralidade, indica se a helicidade dos *spins* é no sentido horário ou anti-horário, caracterizando a degenerescência discreta do estado fundamental. Para o exemplo mostrado na Figura 2.3, a quiralidade é definida a partir da soma sobre os três pares de *spins* do produto vetorial entre dois *spins* vizinhos:

$$\chi = \frac{2}{3\sqrt{3}} \sum_{i,j} |\vec{S}_i \times \vec{S}_j| = \frac{2}{3\sqrt{3}} \sum_{i,j} \text{sen}(\varphi_i - \varphi_j). \quad (2.8)$$

Em uma configuração como a da Figura 2.3 (b), onde a rotação dos *spins* é no sentido horário, temos $\chi = 1$; no caso de ser anti-horário, como na Figura 2.3 (c), encontramos $\chi = -1$. A quiralidade quebra a simetria por reflexão do sistema, pois para que um estado com $\chi = 1$ evolua para um estado com $\chi = -1$, não basta que se realize apenas uma reflexão global dos *spins*.

No caso em que a interação entre os *spins* é do tipo ferromagnética, todos os *spins* vizinhos no estado fundamental são paralelos, teremos $\chi = 0$ e o sistema será geometricamente não-frustrado. Isso indica que o conceito de quiralidade, aplicado em sistemas magnéticos, só faz sentido se houver “*canting*” no sistema, ou seja, não colinearidade entre os *spins* interagentes.

Numa distribuição tridimensional (Figura 2.4), a configuração que os *spins* adquirem não é mais definida pelo sentido da helicidade dos *spins* em um plano, mas em torno de cada um dos três eixos espaciais. Supondo *spins* unitários em um sistema 3D, a quiralidade $\chi_{i,j,k}$ pode ser expressa pelo ângulo sólido subtendido entre três *spins* vizinhos:

$$\chi_{i,j,k} = \vec{S}_i \cdot \vec{S}_j \times \vec{S}_k \quad (2.9)$$

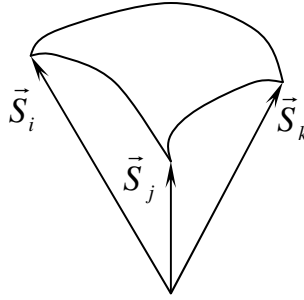


Figura 2.4 - Um sistema 3-D de spins.

Assim definida, o sinal da quiralidade indica a orientação da helicidade do arranjo dos três *spins*. A quantidade $\chi_{i,j,k}$ possui valor não nulo quando os três *spins* estão numa configuração não-coplanar. A quiralidade escalar, definida pela equação 2.9, é invariante perante rotações do *spin*, mas muda seu sinal frente à uma reflexão global dos spins ou uma inversão, que pode ser vista como uma combinação de reflexão e rotação. A ordem *quiral* pode ser entendida como uma manifestação da quebra da simetria de reflexão.

2.4 - Vidro-Quiral

Os vidros-de-*spin* evoluem para uma fase termodinâmica de baixas temperaturas em que os *spins* congelam num arranjo desordenado, tal que a magnetização macroscópica é nula. A transição de fase vidro-de-*spin* mostra efeitos metaestáveis devidos à desordem e frustração. A natureza da transição ainda não é entendida completamente. Na busca da sua compreensão, J. Villain^[67] propôs a existência de um parâmetro de ordem quiral aditivo ao ordenamento de *spins*. Assim como o ordenamento de *spins*, a quiralidade tem um ordenamento aleatório na fase vidro-de-*spin*. Inúmeras investigações numéricas sobre o mecanismo de ordenamento quiral foram feitas^{[68],[69],[70],[71]}, onde algumas evidenciam que ambas as contribuições de ordenamento de vidro quiral e de *spin* ocorrem na mesma temperatura^{[72],[73]}.

A frustração em um sistema de *spins* vetores conduz a um ordenamento não-colinear dos *spins*. O “*canting*” (alinhamento não-colinear dos spins) induzido pela frustração produz uma degenerescência discreta, ou quiralidade, conforme foi descrito na seção 2.3. Kawamura^[68] associou a estabilização de um genuíno estado de ordenamento *quiral* a uma transição de fase termodinâmica. O modelo proposto é o de um vidro-quiral,

onde a quiralidade local $\chi = \pm 1$ varia aleatoriamente de acordo com a posição. Foi sugerido que as contribuições quiral e de *spin* estão conectadas por termos anisotrópicos do tipo Dyzalooshinski-Moriya. Nesse contexto, num sistema isotrópico, cujas propriedades são determinadas pela transição quiral e pelo estado ordenado de vidro-quiral, a quiralidade exibe um ordenamento de longo alcance, preservando a resposta paramagnética do sistema de *spins*. Porém, num sistema real, a quiralidade e a ordem de *spins* nunca estão totalmente desacopladas devido à fraca anisotropia local, característica dos vidros-de-*spin*. Isso dificulta que um teste experimental seja feito para comprovar a existência de um ordenamento quiral nas proximidades da transição magnética.

Tatara e Kawamura^[74] propuseram que o efeito Hall anômalo poderia comprovar a existência do ordenamento quiral nos vidros-de-*spin* metálicos. Recentemente^{[75],[76]} mostrou-se que o coeficiente Hall anômalo dos vidros-de-*spin* e de sistemas reentrantes apresenta uma contribuição devida à quiralidade associada ao “*canting*” dos *spins* nesses sistemas.

2.5 - Contribuição Quiral ao Efeito Hall

Tatara e Kawamura^[74] propuseram que, além das contribuições devidas à interação spin-órbita, o mecanismo quiral deve ser incorporado na descrição do efeito Hall em vidros de *spin*. Essa teoria se aplica em sistemas onde os elétrons de condução são fracamente acoplados aos *spins* locais. Além disso, esses autores reportaram que a contribuição quiral é independente das contribuições convencionais ao efeito Hall anômalo. A contribuição quiral ao efeito Hall anômalo é, portanto, devida aos efeitos magnéticos locais produzidos pelas quiralidades.

Na presença de campos magnéticos, os campos produzidos pelas quiralidades locais não se anulam, pois a susceptibilidade quiral acopla-se ao campo aplicado. Dessa forma, a resistividade Hall anômala em sistema do tipo vidro-de-*spin* é dada pela expressão^[77]:

$$\rho_s \cong -\lambda M(A\rho + B\rho^2) + CJ^3\chi \quad (2.10)$$

onde ρ é a resistividade longitudinal, J é a interação de troca *s-d*, χ é a quiralidade total do sistema e A , B e C são constantes. O termo proporcional a ρ na equação (2.10) refere-se ao termo de “*skew-scattering*”, ao passo que o termo proporcional a ρ^2 engloba as

contribuições de “*side-jump*” e Karpus-Luttinger. O termo devido à quiralidade é calculado com teoria de perturbação em 3ª ordem.

O sinal da quiralidade local é aleatório, pois os spins de Heisenberg estão congelados de uma maneira espacialmente aleatória no estado de vidro-de-spin. Portanto, em uma amostra *bulk*, a quiralidade total é nula. Entretanto, a simples presença de campo magnético, faz com que a quiralidade total se acople com a magnetização resultante. Assim, a quiralidade total é dada por^[77]:

$$\chi = -X_{\chi}(DM) - X_{\chi}^{nl}(DM)^3, \quad (2.11)$$

onde D é uma constante e X_{χ} e X_{χ}^{nl} são, respectivamente, as susceptibilidades linear e não-linear de origem *quiral*.

A substituição da expressão (2.11) no termo devido à quiralidade na equação (2.10) fornece a resistividade Hall dependente da quiralidade, que pode ser escrita como:

$$\rho_H^{quiral} = -CJ^3 DM[X_{\chi} + X_{\chi}^{nl}(DM)^2 + \dots]. \quad (2.12)$$

O coeficiente Hall anômalo R_s , definido por $R_s = \frac{\rho_s}{\mu_o M}$, assume a forma^[77]:

$$R_s = -\tilde{A}\rho - \tilde{B}\rho^2 - \tilde{C}D[X_{\chi} + X_{\chi}^{nl}(DM)^2 + \dots], \quad (2.13)$$

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

Assim expresso, R_s depende das componentes linear e não linear da susceptibilidade quiral. No regime linear onde a resistividade Hall anômala é proporcional a magnetização M (suficientemente pequena), a contribuição quiral para R_s é proporcional apenas à susceptibilidade quiral linear X_{χ} .

2.6 - A Fase de Berry e o Efeito Hall Anômalo

A descoberta da fase de *Berry*^[78] em 1983 incentivou intensos trabalhos teóricos buscando sua aplicação em inúmeras áreas da física. A contribuição anômala ao coeficiente Hall em condutores magnéticos foi por muito tempo parametrizada em termos da expressão $\rho_H = R_H B = R_o B + R_s \mu_o M$. Nesse cenário, o efeito Hall, com sua peculiar sensibilidade a efeitos de simetria, tem sido reinterpretado, em termos da fase de *Berry* no

espaço- k ^{[111],[112],[113],[114],[115]}. Isso reabriu a investigação teórica da teoria de Karplus e Luttinger^[58] para o efeito Hall anômalo.

A velocidade de grupo dos elétrons da banda no limite semi-clássico, é dada por:

$$\vec{v}_{\vec{k}} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon(\vec{k})}{\partial \vec{k}} \quad (2.14)$$

onde ε é a energia do elétron. Segundo a reinterpretação da teoria de Karplus-Luttinger, na presença de uma rede periódica de spins, e da interação spin-órbita, elétrons sob ação de um campo elétrico longitudinal adquirem uma velocidade de grupo que é uma extensão da equação (2.14), na qual é introduzida uma correção dos efeitos da fase de *Berry* quando os elétrons desenvolvem trajetórias cíclicas^{[79], [80]}. A velocidade de grupo corrigida é dada por:

$$\vec{v}_{\vec{k}} = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon(\vec{k})}{\partial \vec{k}} - \frac{1}{\hbar} e \vec{E} \times \vec{\Omega}(\vec{k}) \quad (2.15)$$

onde $\vec{\Omega}(\vec{k})$ é a curvatura de *Berry*[†] dos estados de Bloch ocupados.

Entretanto, a contribuição da fase de *Berry* para o efeito Hall anômalo não ocorre apenas no espaço recíproco. No caso de condutores metálicos cuja configuração de *spins* é não-coplanar existe uma outra componente anômala, devido à fase de *Berry*, que contribui ao efeito Hall anômalo no espaço real. Os princípios teóricos da contribuição da fase de *Berry* para o efeito Hall anômalo conectam-se intrinsecamente com a quiralidade, e têm sido utilizados na descrição de sistemas magnéticos desordenados, como vidros-de-*spin* e ferromagnetos reentrantes^{[74],[77]}. Verificou-se que o efeito Hall anômalo em ligas reentrantes de *AuFe* apresenta uma forte contribuição para o efeito Hall anômalo devida ao *canting* dos *spins*^[110]. Nesse trabalho os dados experimentais são qualitativamente descritos pelas previsões teóricas baseadas no conceito da quiralidade (ou, equivalentemente, da fase de *Berry* no espaço real).

[†]A curvatura de *Berry* dos estados eletrônicos de Bloch é definida por $\Omega_n(k) = i \langle \nabla_k u_n(k) | \times | \nabla_k u_n(k) \rangle$ onde $| \nabla_k u_n(k) \rangle$ é a parte periódica das ondas de Bloch da n -ésima banda. Em cristais em que ocorre quebra de simetria por reverção temporal, ou por inversão espacial, a curvatura de *Berry* é não nula.^[109]

2.7 - Efeito Hall em Supercondutores

Uma das particularidades do efeito Hall nos cupratos supercondutores é a sua forte dependência com a temperatura, contrastando com os materiais essencialmente metálicos, onde o coeficiente Hall independe da temperatura. Dentre os diversos mecanismos que têm sido propostos para descrever o efeito Hall nos cupratos de alta temperatura crítica temos:

i) Contribuição devido ao espalhamento assimétrico (*skew scattering*) de elétrons devido a momentos magnéticos localizados^[86];

ii) No caso em que banda eletrônica é muito estreita, de largura comparável à $k_B T$, efeitos térmicos causam variações significativas na densidade de portadores, provocando uma forte dependência do coeficiente Hall com a temperatura. Modelos fenomenológicos de banda estreita parcialmente preenchida^[87] sustentam que a dependência de R_H com a temperatura nos cupratos supercondutores pode ser explicada de maneira consistente.

ii) Quando mais de uma banda contribui à condução, utiliza-se o modelo de duas correntes, onde a dependência de R_H com a temperatura está implícita na densidade de portadores e na sua mobilidade dentro do material. Assumindo dois tipos de portadores, elétrons (e) e buracos (h), por exemplo, o coeficiente Hall é dado por[†]:

$$R_H = \frac{(\eta_h \mu_h^2 - \eta_e \mu_e^2)}{q(\eta_h \mu_h + \eta_e \mu_e)^2} \quad (2.16)$$

onde η é o número de portadores por unidade de volume, μ é a mobilidade dos portadores e q a sua carga.

2.8 - O Ângulo de Hall

A dependência de R_H com a temperatura pode ser expressa através do ângulo de Hall, θ_H , cuja cotangente é definida como $\cot \theta_H = \frac{\rho_{xx}}{BR_H}$, onde ρ_{xx} é a resistividade longitudinal. A Figura 2.6 ilustra a dependência quadrática da $\cot \theta_H$ com a temperatura

[†] Colin M. Hurd, *The Hall effect in metals and alloys* (1972), p. 90.

para duas amostras de $\text{HgBa}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{6+\gamma}$ (Hg-1212)^[88]. Este comportamento é característico dos cupratos supercondutores.

A cotangente de Hall tem uma dependência quadrática com a temperatura e, geralmente, é expressa em termos da fórmula empírica de Anderson^[89], onde possíveis efeitos devido a impurezas magnéticas são adicionados através de uma constante:

$$\cot \theta_H = \alpha T^2 + \beta. \quad (2.17)$$

Na equação 2.17 o coeficiente α está relacionado com a concentração de portadores de carga e β representa o efeito de impurezas magnéticas.

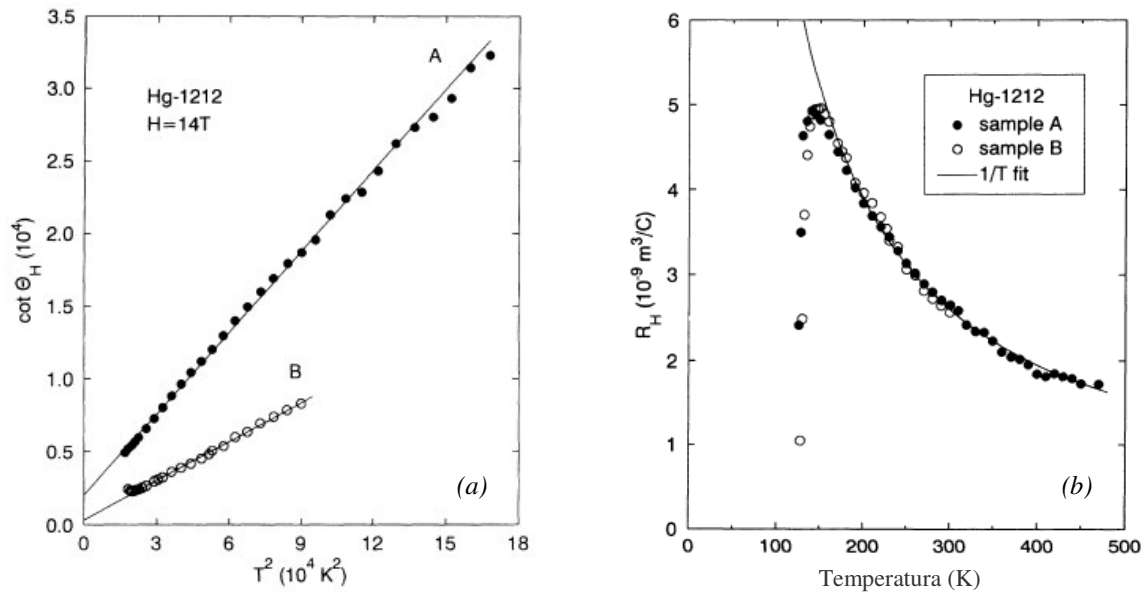


Figura 2.6 – (a) Cotangente do ângulo de Hall para duas amostras (A e B) de Hg-1212 versus T^2 . A reta corresponde à uma aproximação do tipo $\cot \theta_H = \alpha T^2 + \beta$. (b) R_H versus temperatura na fase normal das duas amostras de Hg-1212.^[88]

2.9 - Inversão do Sinal Hall em Supercondutores

Um fenômeno muito interessante, cuja origem não é compreendida inteiramente, é a inversão do sinal Hall na transição normal-supercondutor observada em inúmeros sistemas^{[90],[91],[92]}. Essa anomalia na resistividade Hall foi observada na maioria dos cupratos supercondutores de alta temperatura crítica e em alguns supercondutores convencionais de tipo II (Nb, Pb-In, e V) e tem sido atribuída a efeitos térmicos e de aprisionamento de vórtices de Abrikosov^[90]. Na Figura 2.7 está ilustrado o comportamento

peculiar do coeficiente Hall durante a transição para o estado supercondutor em dois cupratos de alta temperatura crítica.

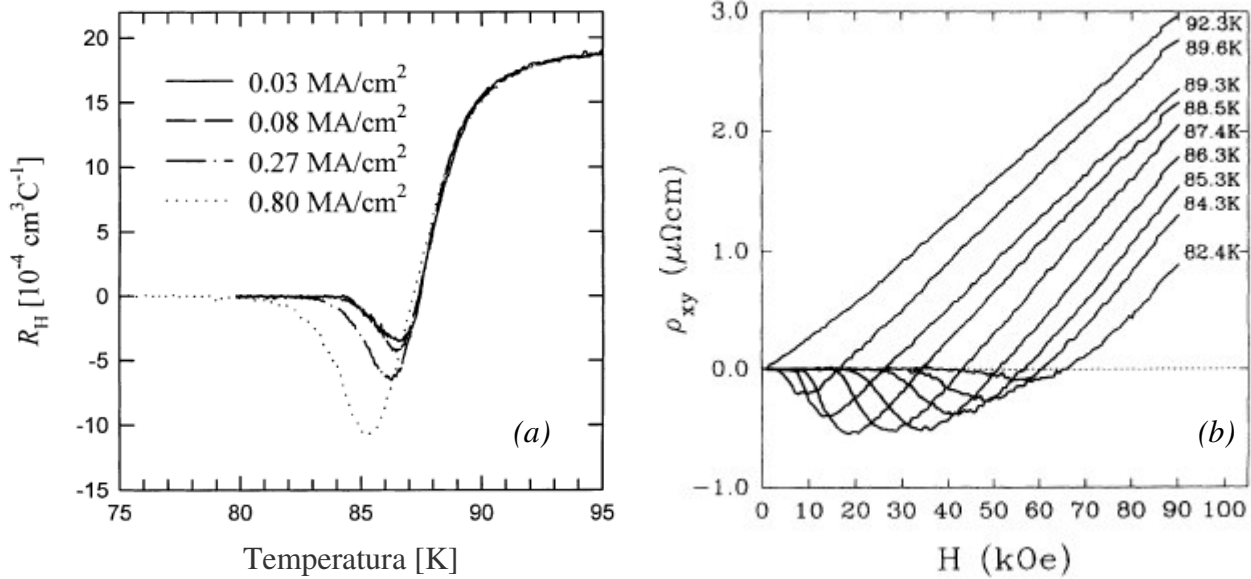


Figura 2.7-(a) Inversão do sinal Hall de um filme fino de $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{7-x}$ ^[92] para várias densidades de corrente. (b) Resistividade Hall versus campo aplicado para um filme de $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7/\text{SrTiO}_3$ em temperaturas constantes^[88].

O modelo que considera efeitos termoelétricos para explicar a inversão do sinal do coeficiente Hall em supercondutores, assume que o sistema de vórtices transporta uma entropia devida às excitações normais dos caroços dos vórtices. Assim, devido ao gradiente térmico estabelecido, é gerada uma tensão, via efeito Seebeck, da ordem de grandeza da tensão Hall^[120]. Desse modo, a resistividade Hall (ρ_{xy}) pode ser expressa em termos da resistividade (ρ_{xx}) longitudinal e do ângulo de Hall (θ_H) da seguinte forma:

$$\rho_{xy} = \rho_{xx} \tan \theta_H^N - QBT \frac{S_s}{\kappa_s} \quad (2.18)$$

onde Q representa o coeficiente de Nerst, S_s é o coeficiente de Seebeck e κ_s é a condutividade térmica. Assim, a inversão do sinal de ρ_{xy} é devido ao segundo termo da expressão (2.18).

Entretanto, a observação da inversão do sinal Hall em supercondutores de baixa temperatura crítica, cujas propriedades eletrônicas são bem distintas das propriedades dos

cupratos supercondutores, sugere que o fenômeno da inversão possa ser atribuído à dinâmica de vórtices^{[121],[122]}.

Supondo que uma densidade de corrente $\vec{j} = n_s e \vec{v}$ seja aplicada ao sistema de vórtices conforme ilustrado na Figura 2.8, e que o campo magnético \vec{H} seja perpendicular ao plano da página (saindo desta), é gerada uma força $\frac{1}{c} \vec{v}_s \times \vec{H}$ na direção perpendicular à corrente e ao campo.

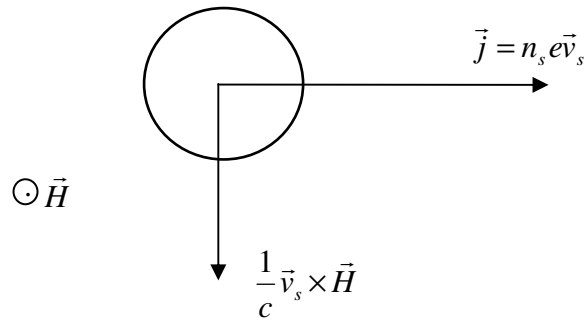


Figura 2.8 - Força que promove o movimento dos vórtices pela aplicação da densidade de corrente \vec{j} .

Capítulo 3 - Procedimentos Experimentais

Neste trabalho foram realizadas medidas de resistividade elétrica, magneto-resistência, magnetização e efeito Hall numa amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (Ru(Gd)-1212). Este capítulo descreve os procedimentos experimentais utilizados na preparação da amostra e as técnicas envolvidas na obtenção dos resultados, incluindo o equipamento experimental utilizado.

3.1 - Preparação da Amostra Policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

Amostras de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (Ru(Gd)-1212) foram preparadas através do processo de reação em estado sólido. Primeiramente, reuniram-se os óxidos precursores nas quantidades necessárias para a obtenção da estequiometria Ru(Gd)-1212. Os óxidos utilizados foram RuO_2 , CuO , Gd_2O_3 e SrCO_3 , cujas purezas estão relacionadas na Tabela 3.1. A massa inicial de cada um dos componentes para a confecção das amostras é determinada através de um cálculo estequiométrico. Para processar uma amostra com massa nominal de 1,0 g, por exemplo, a quantidade necessária de cada um dos óxidos está calculada na Tabela 3.1.

	RuO_2	CuO	Gd_2O_3	SrCO_3
Massa (mg)	173,2	206,9	235,8	384,1
Pureza (%)	99,9	99,99+	99,9	99,995

Tabela 3.1 – Massa estequiométrica e pureza dos óxidos precursores para obtenção das amostras de Ru(Gd)-1212.

Objetivando a confecção de uma amostra de 5g, mediu-se a massa dos óxidos precursores em uma balança com precisão de 0,1 mg. Após a pesagem, os pós foram colocados em um almofariz e macerados manualmente por 1 hora, homogeneizando a mistura para a otimização do processo de reação. Com a mistura já macerada, o pó foi acomodado em um cadinho de zircônia e calcinado a $960\text{ }^\circ\text{C}$ por 12 horas. Essa primeira queima foi feita ao ar. Após esta etapa, a mistura foi novamente macerada por 1 hora, e, em seguida, prensada para formar uma pastilha

cilíndrica. Esta pastilha foi sinterizada na temperatura de 1010 °C, por 24 horas, em fluxo contínuo de nitrogênio.

O segundo estágio da preparação da amostra também consistiu de várias etapas. Inicialmente a pastilha obtida anteriormente foi quebrada e macerada por 1 hora. O pó resultante foi prensado e a nova pastilha foi levada ao forno a 1050 °C por 12 horas em fluxo contínuo de oxigênio. A terceira etapa transcorreu de forma semelhante ao processo anterior, ocorrendo a quebra da pastilha resultante do segundo estágio, a maceração do pó por 1 hora, a prensagem e a colocação da amostra no forno para sinterizar a 1055 °C por 12 horas em fluxo de oxigênio.

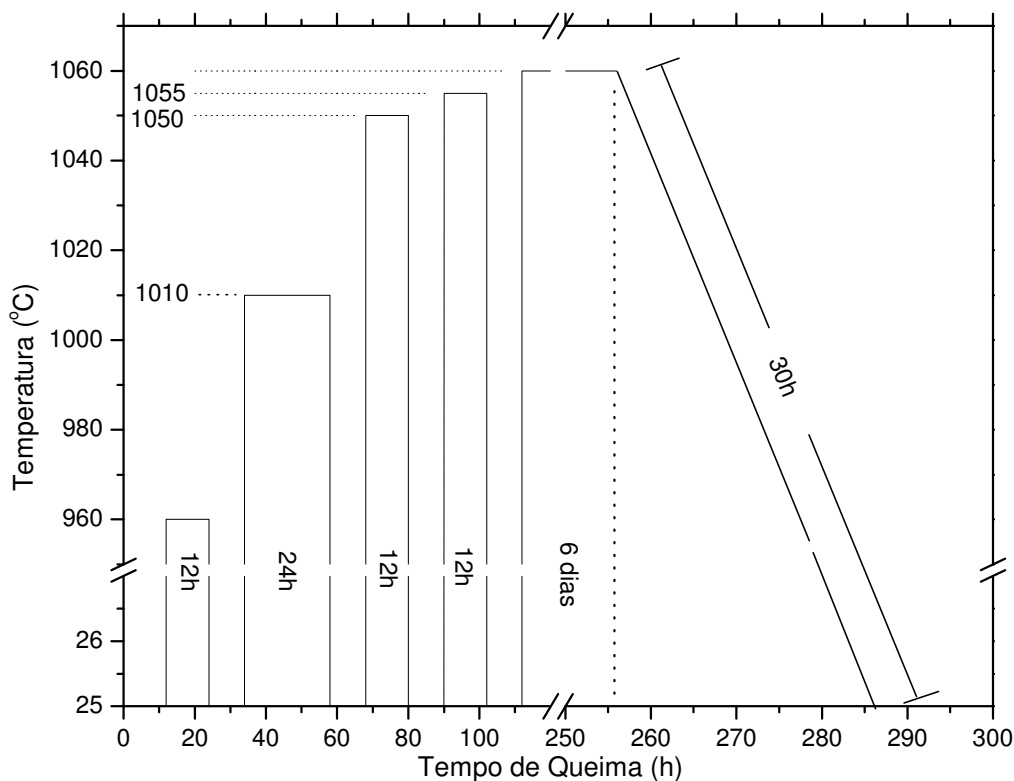


Figura 3.1 - Tratamento térmico utilizado na preparação da amostra RuGd-1212.

A última etapa consistiu, mais uma vez, em quebrar a pastilha, macerar o pó por 1 hora e prensá-lo. Além disso, a pastilha foi oxigenada em 1060 °C durante seis dias. Por fim, o forno foi programado para que sua temperatura fosse reduzida de 1060 °C até a temperatura ambiente em 30 horas, ou seja, a diminuição da temperatura foi feita bem lentamente nessa etapa. Durante o

preparo, entre as queimas, a amostra foi prensada quatro vezes. A pressão utilizada foi sempre de 300 kgf/cm^2 , e o tempo de prensagem foi de aproximadamente 1 minuto. A preparação das amostras, realizada na Universidade Estadual de Ponta Grossa (UEPG) no Paraná, foi feita por Rogério Dobrzanski sob orientação do Dr. Alcione R. Jurelo.

3.2 - Técnicas de Medidas Utilizadas

Esta seção é dedicada à descrição das técnicas experimentais utilizadas nos experimentos de Efeito Hall e nas medidas de resistividade elétrica, magneto-resistência e magnetização.

3.2.1 - Resistividade Elétrica, Magneto-resistência e Efeito Hall

Os experimentos de efeito Hall, resistividade elétrica e magneto-resistência compartilham, basicamente, dos mesmos equipamentos e procedimentos. Dentre estes estão a confecção de contatos elétricos na amostra, o sistema criogênico para operação em baixas temperaturas e o sistema eletrônico para obtenção dos resultados.

3.2.1.1 - Contatos Elétricos

Para simplificar a configuração geométrica do sistema, a amostra estudada, inicialmente cilíndrica, foi cortada em forma de paralelepípedo. As dimensões estão especificadas na Tabela 3.2 abaixo.

	Comprimento(mm)	Largura(mm)	Espessura(mm)
$\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$	8,1	4,1	0,73

Tabela 3.2 - Dimensões da amostra estudada de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

Para o estabelecimento dos contatos elétricos, duas tiras paralelas de cola prata foram pintadas nas extremidades da superfície da amostra e três pontos nas laterais. As tiras são para

entrada e saída da corrente elétrica, enquanto que nos pontos laterais mede-se diferenças de potencial. Esta configuração está representada na Figura 3.2.

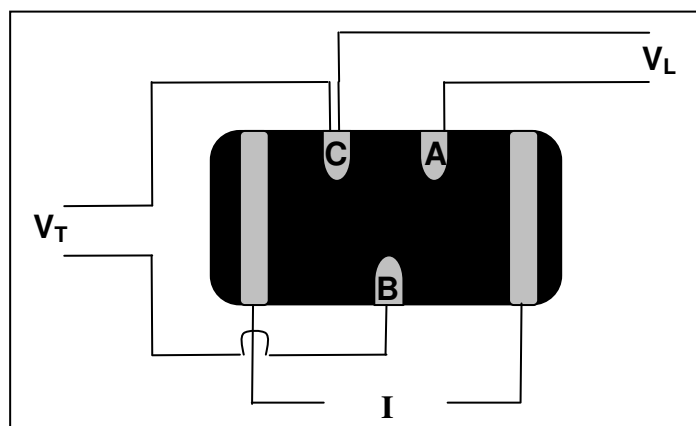


Figura 3.2 - Disposição dos contatos elétricos na amostra policristalina Ru(Gd)-1212. I : corrente elétrica, V_L : diferença de potencial entre os pontos A e C, V_T : diferença de potencial entre os pontos B e C.

3.2.1.2 - Equipamento Eletrônico

As medidas de magneto-transporte são realizadas de duas formas distintas, dependendo do tipo de corrente elétrica utilizada. Se a corrente for alternada os procedimentos adotados ao longo das medidas são descritos pelo Método AC. O emprego de corrente contínua implica na utilização do Método DC. Os equipamentos principais envolvidos nas medidas de magneto-transporte são dois amplificadores *Lock-in* da *Stanford Research Systems* modelo SR830 DSP, uma Década Digital Indutiva da *Electro Scientific Industries, INC.* modelo 73 (método AC), uma Década Analógica Indutiva da *Electro Scientific Industries, INC.* modelo DT72A (método AC), uma Fonte de Corrente *American Magnetics, INC.* modelo 412 para aplicação de campos magnéticos, dois Multímetros Digitais *Keithley* modelo 2001, um nanovoltímetro *Keithley* modelo 180 (método DC), uma fonte de corrente contínua *Keithley* modelo 227 e um Criostato da *Janis Research Company, INC.* modelo 7RDINSRT. Os demais equipamentos e peças foram fabricados nas oficinas do Instituto de Física da UFRGS.

3.2.1.2.1 - Método AC

Este método permite que a leitura dos sinais de tensão sejam feitos na mesma frequência (37 Hz) e fase da corrente aplicada, melhorando a relação sinal/ruído. A montagem experimental, com base na técnica de corrente AC, está esquematicamente ilustrada nas Figuras 3.3 e 3.4. O aparato experimental utilizado neste método é semi-automatizado e opera na faixa de temperatura desde 1,5 K até 300 K.

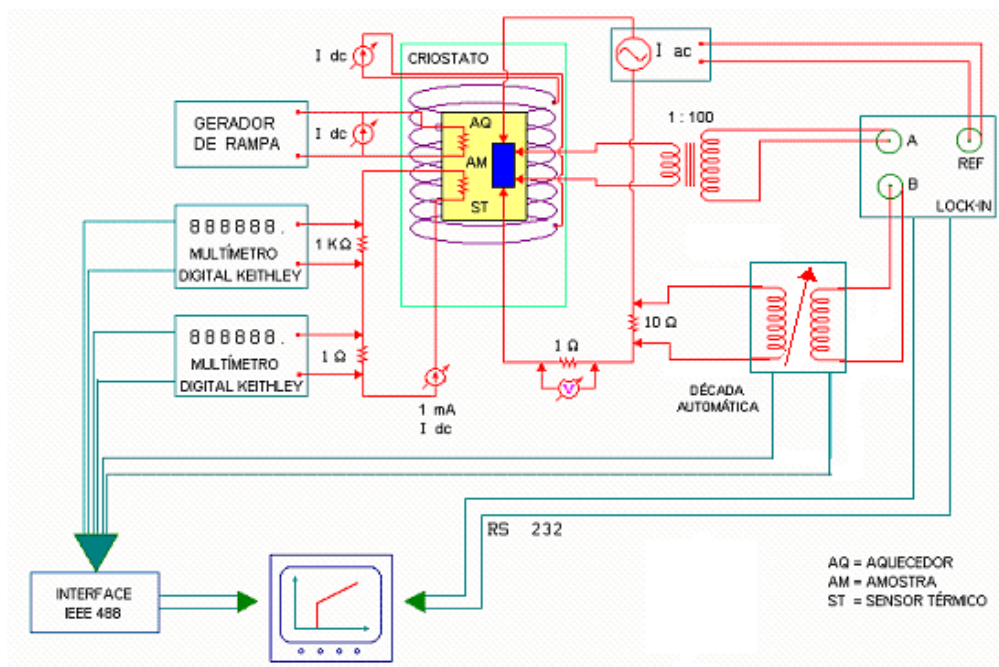


Figura 3.3 – Esquema da montagem eletrônica utilizada nas medidas de resistividade elétrica.

3.2.1.2.1.1 - Resistividade

Nas medidas de resistividade elétrica, o sinal da tensão longitudinal V_L , (diferença de potencial elétrico entre os pontos A e C na Figura 3.2), é amplificado por um transformador de baixo ruído (Princeton Applied Research, modelo 1900) e lido no canal A do *Lock-in*. No canal B, lê-se um sinal de referência gerado por uma resistência de 10 Ω em série com a amostra e um sistema de compensação baseado numa década indutiva variável.

A temperatura é medida através de sensores térmicos de platina (para a operação em temperaturas acima de 60 K) ou de *Carbon-Glass* (utilizado em temperaturas inferiores à 70 K) instalados junto ao porta-amostra. A variação da temperatura é feita lentamente através um gerador de rampa manual que permite variar a potência aplicada em um aquecedor formado por um enrolamento de *Ni-Cr* de 26 Ω instalado junto à base do porta-amostra.

A variação da temperatura da amostra também pode ser feita a partir da circulação de gás hélio através de uma válvula fria do criostato *Janis*. O gás *He* pode ser controladamente aquecido através de um vaporizador instalado na parte inferior do anticriostato. Este dispositivo, confeccionado de modo a garantir a homogeneidade térmica do gás em torno da amostra, é alimentado por uma fonte de corrente *Keithley* modelo 227.

Normalmente, utiliza-se um fluxo contínuo de gás hélio pela válvula fria, sem vaporizador no resfriamento e com vaporizador no aquecimento. O controle fino da taxa de variação da temperatura, feito pelo aquecedor de *Ni-Cr*, é sensível o suficiente para que se possa operar com taxas de variação de temperatura da ordem de 1 K/h. Com essa forma de controle de temperatura, é possível realizar medidas de temperatura com uma precisão de leitura entre 1-2 mK.

Com a variação da temperatura, a resistência elétrica da amostra varia na mesma proporção que o valor de tensão lido pelo canal *A* do *Lock-in*. Quando o valor do sinal no canal *A* é igual ao valor do sinal gerado pelo sistema de compensação (canal *B*), a resistência da amostra é proporcional ao valor ajustado na década. Neste instante, o valor do sinal *A-B* medido pelo *Lock-in* é zero e um programa computacional utilizando a linguagem *Qbasic* realiza a leitura da década e dos multímetros utilizados no cálculo da temperatura. Em seguida, ocorre um desbalanço automático do valor da década e a conseqüente espera de um novo instante de nulo no *Lock-in*. A aquisição de dados é efetuada enquanto a temperatura varia lentamente, permitindo que uma grande quantidade de pontos experimentais seja registrada.

As medidas de magneto-transporte podem ser realizadas com o campo magnético constante, variando-se a temperatura, ou estabilizando a temperatura e fazendo uma varredura em campo magnético. Nas medidas de resistividade elétrica, para se estabelecer uma relação de proporcionalidade entre as unidades de década e as unidades convencionais, compara-se o valor da resistividade elétrica medida em temperatura ambiente com o valor de compensação da década na mesma temperatura. Mede-se a resistência elétrica *R* entre os contatos de tensão da amostra através

do sinal de tensão lido no canal *A* do *Lock-in* e, conhecendo-se os fatores geométricos *S* (área da seção transversal da amostra) e *L* (caminho elétrico entre os contatos de tensão), determinamos a resistividade elétrica da amostra conforme a equação:

$$\rho = R \frac{S}{L} \frac{1}{100} \quad (3.1)$$

Devido ao ganho no sinal gerado por um transformador de baixo ruído instalado na entrada *A* do *Lock-in*, o termo $\frac{1}{100}$ se faz necessário. Um programa computacional utilizando a linguagem *Qbasic* faz a leitura dos dados dos canais do *Lock-in* e dos multímetros responsáveis pela obtenção da temperatura.

3.2.1.2.1.2 - Efeito Hall

Nos experimentos de efeito Hall o esquema de medidas deve ser modificado em relação àquele ilustrado na Figura 3.3. A montagem experimental necessária é ilustrada no esquema da Figura 3.4.

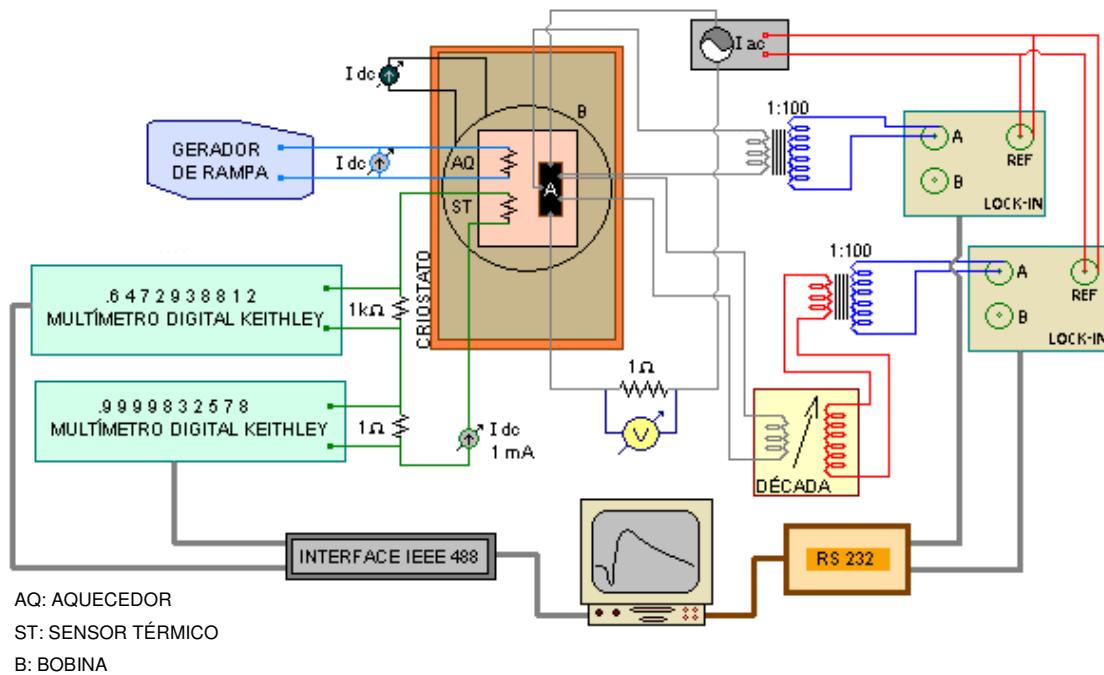


Figura 3.4 – Esquema da montagem eletrônica utilizada nos experimentos de efeito Hall.

Nessa montagem, o sinal de referência não é mais aquele gerado por uma resistência externa, mas sim o sinal de tensão longitudinal da própria amostra. O sinal de tensão transversal (diferença de potencial entre os pontos *B* e *C* – Figura 3.2), produzido na amostra pela passagem da corrente elétrica fornecida pela fonte *AC*, é amplificado em 100 vezes por um transformador de baixo ruído antes de ser lido no canal *A* do *Lock-in*. O mesmo ocorre com o sinal longitudinal (diferença de potencial entre os pontos *A* e *C* – Figura 3.2), porém seu destino é o canal *A* de outro *Lock-In*. A justificativa para a necessidade de utilização de dois *Lock-in*'s está no fato das fases dos sinais longitudinal e transversal variarem de forma distinta com a temperatura.

Com a variação da temperatura, a resistividade da amostra varia na mesma proporção tanto longitudinal como transversalmente. Logo, as tensões transversal e longitudinal, agora devidamente igualadas pela década, variam da mesma forma. Isso ocorre na ausência de campos magnéticos, pois se a amostra estiver submetida a um campo magnético que possua uma componente não nula na direção perpendicular à corrente elétrica, a tensão transversal será acrescida de uma tensão Hall. Ou seja, uma vez igualadas as tensões, a aplicação de um campo magnético perpendicular à corrente elétrica, resulta no surgimento de uma contribuição à tensão transversal fruto do Efeito Hall. Portanto, a tensão Hall é a diferença entre as tensões transversal e longitudinal quando há presença de campo magnético.

Experimentalmente, a resistividade Hall é obtida da expressão:

$$\rho_H = \frac{d}{100} \frac{V_H}{i} \quad (3.2)$$

Onde $d = 0,7$ mm é a espessura da amostra, $i = 50$ mA e V_H é a tensão Hall. Em decorrência do ganho no sinal causado pelo amplificador, o termo $\frac{1}{100}$ se faz necessário.

Medidas de efeito Hall foram efetuadas segundo as prescrições ZFC e FC. No procedimento FC, uma vez aplicado, o campo magnético é mantido constante ao longo de toda a medida. A aquisição de dados foi feita via o programa em *Qbasic* durante o resfriamento do sistema. Diversos valores de campos magnéticos, no intervalo de 0 T a 3 T, foram aplicados.

3.2.1.2.2 - Método DC

Neste método a leitura dos sinais de tensão é feita em temperatura fixa, invertendo-se tanto o sentido da corrente elétrica como o sentido do campo magnético. Utiliza-se corrente contínua nos experimentos de magneto-resistência e efeito Hall, onde o sinal de tensão transversal, produzido na amostra pela passagem da corrente elétrica fornecida por uma fonte DC, é lido por um nanovoltímetro Keithley modelo 180-Digital. O aparato experimental envolvido nessa técnica está ilustrado abaixo.

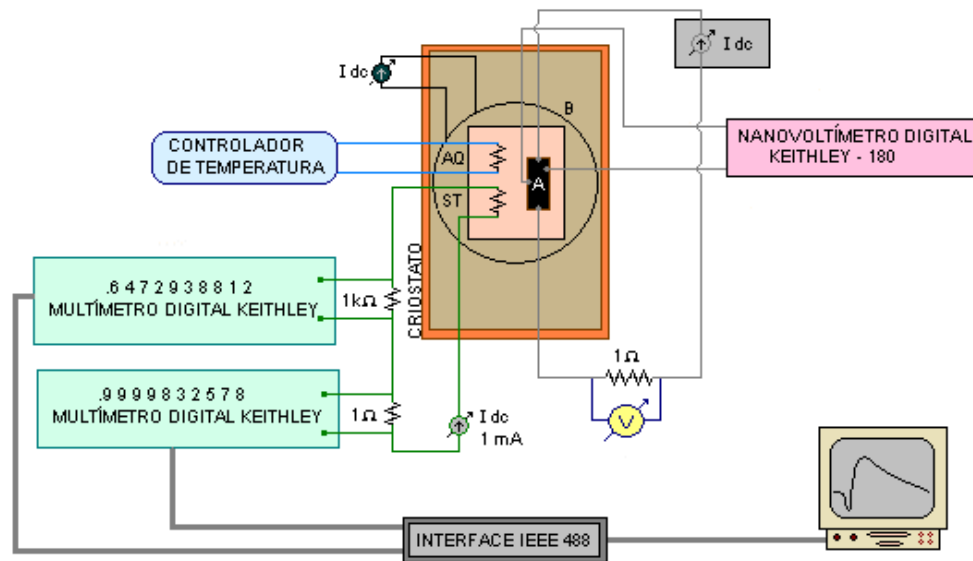


Figura 3.5 - Esquema da montagem eletrônica utilizando o método DC.

O controle da temperatura ocorre da mesma forma que no método AC. Entretanto, para estabilizar a temperatura o gerador de rampa é substituído por um controlador de temperatura. Este equipamento permite estabilizar a temperatura com uma precisão da ordem de 10^{-2} K.

Estando a temperatura estável, aplica-se a corrente contínua na amostra num determinado sentido. Em seguida aplica-se o campo magnético desejado e realiza-se a leitura da diferença de potencial com o Nanovoltímetro. Este valor pode ser convenientemente definido pelo símbolo V_+^N , onde + significa o sentido da corrente elétrica e N o sentido do campo magnético aplicado. Após o registro de V_+^N , o sentido da corrente é invertido. O novo valor de tensão produzido, também lido

pelo nanovoltímetro, é denominado de V_-^N . Dessa forma, invertendo o sentido do campo magnético, podemos realizar novas medidas e obter valores de tensão (V_+^S e V_-^S) para cada sentido da corrente elétrica. As letras N e S representam o sentido do campo aplicado e os símbolos $+$ e $-$ o sentido da corrente elétrica. A seqüência do experimento é dada pela repetição desse procedimento em outras temperaturas. Os valores de tensão utilizados na obtenção da magneto-resistência são dados por:

$$V_M = \frac{(V_+^N - V_-^N)}{2} + \frac{(V_+^S - V_-^S)}{2} \quad (3.3)$$

Enquanto que a tensão Hall é dada por:

$$V_H = \frac{(V_+^N - V_-^N)}{2} - \frac{(V_+^S - V_-^S)}{2} \quad (3.4)$$

3.2.1.3 - Sistema Criogênico

Nas medidas de magneto-transporte foi utilizado um criostato *Supervaritemp* da *Janis Research Company, Inc.*, esquematizado na figura 3.4, que pode operar numa faixa de temperatura entre 1,5 K e 300 K. O sistema criogênico, completamente desenvolvido em inox, é composto por um reservatório externo para nitrogênio líquido, um reservatório intermediário para hélio líquido e um anticriostato dentro do qual é instalada a vara de medidas. Todos estes compartimentos estão termicamente isolados mediante vácuo da ordem de 10^{-6} torr. A passagem de hélio na forma de gás ou de líquido do reservatório para o anticriostato é feita através de uma válvula fria e um tubo capilar.

Os campos magnéticos são gerados por um solenóide supercondutor de NbTi, imerso em Hélio líquido, capaz de produzir campos até 60 kOe. A corrente elétrica é fornecida à bobina através de uma fonte *AMI* modelo 412. O sistema opera no modo persistente em medidas de resistividade elétrica e efeito Hall em função da temperatura. Para os campos magnéticos da ordem de 60 kOe a corrente elétrica gerada pela fonte é de aproximadamente 80 A. Um sensor *AMI* modelo 110A monitora a quantidade de He líquido contido no reservatório.

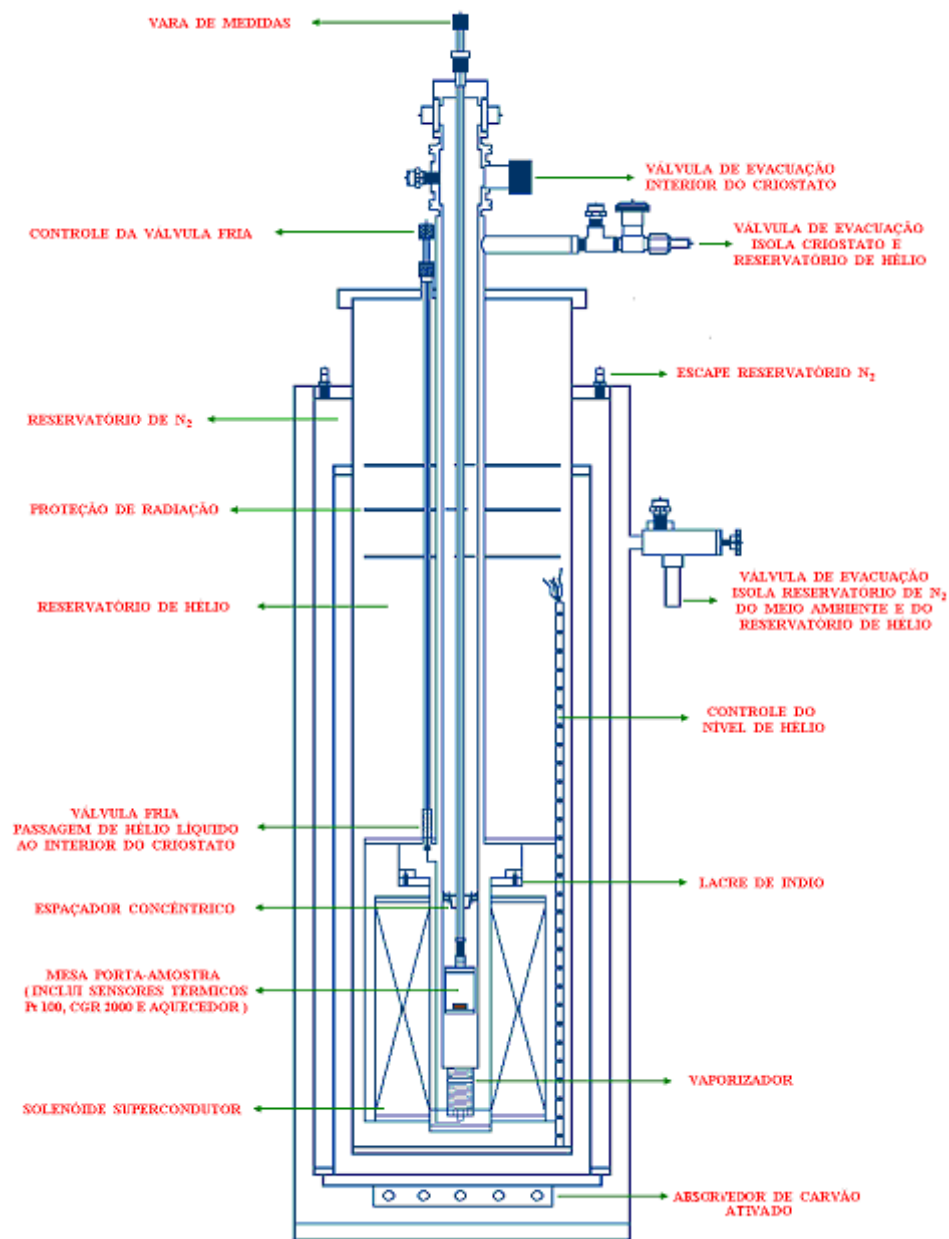


Figura 3.4 - Criostato com solenóide supercondutor para medidas magneto-transporte em função da temperatura.

A mesa porta-amostra, instalada na extremidade inferior da haste de medidas, permite que se alterne a orientação da amostra, e, conseqüentemente, da corrente elétrica que por ela circula, em relação à direção do campo magnético aplicado. Nela estão acoplados termicamente os dois sensores utilizados para monitoramento e controle da temperatura. Para temperaturas abaixo de 60 K há um sensor *Carbon-Glass* de 2000Ω em 4.2 K, modelo CGR1-2000. Entre 60 K e

temperatura ambiente, uma resistência de platina de 100 Ω em temperatura de 273 K, modelo 2005, fabricada pela *Hayashi Denko Co* é utilizada. A resistência de platina é corrigida pelos efeitos de magneto-resistência nos experimentos envolvendo campos magnéticos aplicados.

3.2.2 - Magnetização DC

Medidas de magnetização em função da temperatura foram realizadas na amostra com o objetivo de estudar sua contribuição ao Efeito Hall Extraordinário. Os experimentos foram realizados por um magnetômetro de SQUID (*Superconductor Quantum Interferometer Device*) MPMS (*Magnetic Properties Measurement System*), modelo 2000 fabricado pela *Quantum Design*®. O sistema opera entre 1,9 K e 400 K, variando a temperatura com taxas mínima de 0,01 K/min e máxima de 10 K/min. A temperatura pode ser lida com uma precisão de 0,01 K. Nesse equipamento, campos magnéticos até 50 kOe podem ser aplicados. A susceptibilidade magnética pode ser medida com uma precisão ideal de $5 \cdot 10^{-9}$ emu. As figuras 3.5 e 3.6 representam uma esquematização do sistema, formado pelas partes criogênica e eletrônica.

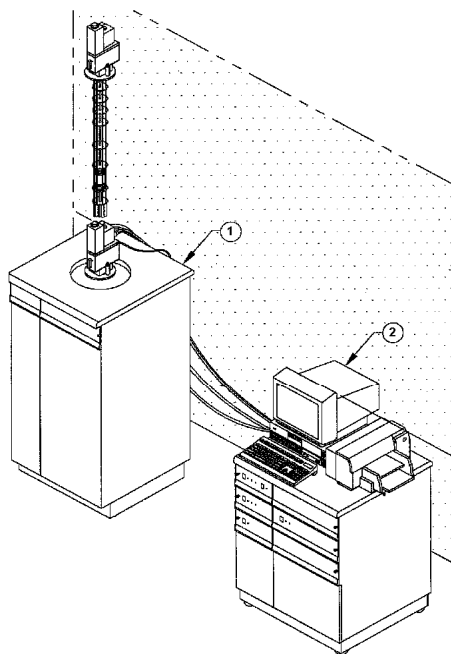


Figura 3.5 - Magnetômetro SQUID: (1) sistema criogênico e (2) sistema de controle do equipamento.

A parte criogênica, é constituída, principalmente, por um criostato extremamente eficaz na conservação de Hélio líquido. Dentro dele, representados na figura 3.6, encontram-se o magneto supercondutor, o sensor SQUID, o sistema de termometria, a vara de medidas e a eletrônica associada.

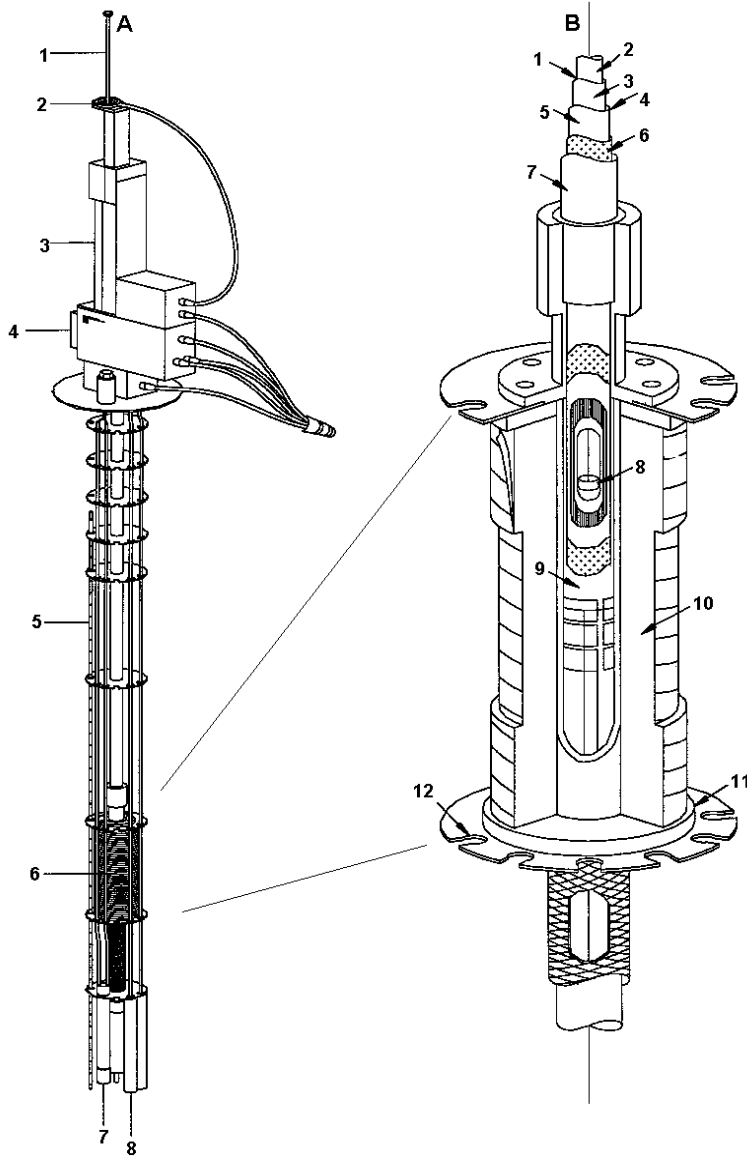


Figura A:

- 1 - cana
- 2 - rotador da cana
- 3 - sistema de transporte da amostra
- 4 - sonda
- 5 - sensor de nível de hélio
- 6 - Solenóide supercondutor
- 7 - Impedância
- 8 - Cápsula do SQUID.

Figura B:

- 1 - Câmara da amostra
- 2 - Espaço da amostra
- 3 - Folha isotérmica com aquecedor
- 4 - Região de isolamento térmico
- 5 - Parede de vácuo interno
- 6 - Superisolamento
- 7 - Parede de vácuo externo
- 8 - Amostra
- 9 - Parede interna da bobina supercondutora
- 10 - Fio supercondutor multifilamentar
- 11 - Parede externa da bobina
- 12 - Culote

Figura 3.6: Vara de medidas e estrutura interna do criostato com os componentes magnéticos.

O sistema de controle do equipamento é feito por computador através de uma interface IEEE-488. A operação do magnetômetro é realizada por meio de três controladores comandados pelo computador através de um programa desenvolvido pela *Quantum Design*® para ambiente *Windows*:

1) O controlador modelo 1822 é encarregado da translação e transporte da amostra, do acoplamento do aquecedor interno, da detecção do sinal SQUID, da fonte de corrente para a bobina supercondutora, da chave para a operação em modo persistente, da impedância e do sensor de nível de hélio líquido;

2) O segundo controlador é responsável pela dinâmica de gases do sistema, comandando a chave de fluxo de gás He, a chave do fluxo de ar e a bomba de vácuo;

3) O terceiro controlador é uma ponte R/G modelo 1802, sendo responsável pelos sensores de temperatura e aquecimento de gás.

As medidas de magnetização DC em função da temperatura foram feitas segundo os procedimentos ZFC e FCC. Os valores de campos magnéticos utilizados foram os mesmos que os empregados nas medidas de magneto-transporte, permitindo uma correlação entre os resultados obtidos com ambas as técnicas.

Capítulo 4

Caracterização da amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$

Neste capítulo são apresentados os resultados obtidos em medidas de resistividade elétrica, magneto-resistência, magnetização e histerese magnética de uma amostra policristalina do rutenocuprato $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (Ru(Gd)-1212).

4.1 - A estrutura da amostra

A amostra teve sua estrutura cristalográfica investigada por meio de difração de Raios X, através do método do pó, com radiação $\text{CuK}\alpha$ ($\lambda_{\text{CuK}\alpha} = 1,54178 \text{ \AA}$). No difratograma abaixo (Figura 4.1), estão indexados os planos de difração.

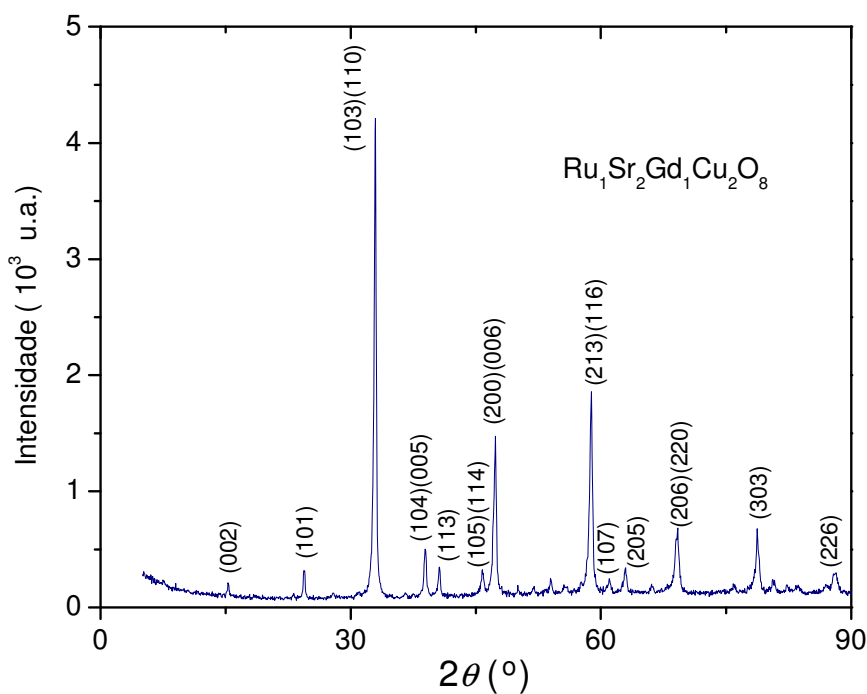


Figura 4.1 – Difratograma de Raios X da amostra $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$.

A lei de Bragg:

$$n\lambda = 2d\sin\theta, \quad (4.1)$$

juntamente com a equação:

$$\frac{1}{d} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2}, \quad (4.2)$$

permitem calcular os valores dos parâmetros de rede desse sistema (Tabela 4.1), onde $n = 1$, d é a distância interplanar, a , b e c são os parâmetros de rede da célula ortorrômbica e h , k e l são os índices de Miller.

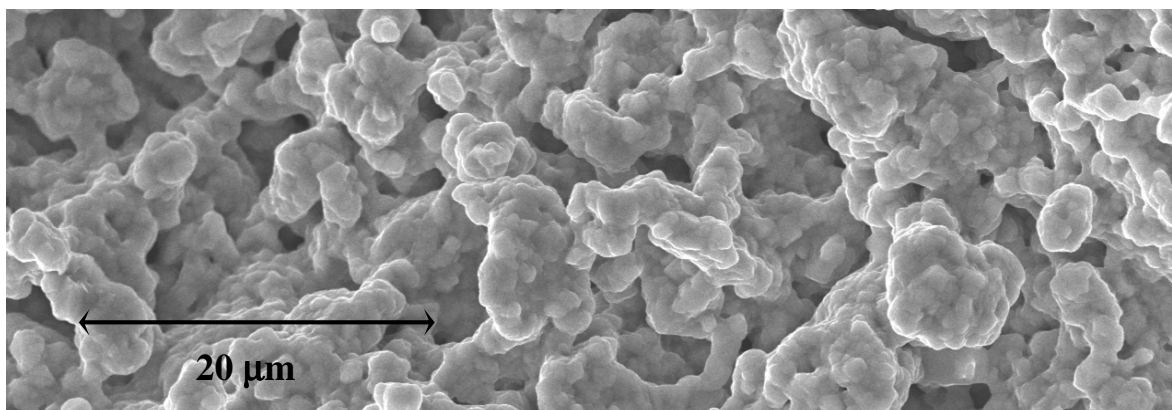
	$a = b$ (Å)	c (Å)
Neste Trabalho	3,837(2)	11,562(1)
Ref. ^[101]	3,839(1)	11,536(1)
Ref. ^[43]	3,83841(2)	11,5731(1)

Tabela 4.1 - Parâmetros de rede da amostra policristalina de $RuSr_2GdCu_2O_8$.

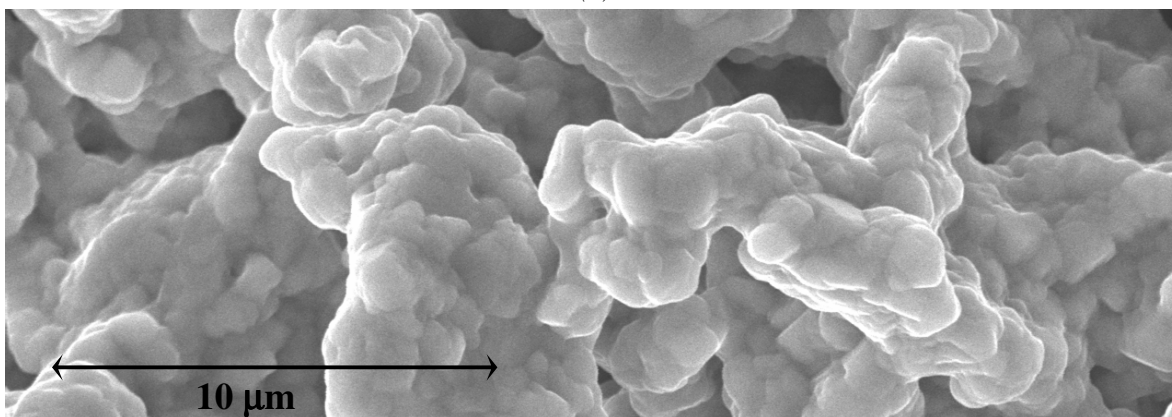
Sistemas supercondutores granulares são descritos como um conjunto de grãos supercondutores fracamente acoplados uns aos outros. As ligações entre grãos podem ter caráter metálico ou isolante. Neste último caso a passagem de pares de Cooper de um grão para o outro se dá através de um processo de tunelamento.

Devido à granularidade, as propriedades magnéticas e de transporte desses materiais nas vizinhanças da transição supercondutora normalmente se manifestam através de uma resposta oriunda de duas ou mais componentes. No caso de duas componentes, uma delas, que domina em temperaturas mais altas, representa a contribuição intragranular associada às propriedades intrínsecas dos grãos supercondutores. A outra componente, cuja resposta se manifesta em temperaturas inferiores a T_c , se origina no meio intergranular e está associada com a supercondutividade fraca que ocorre no acoplamento entre os grãos. As propriedades intergranulares são extrínsecas ao material e geram efeitos dependentes das condições de preparação da amostra.

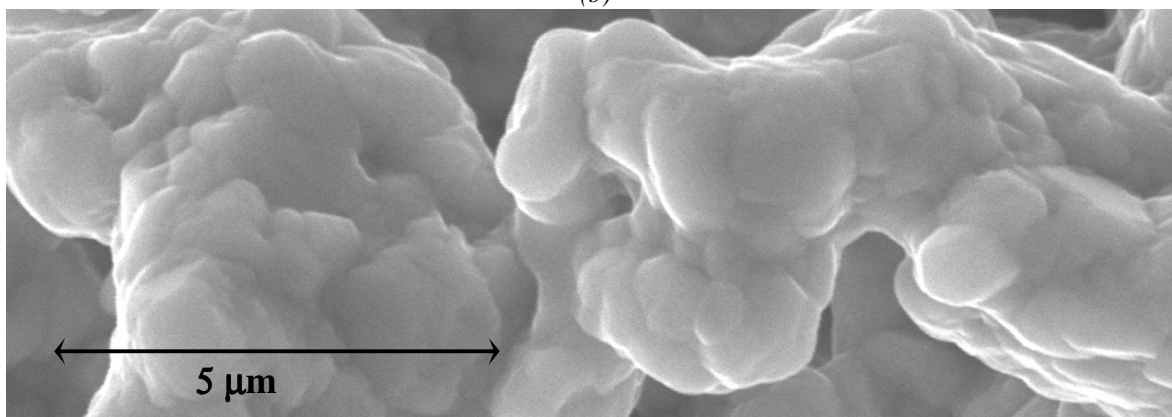
A análise da amostra de Ru(Gd)-1212 por microscopia eletrônica de varredura, ilustrada pela Figura 4.2, revela seu caráter granular.



(a)



(b)



(c)

Figura 4.2 - Imagens obtidas via Microscopia Eletrônica de Varredura da amostra estudada de $RuSr_2GdCu_2O_8$. Ampliações: (a) 2000 vezes, (b) 5000 vezes e (c) 10000 vezes.

4.2 - Transição Resistiva

A Figura 4.3 ilustra o comportamento da resistividade elétrica da amostra $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ em função da temperatura em campo magnético nulo. A dependência da resistividade em altas temperaturas é linear, semelhante a dos cupratos cerâmicos supercondutores.

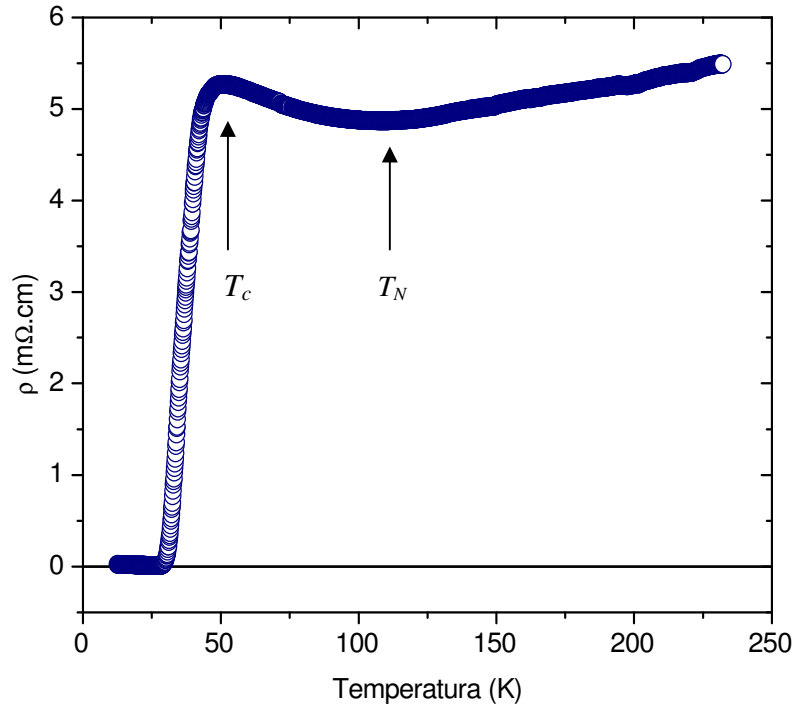


Figura. 4.3 - Comportamento da resistividade elétrica da amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ em função da temperatura.

Em $T_N \approx 133$ K ocorre uma transição antiferromagnética. Abaixo dessa temperatura o comportamento resistivo passa a ser do tipo semiconductor. Comparativamente às observações em outros cupratos supercondutores, a amostra apresenta uma transição supercondutora muito larga. A transição se inicia numa temperatura próxima à $T_c \approx 48$ K. Em torno $T_c \approx 28$ K, a resistividade elétrica anula-se completamente, conforme mostra a derivada da resistividade em função da temperatura, apresentada na Figura 4.4.

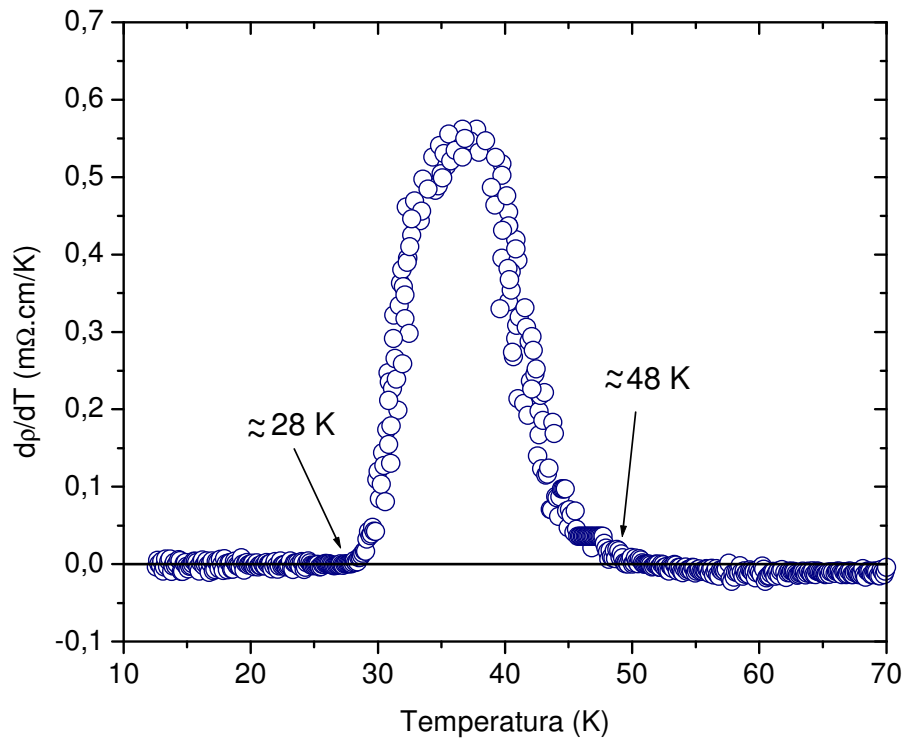


Figura. 4.4 - Derivada da resistividade elétrica em função da temperatura para a amostra policristalina de RuSr₂GdCu₂O₈ na ausência de campo magnético aplicado. O pico corresponde à transição supercondutora.

As características gerais da resistividade e da transição resistiva dos óxidos supercondutores dependem fortemente do método de preparação das amostras. A forte anisotropia é um dos fatores que exerce influência para que a transição não ocorra de forma tão abrupta como nos supercondutores metálicos tradicionais. A largura da transição tende a ser maior em sistemas policristalinos, onde os defeitos estruturais extrínsecos e intrínsecos, como a granularidade, as fronteiras de grãos, as vacâncias, as discordâncias e outros, influenciam na modulação espacial do parâmetro de ordem em escalas comparáveis ao comprimento de coerência.

A aplicação de campos magnéticos em amostras policristalinas dos cupratos supercondutores produz o enfraquecimento das ligações intergranulares, o que acarreta alterações nas propriedades de transporte eletrônico nesses compostos nas imediações da transição supercondutora. Assim, ocorre um alargamento global na transição, diminuindo a temperatura na qual é estabelecido o estado de resistência nula^[102]. Um efeito semelhante é provocado pelo aumento da densidade de corrente elétrica. Em campos magnéticos

suficientemente altos, o alargamento na transição possui uma contribuição devida ao movimento de vórtices^[103].

Na Figura 4.5 comprova-se que a aplicação de campos magnéticos alarga fortemente a transição supercondutora do Ru(Gd)-1212, de modo que a temperatura em que se estabelece o estado de resistência nula decresce significativamente com o aumento de intensidade do campo aplicado. O campo magnético exerce fraca influência no início da transição, que ocorre nas proximidades da transição intragranular.

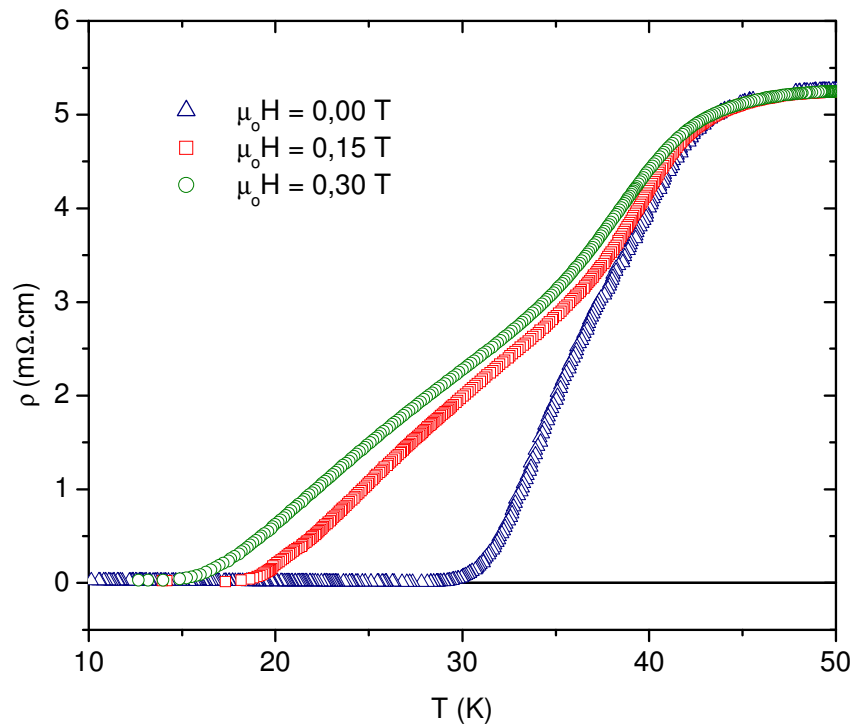


Figura. 4.5 - Efeito da aplicação de campo magnético na transição resistiva da amostra policristalina de $RuSr_2GdCu_2O_8$.

A Figura 4.6 apresenta resultados de $\frac{d\rho}{dT}$ na região de transição em presença de campos magnéticos aplicados longitudinalmente à corrente. Observa-se uma estrutura característica de dois picos.^[104]

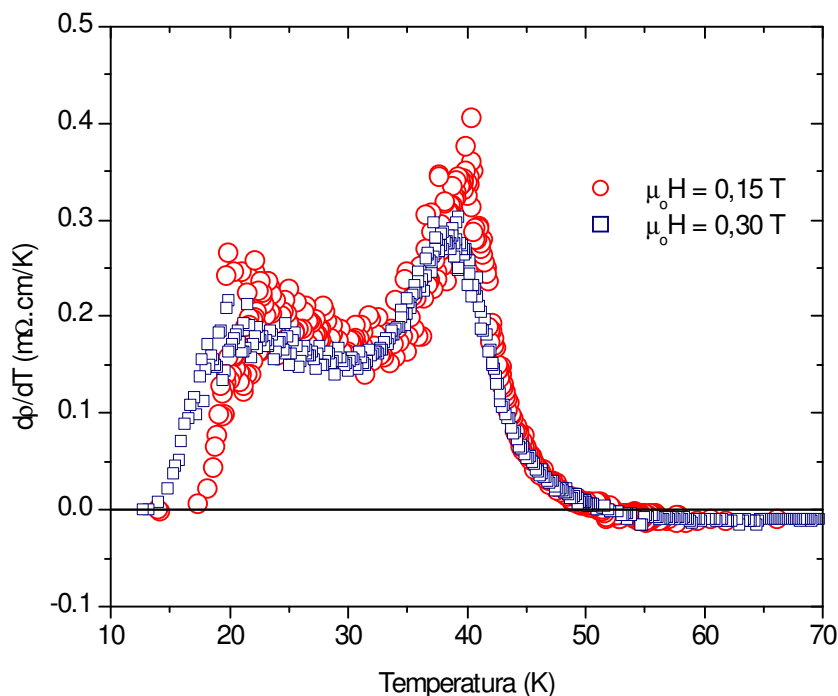


Figura. 4.6 – Derivada da resistividade elétrica da amostra policristalina de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ em função da temperatura, na presença de campos magnéticos.

O pico de maior temperatura na derivada $\frac{d\rho}{dT}$ da Figura 4.6 corresponde à transição supercondutora que ocorre no interior dos grãos, enquanto que o máximo de mais baixa temperatura é indicativo do processo de percolação através das ligações fracas entre os grãos. Os acoplamentos intergrão, que podem ocorrer via tunelamento *Josephson* ou por efeitos de proximidade, são fortemente dependentes da temperatura, do campo magnético e da densidade de corrente aplicada. Considerando a amostra granular como um sistema de grãos fracamente acoplados, observamos que a diminuição da temperatura propicia que, primeiramente, os grãos se tornem supercondutores em $T = T_c$. Porém, as fases do parâmetro de ordem de cada grão flutuam incoerentemente logo abaixo de T_c . Somente nas proximidades do estado de resistência nula, em temperaturas mais baixas, é estabelecida uma ordem de longo alcance através das ligações fracas, tornando o agregado granular inteiramente supercondutor.

4.3 - Magneto-resistência

A magneto-resistência expressa a variação da resistividade elétrica em função do campo magnético aplicado quando a temperatura é estabilizada num valor fixo. A Figura 4.7 ilustra as curvas de magneto-resistência ($\Delta\rho = \rho - \rho(0)$, onde ρ é a resistividade na presença de campo magnético e $\rho(0)$ é a resistividade em campo nulo) obtidas em temperaturas no intervalo desde 91 K até a região em que ocorre a transição supercondutora.

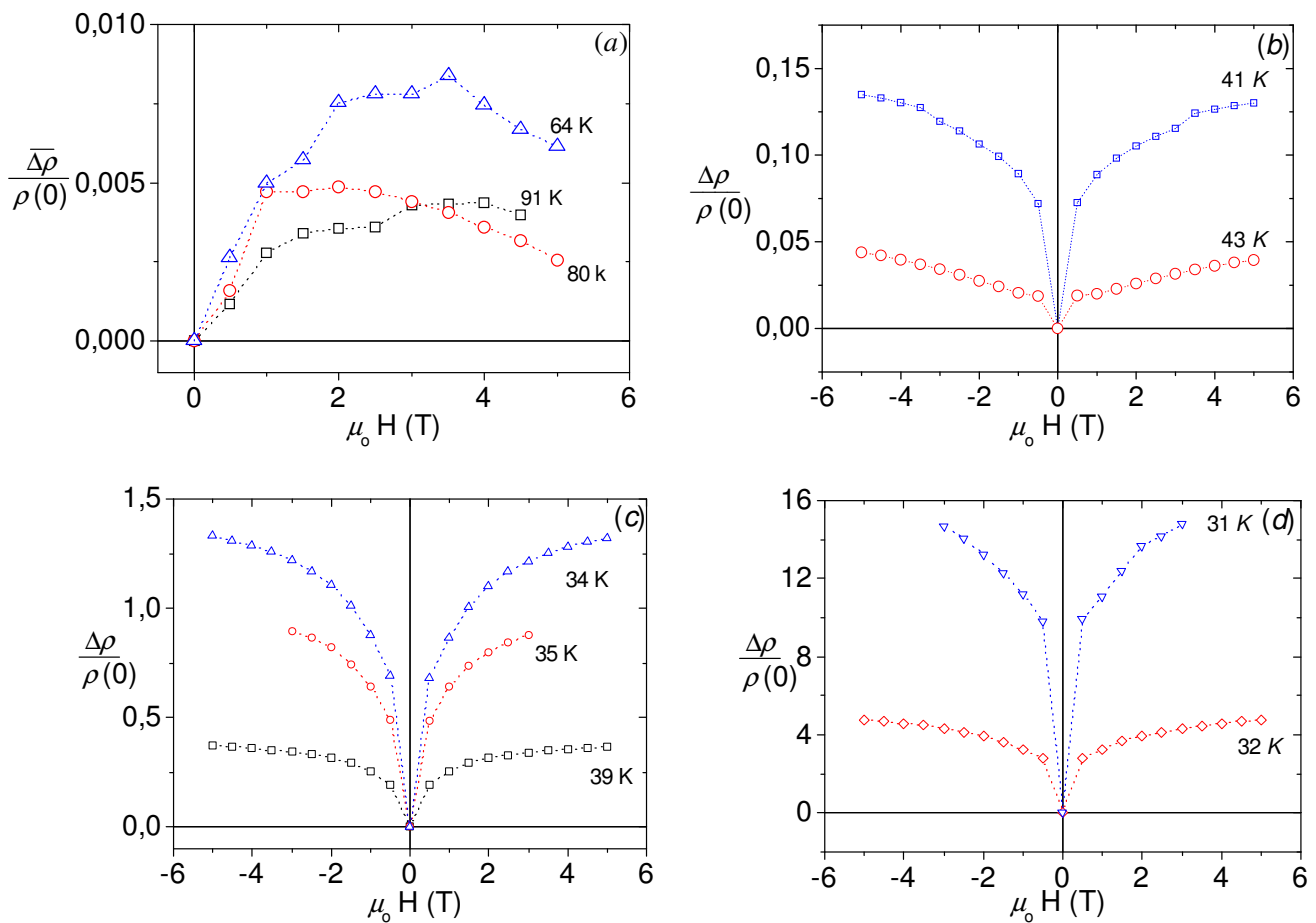


Figura 4.7 - Magneto-resistência da amostra de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. O gráfico (a) ilustra as curvas de magneto-resistência para temperaturas correspondentes ao estado normal. Os dados apresentados em (b) correspondem ao início da transição supercondutora. Os gráficos (c) e (d) ilustram as curvas de magneto-resistência para temperaturas no intervalo da transição supercondutora. (A linha que une os pontos é um guia para os olhos).

Observa-se que, de $T = 91$ K até $T = 64$ K (Figura 4.7 (a)) a magneto-resistência é muito pequena em campos entre 0 e 5 T . A partir de $T = 43$ K (Figura 4.7 (b)), o campo magnético começa a atuar significativamente no transporte de cargas, devido ao início da transição supercondutora. Conforme a temperatura diminui através de T_c , efeitos devido à flutuações supercondutoras tornam-se perceptíveis. Em baixos campos aplicados, a resistividade sofre um aumento considerável em $T = 41$ K, e em temperaturas inferiores, devido ao “*quenching*” de flutuações supercondutoras na região intragranular.

As Figuras 4.7 (c) e (d) mostram a variação da magneto-resistência com o campo magnético no intervalo entre $T = 39$ K e $T = 31$ K, em que se processa a transição supercondutora. Neste intervalo, campos magnéticos fracos provocam grandes variações positivas na magneto-resistência.

Persistindo com o resfriamento da amostra, o estado supercondutor se estabiliza, em $H = 0$, no intervalo abaixo de $T = 28$ K (Figura 4.8). Entretanto, campos magnéticos baixos restauram, em parte, o comportamento resistivo. Um comportamento quase linear de ρ em função de $\mu_0 H$ é obtido em 16 K. Esse comportamento corresponde a um regime em que dominam efeitos de deriva de fluxo magnético^[105].

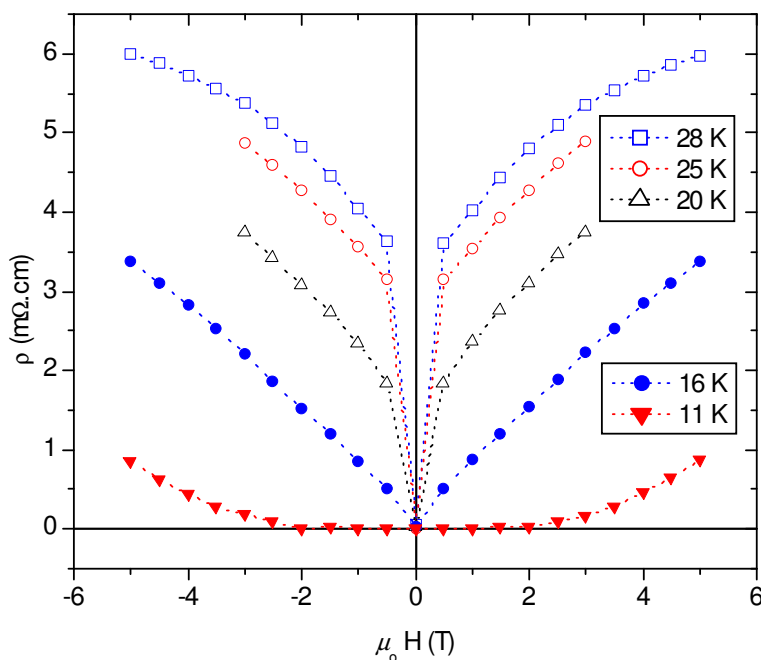


Figura 4.8 - Magneto-resistência da amostra de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. O gráfico ilustra as curvas de magneto-resistência para temperaturas correspondentes ao estado supercondutor. (A linha que une os pontos é um guia para os olhos).

Em $T = 11$ K, a resistividade permanece nula até aproximadamente 2 T, o que corresponde ao estabelecimento de um estado supercondutor com corrente crítica finita na presença de campo magnético longitudinal.

4.4 - Magnetização DC

Nesta seção serão apresentados os resultados obtidos nas medidas de magnetização no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ (RuGd-1212). Campos magnéticos entre 0 e 3 T foram aplicados numa amostra desse composto confeccionada na forma de uma agulha, de modo a minimizar os efeitos desmagnetizantes.

As medidas de magnetização, realizadas segundo os procedimentos ZFC-FC, possibilitam o acompanhamento qualitativo da evolução magnética da amostra Ru(Gd)-1212 em função da temperatura. A Figura 4.9 - (a) indica que o sistema apresenta um comportamento paramagnético até $T_N = 132,80$ K, onde ocorre uma transição para um estado predominantemente antiferromagnético. O resfriamento da amostra abaixo de 27 K caracteriza uma contribuição diamagnética, relacionada ao estabelecimento do estado supercondutor em baixas temperaturas.

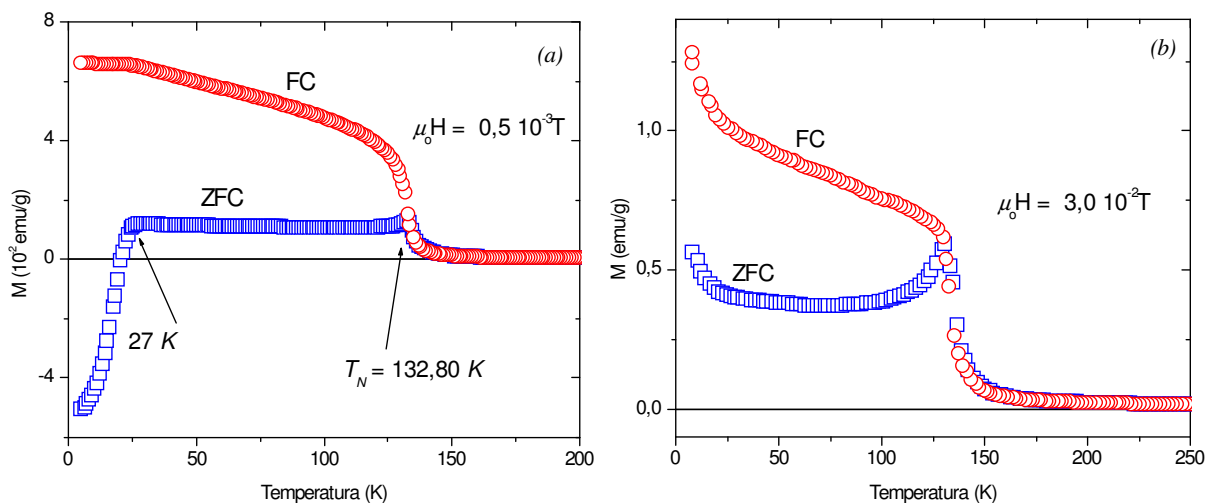


Figura 4.9 - Magnetização ZFC-FC da amostra de $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ em $\mu_0 H = 0,5 \cdot 10^{-3} \text{T}$ (a) e em $\mu_0 H = 3,0 \cdot 10^{-2} \text{T}$ (b).

Observa-se que a contribuição diamagnética torna-se relevante em temperaturas abaixo daquela em que a resistividade se torna nula. Esse comportamento é típico de

sistemas granulares cujos grãos são muito pequenos. Somente quando correntes de blindagem circulam em regiões macroscópicas da amostra o diamagnetismo torna-se observável. As curvas ZFC-FC evidenciam o comportamento irreversível da magnetização. Essas irreversibilidades revelam a presença de “*canting*” dos momentos magnéticos nesse sistema. Portanto, o estado antiferromagnético é frustrado, sendo possível a existência de um ferromagnetismo fraco na orientação cristalina paralela aos planos de Ru-O₂, conforme discutido na seção 1.4.4. Realizando medidas em campos magnéticos mais intensos, o sinal diamagnético é suprimido, conforme ilustra a Figura 4.9 - (b).

Em campos magnéticos elevados, a irreversibilidade ZFC-FC é suprimida (Figura 4.10-(a)) e uma forte componente paramagnética, devida aos *spins* do Gd, domina a magnetização na região de baixas temperaturas.

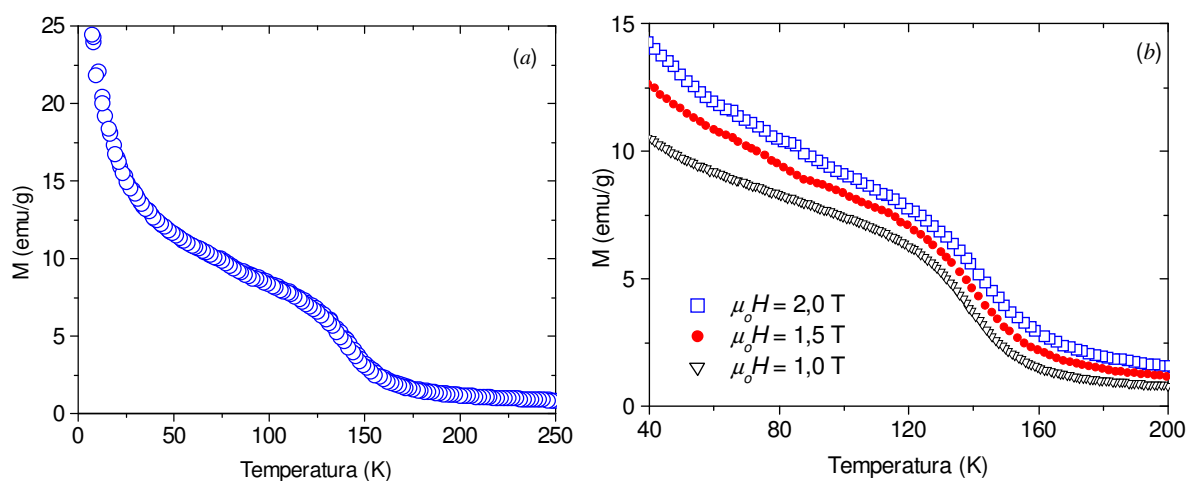


Figura 4.10 - (a) Magnetização da amostra de RuSr₂GdCu₂O₈ em $\mu_0 H = 1,5$ T. (b) Magnetização da amostra de RuSr₂GdCu₂O₈ na região normal

No Capítulo 5, tratamos de modo mais específico da contribuição ao efeito Hall relacionada à magnetização. Com vistas à posterior análise dessa contribuição anômala, as intensidades de campo magnético aplicados nas medidas de magnetização da Figura 4.10 - (b) foram as mesmas posteriormente utilizadas nas medidas de efeito Hall.

4.5 - Histerese Magnética

As medidas de magnetização em função do campo aplicado, ilustradas na Figura 4.11, foram realizadas, segundo o procedimento ZFC, em 200 K, 80 K e 17 K. Essas

temperaturas correspondem, respectivamente, a estados acima de T_N , entre T_N e T_c e abaixo de T_c .

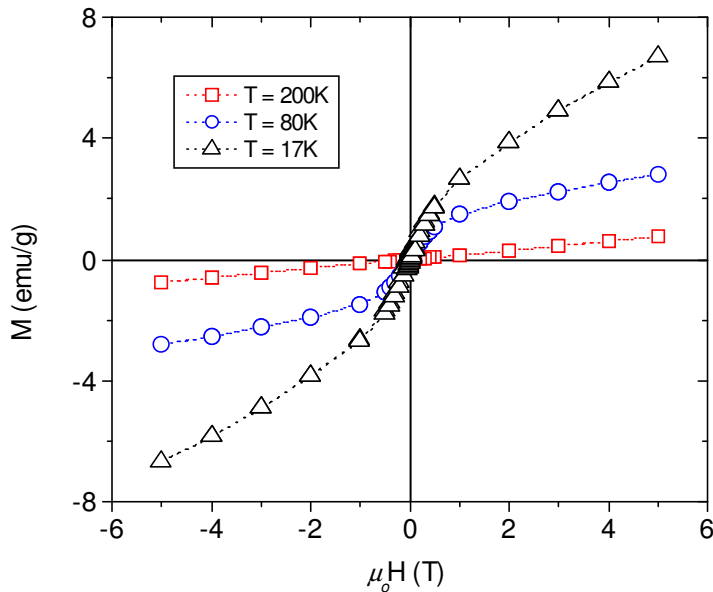


Figura 4.11 - Magnetização da amostra de $RuSr_2GdCu_2O_8$ versus campo aplicado (até 5T).

Em 200 K, a magnetização da amostra varia linearmente com o aumento do campo aplicado, caracterizando o comportamento de um sistema paramagnético. Em 80 K, a amostra apresenta uma magnetização fortemente não linear, identificando a presença de ordem magnética. Em 17 K o sinal magnético torna-se ainda mais intenso. Analisando a região próxima à origem do gráfico, observa-se que ocorre uma pequena histerese na magnetização (Figura 4.12).

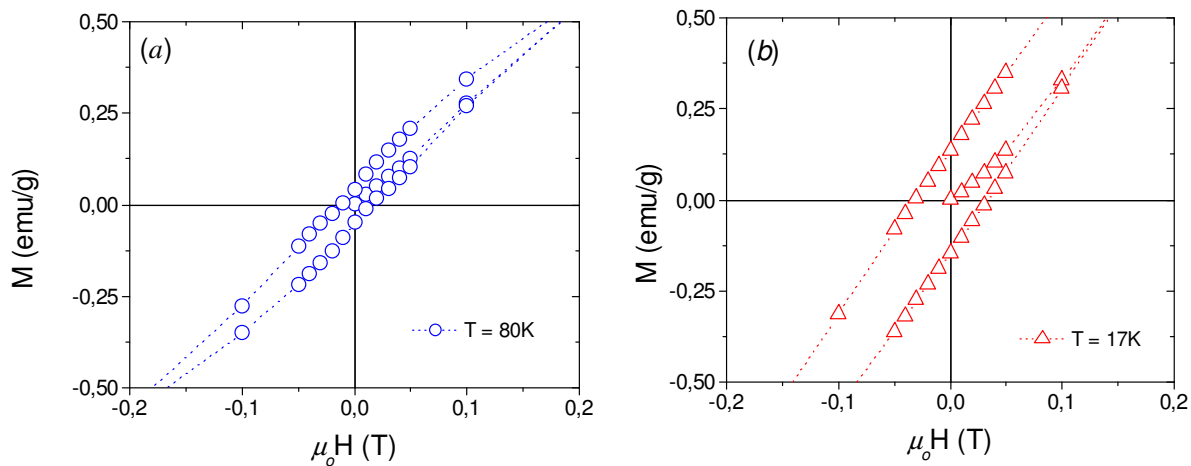


Figura 4.12 - Ampliação das medidas de magnetização em função do campo magnético da amostra de $Ru(Gd)-1212$ na região de baixos campos em (a) $T = 80$ K e (b) $T = 17$ K.

A histerese que ocorre em baixos campos nas medidas abaixo de T_N , pode ser atribuída à fraca contribuição ferromagnética devida ao “canting” dos momentos magnéticos do Rutênio. Entretanto não foi observada, até 5 T, nenhuma tendência à saturação, o que é esperado num sistema globalmente antiferromagnético. À medida que aumenta a intensidade do campo, a componente antiferromagnética passa a ser dominante. A Figura 4.13 ilustra a curva de histerese obtida numa medida realizada abaixo de T_c no limite de campos magnéticos muito fracos. Neste gráfico é possível identificar a contribuição diamagnética, característica dos supercondutores, em torno de $H = 0$.

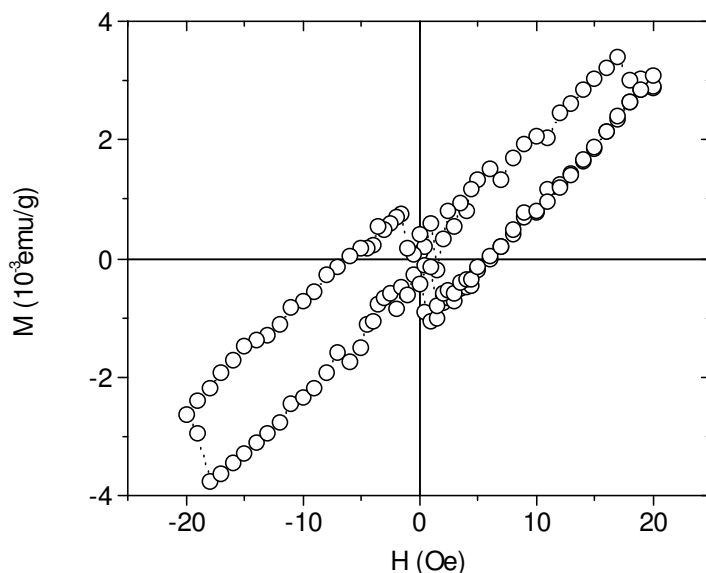


Figura 4.13 - Histerese da amostra de $RuSr_2GdCu_2O_8$ em baixo campo obtida na fase supercondutora em $T = 20$ K.

Capítulo 5 - Efeito Hall no $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$

Neste capítulo serão apresentados os resultados obtidos no estudo do efeito Hall na fase normal de uma amostra policristalina do $\text{RuGd}_2\text{SrCu}_2\text{O}_8$ ($\text{Ru}(\text{Gd})\text{-1212}$). Esses experimentos, combinados com as medidas de magnetização e resistividade, permitem a obtenção da contribuição anômala ao efeito Hall. Também serão apresentados resultados na fase supercondutora.

5.1 - Tensão Hall

A medida de efeito Hall propriamente dita consiste na determinação da tensão Hall, tal como é descrito no capítulo 3. A Figura 5.1 ilustra o resultado de uma série de medidas da tensão Hall versus temperatura para campos magnéticos aplicados de 0,25 T até 2,00 T. O pico negativo observado na Figura 5.1- (a) ocorre durante a transição supercondutora na amostra estudada de $\text{Ru}(\text{Gd})\text{-1212}$. A Figura 5.1-(b) detalha o comportamento da tensão Hall na fase normal, região de maior interesse neste trabalho.

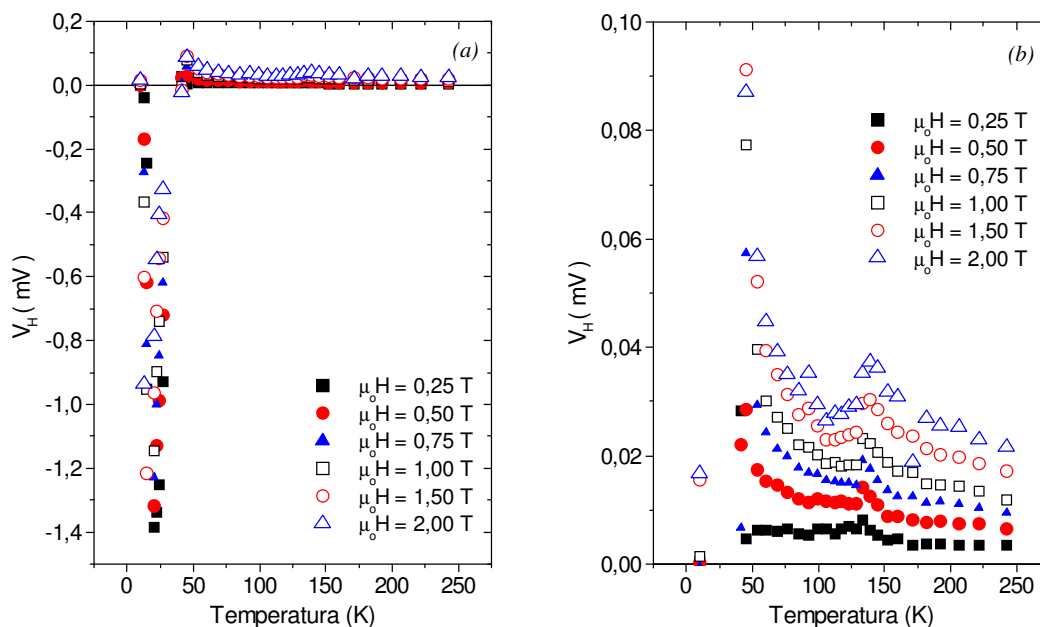


Figura 5.1 – Tensão Hall na amostra de $\text{RuGd}\text{-1212}$ realizada pelo método AC (37 Hz).

(a) Medida completa. (b) Resultados na fase normal.

5.2 - Resistividade Hall na Fase Normal

A Figura 5.2 mostra a dependência da resistividade Hall da amostra estudada de Ru(Gd)-1212 em função do campo magnético aplicado para várias temperaturas. Em altas temperaturas (parte (a) da Figura 5.2) observa-se que ρ_H varia de forma aproximadamente linear com o campo aplicado. Esse comportamento está de acordo com o efeito Hall ordinário, pois acima de $T_N = 133$ K a amostra está na fase paramagnética. Em temperaturas inferiores à T_N (parte (b) da Figura 5.2), a dependência de ρ_H com o campo magnético torna-se mais complexa, indicando a presença de um termo anômalo.

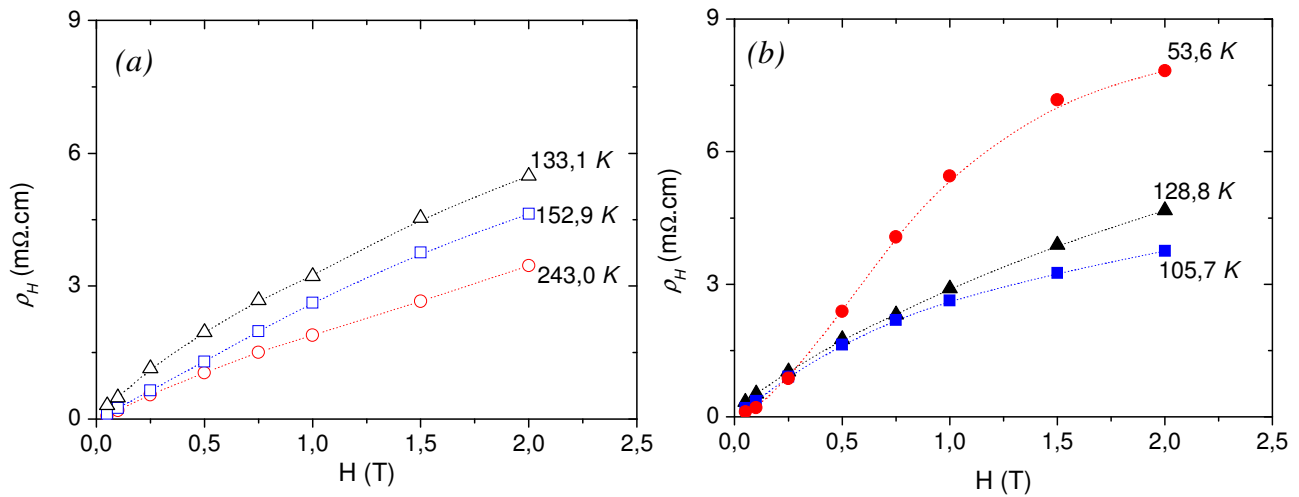


Figura 5.2 - Resistividade Hall em função do campo magnético aplicado para a amostra estudada de Ru(Gd)-1212. (a) Temperaturas na fase paramagnética ($T > T_N$). (b) Temperaturas na fase antiferromagnética ($T_c < T < T_N$).

5.3 - Coeficiente Hall

O coeficiente Hall total é definido como:

$$R_H = \frac{\rho_H}{\mu_o H_{apl}} \quad (5.1)$$

onde H_{apl} é o campo magnético aplicado.

A partir da medida da tensão Hall V_H , e sendo conhecidas a corrente elétrica i e a espessura d da amostra, a resistividade Hall é determinada por:

$$\rho_H = \frac{V_H \cdot d}{i} \quad (5.2)$$

A Figura 5.3 mostra a dependência do coeficiente Hall total, medido em campos de 1,0 T, 1,5 T e 2,0 T, em função da temperatura. Estes experimentos foram realizados segundo o método AC.

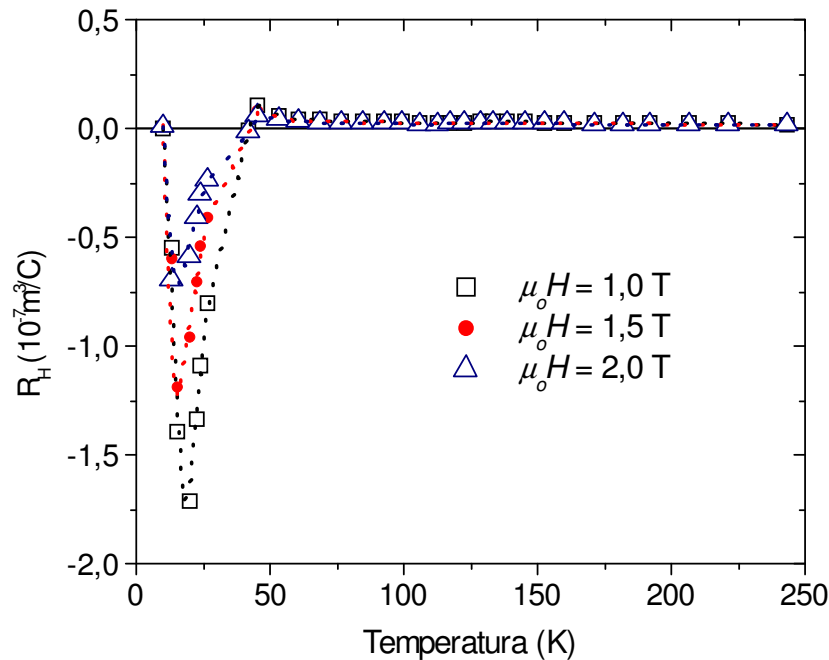


Figura 5.3 - Coeficiente Hall versus temperatura para a amostra de Ru(Gd)-1212. A linha pontilhada é um guia para os olhos.

Ampliando a região normal ($T > 40 \text{ K}$) da Figura 5.3 observa-se um pico no coeficiente Hall em $T_N \approx 133 \text{ K}$ (Figura 5.4), temperatura em que ocorre o ordenamento antiferromagnético do sistema. À medida que a temperatura diminui, se aproximando de T_c , o coeficiente Hall cresce fortemente até atingir um valor máximo. A partir de então, cai abruptamente, invertendo seu sinal na fase supercondutora antes de se anular em temperaturas mais baixas.

Em acordo com os resultados da Figura 5.4, observa-se que R_H torna-se dependente do campo aplicado abaixo de temperaturas próximas a T_N , o que indica a ocorrência de uma contribuição anômala ao efeito Hall, relacionada ao ordenamento magnético que se estabelece.

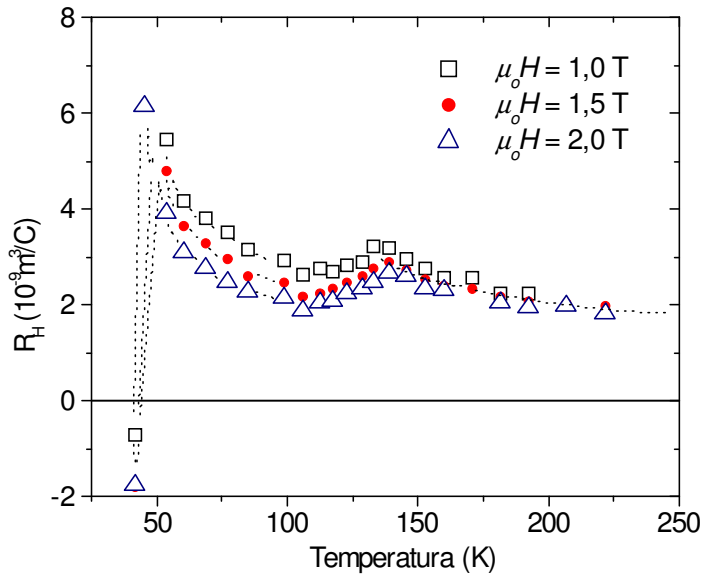


Figura 5.4 - Coeficiente Hall versus temperatura para a amostra de Ru(Gd)-1212 na fase normal. A linha pontilhada é um guia para os olhos.

As medidas realizadas segundo a técnica AC apresentam maior confiabilidade em relação à precisão relativa dos dados medidos, bem como sua variação com a temperatura e o campo magnético. Porém, com essa técnica é difícil determinar o sinal do coeficiente Hall, pois, para isto, é necessário uma comparação com padrões conhecidos. Utilizando a técnica DC obtêm-se com certeza esse sinal. Entretanto, a precisão da medida é inferior. A Figura 5.5 ilustra os resultados obtidos para o coeficiente Hall em ambas as técnicas.

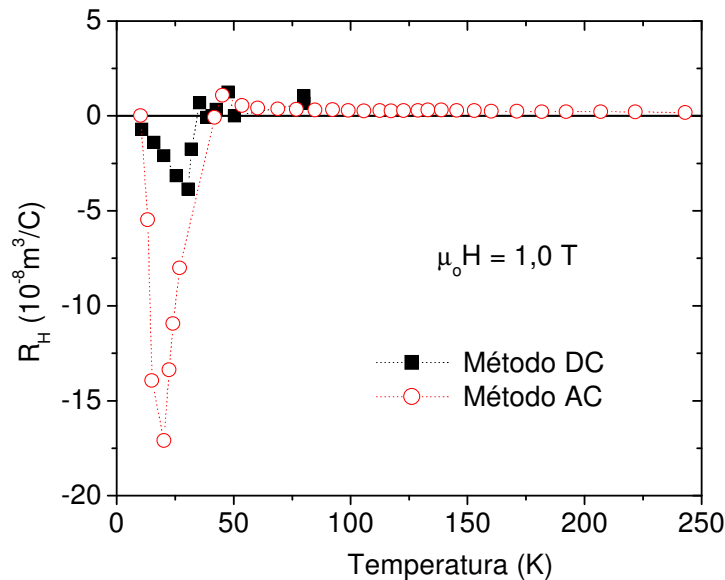


Figura 5.5 – Coeficiente Hall da amostra de Ru(Gd)-1212. Comparação entre os métodos AC e DC.

O resultado das medidas de efeito Hall na amostra Ru(Gd)-1212 utilizando o método DC mostra que no estado normal ($T > 40$ K) o coeficiente Hall tem sinal positivo, e os portadores de carga são do tipo lacunas, típico dos cupratos supercondutores. No estado supercondutor ($T < 40$ K), o coeficiente Hall inverte o sinal, e tem magnitude muito superior à do estado normal.

5.4 - Análise do Efeito Hall na Fase Normal

Nos experimentos de efeito Hall a amostra foi conformada na forma de paralelepípedo, tendo um fator desmagnetizante $\eta_H \approx 1$. Nas medidas de magnetização, onde a amostra possui forma de agulha, o fator desmagnetizante pode ser aproximado como $\eta_M \approx 0$. Assim, o campo magnético real sentido pela amostra nas medidas de efeito Hall é reduzido, em relação ao campo magnético aplicado, para

$$H = H_{apl} - \eta_H M, \quad (5.3)$$

onde H é o campo real sentido pela amostra, H_{apl} é o campo magnético aplicado externamente, $\eta_H \approx 1$ e M é a magnetização da amostra.

Em condutores magnéticos a resistividade Hall é normalmente escrita como:

$$\rho_{Hall} = R_o B + R_s \mu_o M, \quad (5.4)$$

onde R_o e R_s são, respectivamente, os coeficientes Hall ordinário e anômalo. Relembrando que a indução magnética é dada por $B = \mu_o H + \mu_o M$, podemos escrever, utilizando a equação (5.3):

$$\rho_{Hall} = R_o \mu_o (H_{apl} - \eta_H M + M) + R_s \mu_o M \quad (5.5)$$

O coeficiente Hall total R_H , definido pela equação (5.2), pode ser reescrito como:

$$R_H = R_o \left(1 + \frac{\mu_o M (1 - \eta_H)}{\mu_o H + \eta_H \mu_o M} \right) + R_s \frac{\mu_o M}{\mu_o H + \eta_H \mu_o M}. \quad (5.6)$$

Como $\eta_H \approx 1$, podemos definir

$$M_H \equiv \frac{\mu_o M}{\mu_o H + \mu_o M}, \quad (5.7)$$

e coeficiente Hall total pode finalmente ser expresso como:

$$R_H = R_o + R_s M_H. \quad (5.8)$$

5.5 - Determinação de M_H

Para a análise dos resultados dos experimentos de efeito Hall na amostra estudada de Ru(Gd)-1212, é necessário normalizar os dados da magnetização apresentados no capítulo anterior (Figura 4.10-(b)) utilizando a equação 5.7. A Figura 5.6 ilustra a dependência de M_H com a temperatura para campos magnéticos aplicados de 1,0 T, 1,5 T e 2,0 T. Em temperaturas superiores a ~ 145 K, M_H praticamente não varia com o campo aplicado. Nas proximidades de $T_N \sim 133$ K, e principalmente abaixo dessa temperatura, observa-se uma forte dependência de M_H com o campo magnético.

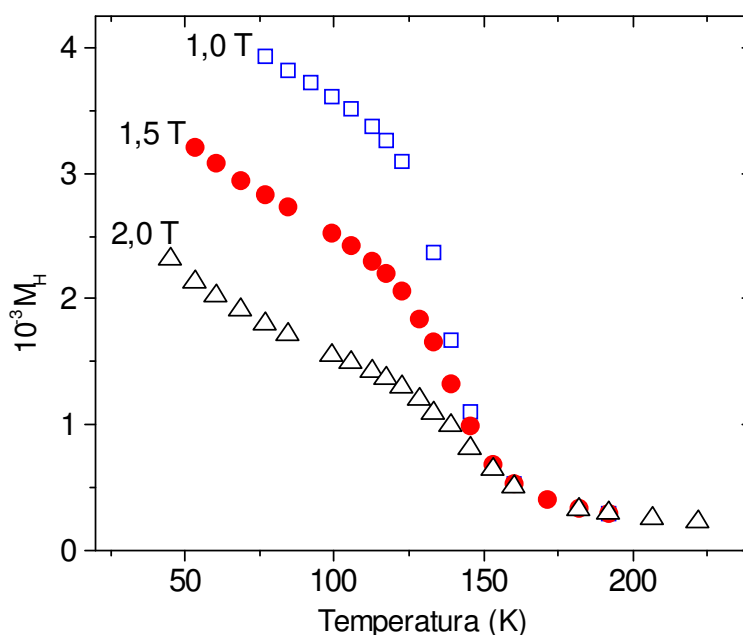


Figura 5.6 - M_H versus temperatura. O cálculo de M_H foi realizado nas mesmas temperaturas em que foram feitos os experimentos de efeito Hall.

5.6 - Determinação dos Coeficientes Hall Ordinário e Anômalo

A partir dos dados obtidos para M_H , ilustrados na Figura 5.6, e assumindo que R_o é independente da temperatura, o gráfico de R_H versus M_H (Figura 5.7) com campos magnéticos aplicados fixos, permite a determinação simultânea de R_o e R_S através da equação 5.8.

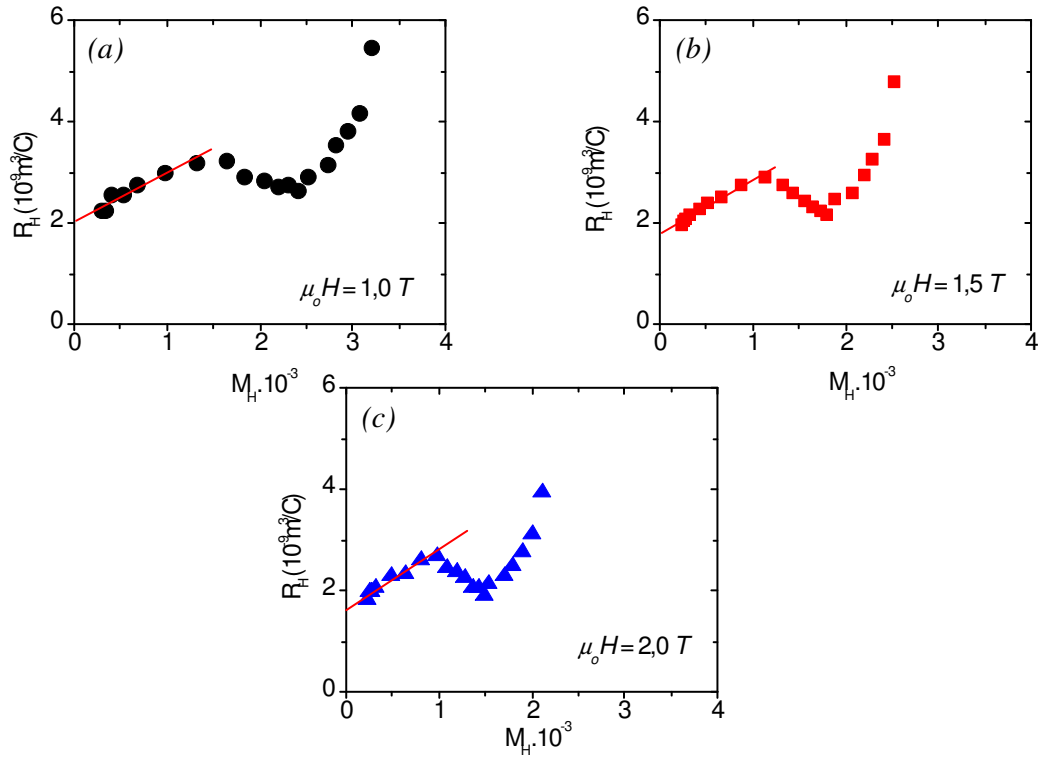


Figura 5.7 - R_H versus M_H . A reta corresponde à aproximação $R_H = R_o + R_S M_H$.

O coeficiente Hall ordinário R_o é obtido a partir de uma extrapolação linear de R_H versus M_H ao ponto $M_H = 0$ na fase paramagnética (Figura 5.7). No regime em que as temperaturas são superiores à T_N , R_S é independente da temperatura e cresce com o aumento da intensidade do campo magnético aplicado. A Tabela 5.1 mostra os valores de R_o , R_S (na fase paramagnética) e de p (concentração de lacunas calculada a partir da equação 2.2) para os campos magnéticos estudados.

H (T)	R_o ($10^{-9} \text{ m}^3 \text{ C}^{-1}$)	R_S ($10^{-6} \text{ m}^3 \text{ C}^{-1}$)	p (10^{21} cm^{-3})	p (at.Cu $^{-1}$)
1,0	$2,05 \pm 0,08$	$0,90 \pm 0,09$	4,2	0,35
1,5	$1,80 \pm 0,04$	$1,02 \pm 0,06$	4,8	0,41
2,0	$1,65 \pm 0,05$	$1,09 \pm 0,9$	5,3	0,45

Tabela 5.1 - H : Campo magnético aplicado, R_o : coeficiente Hall Ordinário, R_S : coeficiente Hall anômalo, p : concentração de lacunas. (Valores correspondentes à fase paramagnética).

5.6.1 - O Coeficiente Hall Ordinário

Normalmente, o coeficiente Hall ordinário, dado por $R_o = \frac{1}{nq}$, não depende do campo magnético. Entretanto, na amostra estudada de RuGd-1212, a variação da densidade de portadores com o campo magnético faz com que R_H diminua com o aumento da intensidade do campo aplicado. A estimativa para a densidade de portadores (p) para o RuGd-1212 encontrada (Tabela 5.1) está de acordo com cálculos baseados na distância interatômica Cu-O, que reportam $p \sim 0,4$ lacunas por átomo de Cu^[57]. Entretanto, outras medidas de transporte indicam uma densidade da ordem de $p \sim 0,1$ lacunas por átomo de Cu^[43]. A dependência de densidade de portadores com o campo magnético aplicado é um tópico relevante que merece uma investigação detalhada.

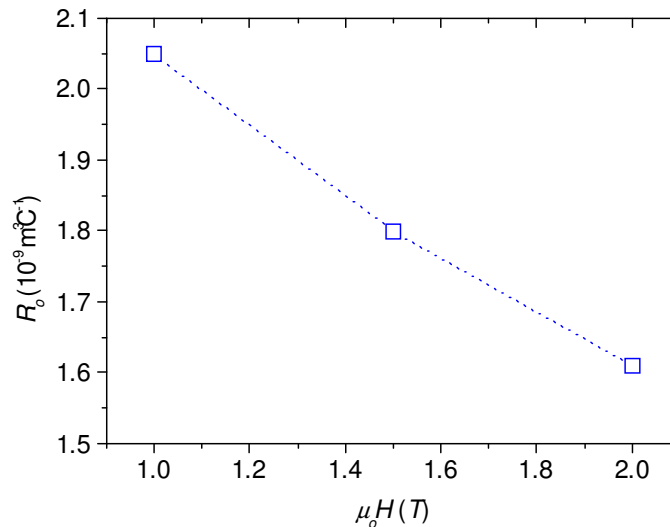


Figura 5.8 - Dependência do coeficiente Hall Ordinário com o campo magnético aplicado

5.6.2 - O Coeficiente Hall Anômalo

Uma vez determinado o valor de R_o , e supondo que este não varia com a temperatura, a dependência do coeficiente Hall anômalo com a temperatura pode ser obtida a partir da equação (5.8) para cada um dos campos magnéticos estudados (Figura 5.9).

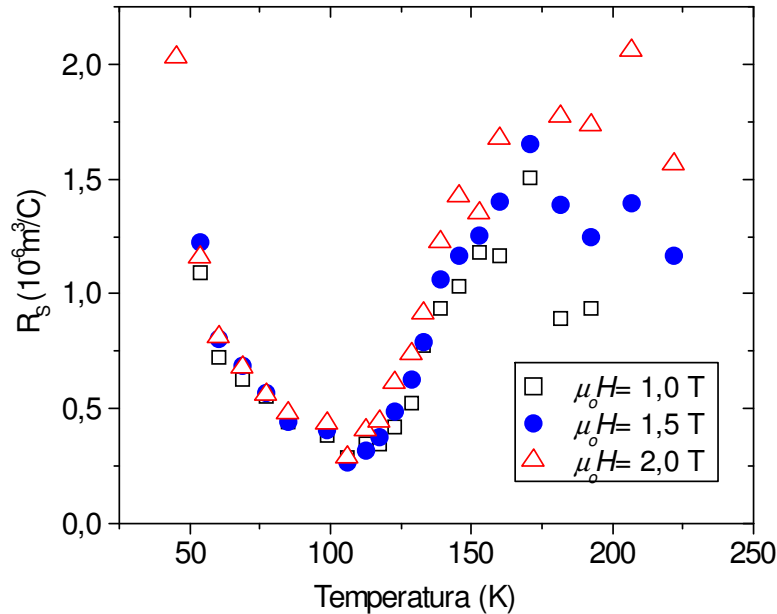


Figura 5.9 - Dependência do coeficiente Hall anômalo com a temperatura.

A teoria de Karpus-Luttinger prevê que a dependência do coeficiente Hall anômalo com a temperatura esteja associada à resistividade longitudinal ρ_{xx} da seguinte forma:

$$R_S^{KL}(T) = A\rho_{xx}^2(T) \quad (5.9)$$

onde A é uma constante independente da temperatura.

Para testar essa predição, assumimos que esta teoria é válida no regime de altas temperaturas, na fase paramagnética. Na Figura 5.10 a linha contínua ilustra uma estimativa para $R_S^{KL}(T)$ baseada na medida da resistividade longitudinal, $\rho_{xx}(T)$. Observa-se que a contribuição $R_S^{KL}(T)$ descreve algumas características de $R_S(T)$. Entretanto a adição de outro termo de igual magnitude é claramente necessária para descrever os resultados obtidos. A hipótese deste trabalho é que esta contribuição adicional a $R_S(T)$ seja devida à quiralidade.

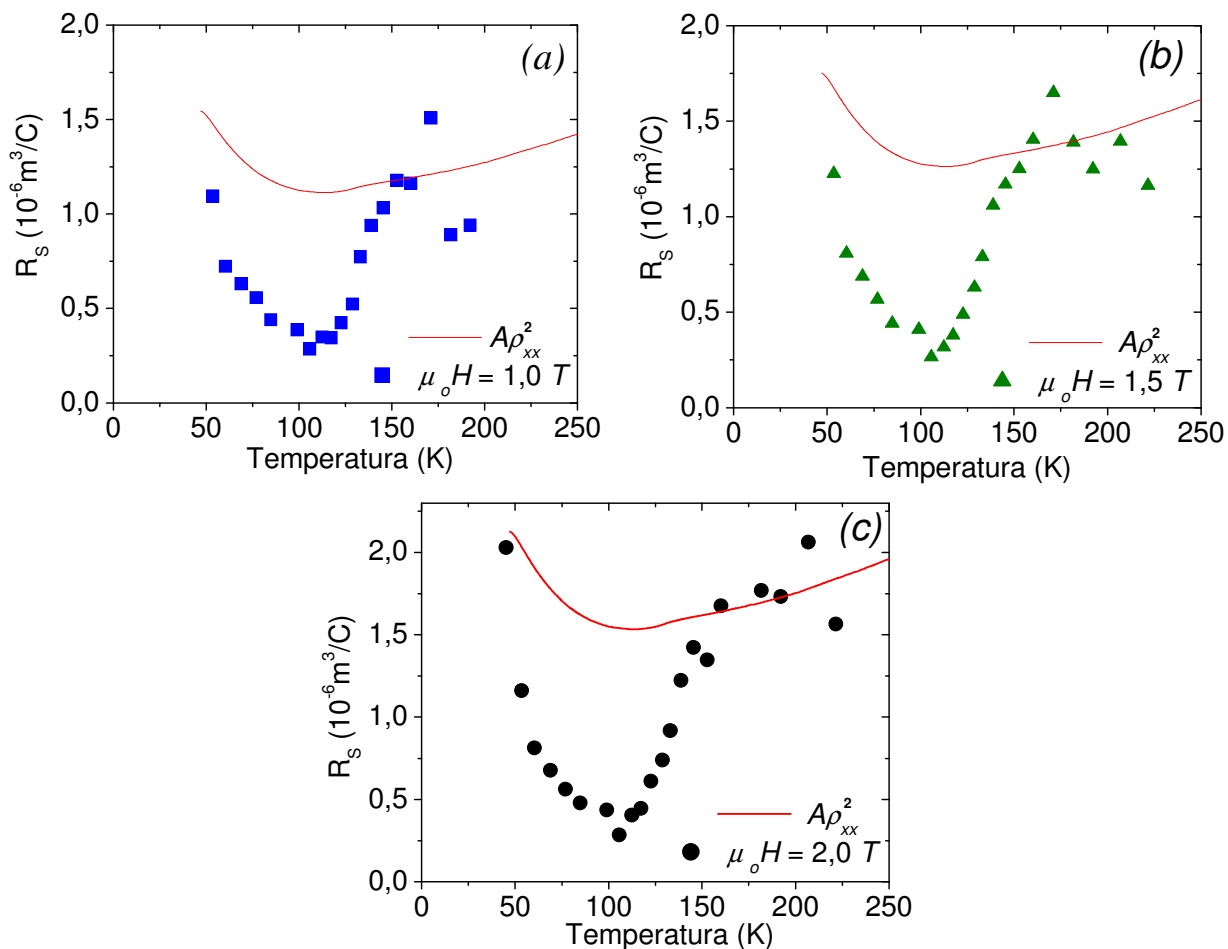


Figura 5.10 - Coeficiente Hall anômalo (estimado a partir de $R_s = \frac{R_H - R_o}{M_H}$) em função da temperatura. A linha contínua corresponde à estimativas baseadas na teoria de Karpus-Luttinger.

5.7 - A Contribuição Quiral ao Efeito Hall Anômalo do Ru(Gd)-1212

Segundo mostra a Figura 5.10, o termo necessário para descrever completamente o efeito Hall anômalo no Ru(Gd)-1212 deve ter sinal oposto a $R_s^{KL}(T)$ e sua intensidade deve aumentar fortemente quando a temperatura decresce abaixo de T_N . Na Figura 5.11 são apresentadas as previsões para o comportamento do coeficiente Hall total segundo a teoria de

Karpus-Luttinger (linha contínua). No limite das temperaturas acima de T_N , na fase paramagnética, a previsão teórica é compatível com os dados experimentais, embora haja forte dispersão dos dados na representação da Figura 5.10. Entretanto, nas proximidades de T_N e, sobretudo, abaixo dessa temperatura, é evidente a presença de uma segunda contribuição ao efeito Hall anômalo.

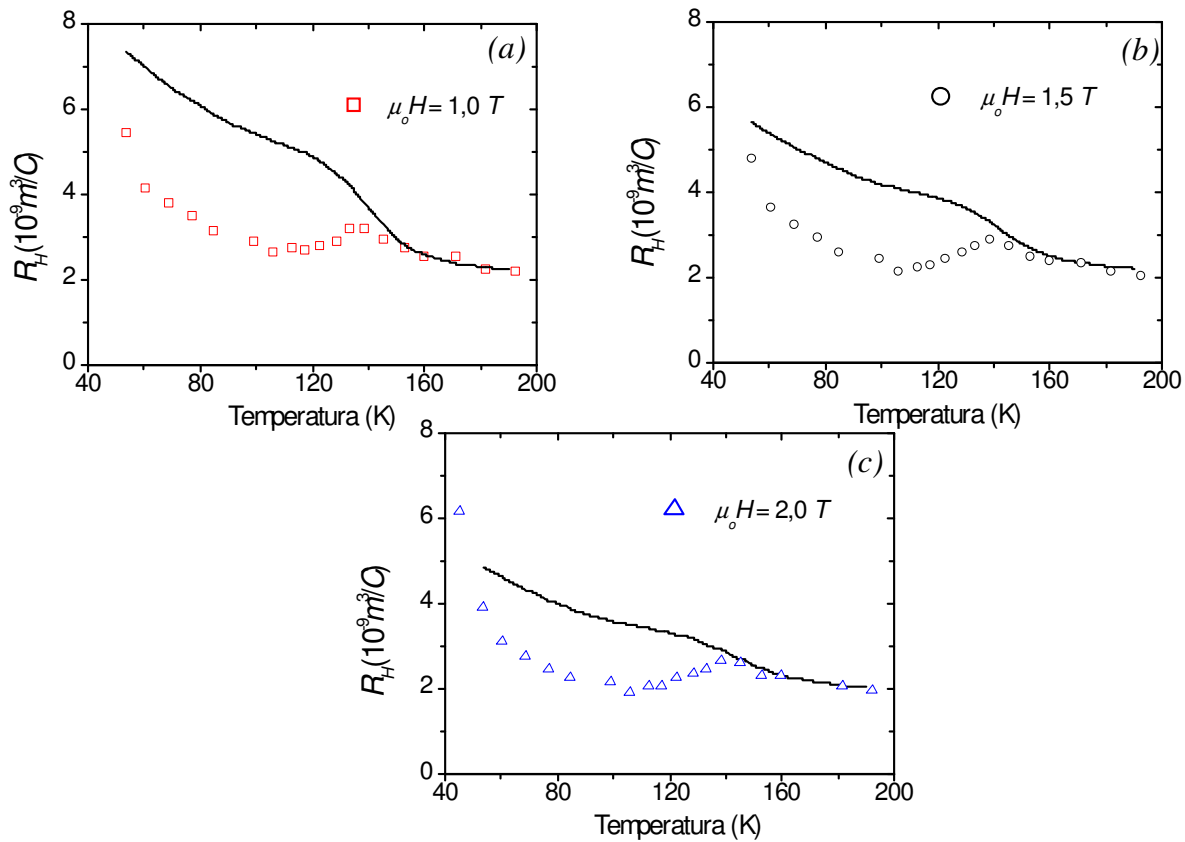


Figura 5.11 - Variação do coeficiente Hall total com a temperatura. A linha contínua corresponde a uma estimativa segundo a teoria de Karpus-Luttinger ($R_o + A\rho_{xx}^2 M_H$) para o efeito Hall em materiais magnéticos.

5.8 - O Ângulo de Hall do Ru(Gd)-1212

Na amostra estudada de RuGd-1212, a cotangente do ângulo de Hall não apresenta uma dependência quadrática com a temperatura no intervalo correspondente a todo o estado normal, como ocorre em geral com outros cupratos supercondutores. Isso era esperado, uma

vez que fase normal do RuGd-1212 ocorre uma transição magnética, e a contribuição anômala ao efeito Hall também se manifesta no comportamento do ângulo de Hall. Entretanto, conforme observado na Figura 5.12, no regime paramagnético até $T_N \sim 133$ K, a cotangente do ângulo de Hall comporta-se de forma aproximadamente linear com o quadrado da temperatura. Abaixo dessa temperatura manifestam-se os efeitos devidos ao ordenamento magnético.

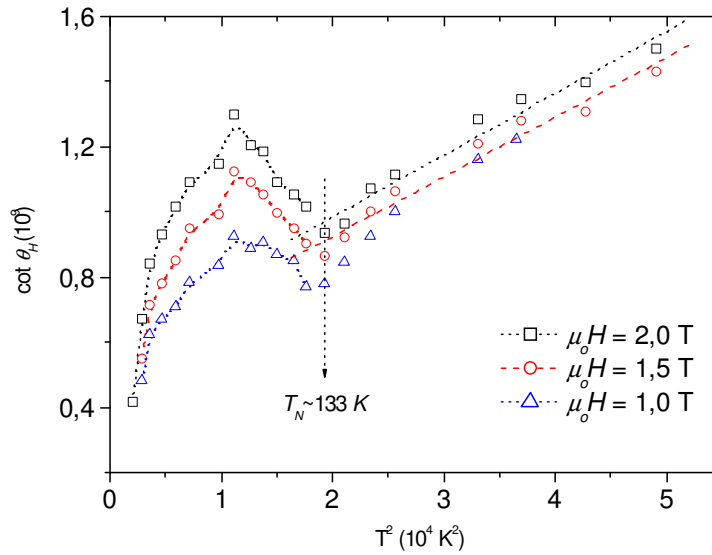


Figura 5.12 - Variação da cotangente do ângulo de Hall total com T^2 . A linha pontilhada é um guia para os olhos.

5.9 - Efeito Hall na Fase Supercondutora do Ru(Gd)-1212

A Figura 5.13 mostra a dependência do coeficiente Hall total com a temperatura na fase supercondutora para diversos campos aplicados. Os experimentos foram realizados segundo o método AC.

Observa-se uma inversão de sinal do coeficiente Hall antes de se anular em baixas temperaturas. Essa inversão de sinal foi confirmada com experimentos de efeito Hall através de medidas seguindo os procedimentos do método DC. Os resultados revelam também que a constante Hall no estado supercondutor alcança valores muito mais elevados que no estado normal. A constante Hall na fase supercondutora atinge um máximo negativo cujo valor diminui com o aumento da intensidade do campo aplicado. A temperatura em que ocorre este máximo também decresce com H .

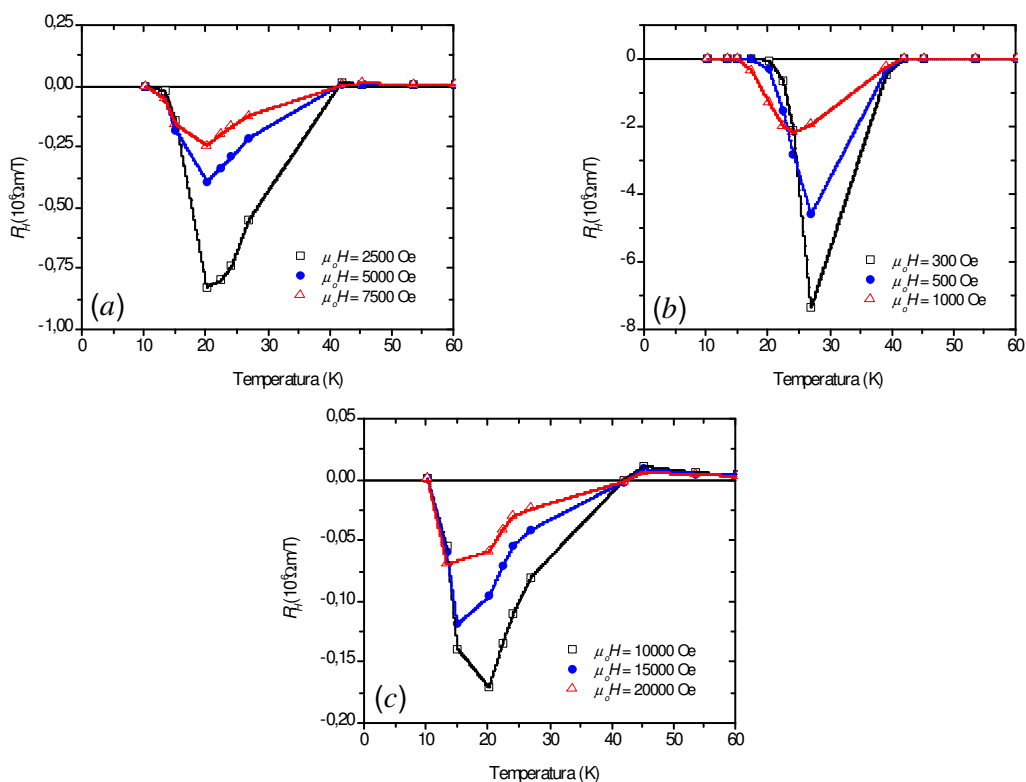


Figura 5.13 - Variação do coeficiente Hall total com a temperatura durante a transição supercondutora. A linha contínua é um guia para os olhos.

A origem da inversão do sinal Hall observada na fase supercondutora do Ru(Gd)-1212 pode estar relacionada à formação de um estado de vórtices espontâneo^[40], estabilizado abaixo de T_c , em razão do ordenamento magnético. Nesse cenário, haveria uma densidade de vórtices, maior que a induzida pelo campo aplicado, fracamente aprisionados. Esses vórtices se movem sob ação da força de Lorentz (ou Magnus) contribuindo para o efeito Hall. Entretanto, é difícil explicar a inversão de sinal segundo esse modelo.

Com base no modelo proposto por Aligia e Gusmão^[100] é possível associar a inversão do sinal Hall em sistemas policristalinos tipo Ru(Eu,Gd)-1212 à condução por elétrons nos planos de Ru-O e inter-planos. Na fase normal a condução é realizada majoritariamente por lacunas nos planos de Cu-O, resultando num coeficiente Hall positivo. Na fase supercondutora, não haveria lacunas livres nos planos de Cu-O, e os vórtices ficariam ancorados nos centros de “pinning”; resultando a contribuição não dominante por elétrons nos planos de Ru-O.

Conclusões

Neste trabalho realizou-se um estudo experimental das propriedades de transporte elétrico e da magnetização de uma amostra policristalina do supercondutor magnético $\text{RuGd}_2\text{SrCu}_2\text{O}_8$ (Ru(Gd)-1212). Em especial, a amostra foi alvo de estudos de efeito Hall, onde foi possível a obtenção da componente Hall anômala.

Em altas temperaturas, o comportamento da resistividade elétrica da amostra estudada cresce linearmente com a temperatura. Tal comportamento é característico dos óxidos supercondutores de alta temperatura crítica. Entretanto, ocorre uma alteração no comportamento resistivo do Ru(Gd)-1212 em $T_N \sim 133$ K, onde se estabelece um ordenamento magnético nos planos de RuO_2 . Abaixo dessa temperatura a resistividade mostra uma tendência a crescer com a diminuição da temperatura. Verificou-se que a transição resistiva para o estado supercondutor se desenvolve em duas etapas. Inicialmente, em aproximadamente 48 K, a supercondutividade começa a se estabelecer no interior dos grãos da amostra (transição de pareamento). Em temperaturas inferiores, ocorre a transição de coerência, onde as fases do parâmetro de ordem dos grãos individuais correlacionam-se através do acoplamento *Josephson* intergrão e adquirem ordem de longo alcance. A transição de coerência é caracterizada pelo estabelecimento de um estado de resistência nula que, na ausência de campo magnético, ocorre somente na temperatura de 28 K. A aplicação de campo magnético provoca o alargamento da transição de coerência, pois afeta fortemente o acoplamento entre grãos, dificultando a estabilização de uma corrente de percolação entre os grãos.

Os resultados de magneto-resistência entre 0 e 5 T mostram características distintas em diferentes regiões de temperatura. Na fase normal, porém abaixo de T_N , a magneto-resistência é inicialmente positiva, passa por um máximo e tende a decrescer em campos elevados. Na região da transição resistiva, a magneto-resistência cresce rapidamente em baixos campos aplicados, revelando a supressão de flutuações supercondutoras intergranulares. Em campos mais elevados, a magneto-resistência cresce de modo menos acentuado em razão da supressão da supercondutividade no interior dos grãos, e mostra uma tendência à saturação em altos campos. Somente em temperaturas da ordem de 11 K foi possível identificar um estado com corrente crítica não nula.

As medidas de efeito Hall na fase normal da amostra de RuGd-1212 mostram que, nessa região, o coeficiente Hall é positivo, indicando que o transporte é realizado por lacunas. Observa-se um máximo nas curvas do coeficiente Hall total, R_H , em função da temperatura que corresponde à transição antiferromagnética em $T_N \sim 133$ K. Pode-se notar que, abaixo dessa temperatura, nas imediações da transição supercondutora, o coeficiente Hall aumenta fortemente com a diminuição da temperatura, atingindo um valor máximo em temperaturas próximas a 50 K. Abaixo desse máximo, a intensidade do coeficiente Hall diminui abruptamente, invertendo seu sinal antes de se anular em temperaturas bem inferiores a $T_c \cong 40$ K.

O efeito Hall anômalo observado no RuGd-1212 apresenta indícios da existência de um mecanismo de transporte associado à efeitos de quiralidade. A diferença entre o comportamento do coeficiente Hall anômalo medido, $R_s(T)$, e a estimativa determinada a partir da teoria de Karpus-Luttinger, $R_s^{KL}(T)$, indica que é necessário considerar a existência de uma contribuição suplementar para descrever os dados obtidos. Essa contribuição é atribuída à quiralidade associada ao “*canting*” dos momentos magnéticos do Ru. As características desse termo estão qualitativamente de acordo com previsões teóricas^[74], bem como o efeito Hall medido em outros sistemas onde momentos magnéticos não colineares estão presentes^{[66],[76]}.

Diminuindo a temperatura através de T_c , observa-se uma mudança de sinal no coeficiente Hall. Essa inversão de sinal é característica na maioria dos cupratos supercondutores de alta temperatura crítica. A origem desse efeito não é bem compreendida. Alguns autores a tem atribuído ao movimento de vórtices de Abrikosov. No caso do Ru(Gd)-1212, onde vórtices espontâneos possivelmente estão presentes em razão da componente ferromagnética, na magnetização da amostra, este efeito seria particularmente pronunciado, como de fato é observado. Outras origens, porém, têm sido atribuídas à inversão de sinal Hall na transição supercondutora, tais como flutuações termodinâmicas, condução por duas correntes e outros. No caso do Ru(Gd)-1212 em particular, a possibilidade de formação de polarons ferromagnéticos implica na ocorrência de condução por elétrons nos planos de Ru-O₂ e entre esses planos. Se tal corrente dominar em temperaturas imediatamente inferiores a T_c , uma inversão do sinal do coeficiente Hall seria esperada.

Referências

- [1] GINZBURG, V. L. Ferromagnetic superconductors. *Soviet Physics JETP*, New York, v. 4, n. 2, p. 153-160, Mar. 1957.
- [2] ABRIKOSOV, A. A.; GORKOV, L. P. Contribution to the theory of superconductivity alloys with paramagnetic impurities. *Soviet Physics JETP*, New York, v. 12, n. 6, p. 1243-1253, June 1961.
- [3] MAPLE, M. P. The superconducting transition temperature of $\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x\text{Al}_2$. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 26, n. 10, p. 513-514, Apr. 1968.
- [4] MATTHIAS, B. T.; CORENZWIT, E.; VANDERBER, J. M.; BARZ, H. E. High superconducting transition temperatures of new rare earth ternary borides. *Proceedings of the National Academy of Science of the United States of America*, Washington, v. 74, n. 4, p. 1334-1335, Apr. 1977.
- [5] FERTIG, W. A.; JOHNSTON, D. C.; DELONG, L. E.; McCALLUM, R.W.; MAPLE, M. P.; MATTHIAS, B. T. Destruction of superconductivity at the onset of long-range magnetic order in the compound ErRh_4B_4 . *Physical Review Letters*, New York, v. 38, n. 17, p. 987-990, Apr. 1977.
- [6] EISAKI, H.; TAKAGI, H.; CAVA, R. J.; BATLOGG, B.; KRAJEWSKI, J. J.; PECK Jr., W. F.; MIZUHASHI, K.; LEE, J. O.; UCHIDA, S. Competition between magnetism and superconductivity in rare-earth nickel boride carbides. *Physical Review B*, Woodbury, v. 50, n. 1, p. 647-650, July 1994.
- [7] CHEVREL, R.; SERGENT, M.; PRIGENT, J. Sur de nouvelles phases sulfurées ternaires du molybdène. *Journal of Solid State Chemistry*, New York, v. 3, n. 4, p. 515-519, Nov. 1971.
- [8] ESPELUND, A. W. Some properties of a ternary sulfide Mo-Sn-S. *Acta Chemica Scandinavica*, Copenhagen, v. 21, n. 3, p. 839-841, 1967.

- [9] MATTHIAS, B. T.; MAREZIO, M.; CORENZWIT, E.; COOPER, A. S.; BARZ, H. E. High-temperature superconductors, the first ternary system. *Science*, Washington, v. 175, p. 1465-1466, Mar. 1972.
- [10] FISCHER, Ø.; ODERMATT, R.; BONGI, G.; JONES, H.; CHEVREL, R.; SERGENT, M. On the superconductivity in the ternary molybdenum sulfides. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 45, n. 2, p. 87-88, Sept. 1973.
- [11] ODERMATT, R.; FISCHER, Ø.; JONES, H.; BONGI, G. Upper critical fields of some ternary molybdenum sulphides. *Journal of Physics C*, London, v. 7, n. 1, p. L13-L15, Jan. 1974.
- [12] SERGENT, M.; CHEVREL, R. Sur de nouvelles phases sélénées ternaires du molybdène. *Journal Solid State Chemistry*, New York, v. 6, n. 3, p. 433-437, Mar. 1973.
- [13] OPALOVSKI, A. A.; FEDOROV, V. E.; LOBKOV, E. U. Reaction of molybdenum, tungsten and rhenium selenides with bromine gas. *Zhurnal Neorganicheskoi Khimii*, v. 16, n. 6, p. 1494, 1971.
- [14] SPIESSER, M.; MARCHAL, C; ROUXEL, J. Sur des phases molybdène-sélénium non stoechiométriques. *Comptes Rendus Hebdomadaires des Séances de l'Académie des Sciences Serie C*, Paris, v. 266, n. 22, p. 1583-1586, mai 1968.
- [15] FISCHER, Ø.; TREYVAUD, A.; CHEVREL, R.; SERGENT, M. Superconductivity in the $\text{Re}_x\text{Mo}_6\text{S}_8$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 17, n. 6, p. 721-724, Sept. 1975.
- [16] ROTH, S.; IBEL, K.; JUST, W. Neutron scattering experiment on the coexistence of superconductivity and ferromagnetism. *Journal of Physics C*, London, v. 6, n. 23, p. 3465-3468, Nov. 1973.
- [17] ROTH, S.; IBEL, K.; JUST, W. Superconductivity and correlation of magnetic-moments in $\text{Ce}_{1-x}\text{Tb}_x\text{Ru}_2$. *Journal of Applied Crystallography*, Copenhagen, v. 7, p. 230-232, Apr. 1974.

- [18] ROTH, S. Coexistence of superconductivity and magnetic order. *Applied Physics*, Berlin, v. 15, n. 1, p. 1-11, Jan. 1978.
- [19] JOHNSTON, D. C.; SHELTON, R. N. Magnetic-properties of $\text{Re}_x\text{Mo}_6\text{Se}_8$ compounds between 0.7 and 295K. *Journal of Low Temperature Physics*, New York, v. 26, n. 3/4, p. 561-572, 1977.
- [20] McCALLUM, R. W.; JOHNSTON, D. C.; SHELTON, R. N.; MAPLE, M. B. Phase-transition in the superconducting state in Gd-rich pseudoternary compounds $(\text{La}_{1-x}\text{Gd}_x)_{1.0}\text{Mo}_6\text{Se}_8$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 24, n. 5, p. 391-395, Nov. 1977.
- [21] ISHIKAWA, M.; FISCHER, Ø. Destruction of superconductivity by magnetic ordering in $\text{Ho}_{1.2}\text{Mo}_6\text{S}_8$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 23, n. 1, p. 37-39, July 1977.
- [22] HAMAKER, H. C.; WOOLF, L. D.; MacKAY, H. B.; FISK, Z.; MAPLE, M. B. Possible observation of the coexistence of superconductivity and long-range magnetic order in NdRh_4B_4 . *Solid State Communications*, Oxford, v. 31, n. 3, p. 139-144, July 1979.
- [23] MATTHIAS, B. T.; CORENZWIT, E.; VANDENBERG, J.; BARZ, H. E. High superconducting transition-temperatures of new rare-earth ternary borides. *Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America*, Washington, v. 74, n. 4, p. 1334-1335, 1977.
- [24] SHELTON, R.N.; McCALLUM, R.W.; ADRIAN, H. Superconductivity in rare earth molybdenum selenides. *Physics Letters A*, Amsterdam, v. 56, n. 3, p.213-214, Mar. 1976.
- [25] IWASAKI, H.; IKEBE, M.; MUTO, Y. Superconductivity and magnetism of a body-centered tetragonal ErRh_4B_4 single crystal. I. Metamagnetism under fourfold magnetism anisotropy. *Physical Review B*, Woodbury, v. 33, n. 7, p. 4669-4679, Apr. 1986.
- [26] CAVA, R. J.; TAKAGI, H.; ZANDBERGEN, H. W.; KRAJEWSKI, J. J.; PECK Jr., W. F.; SIEGRIST, T.; BATLOGG, B.; VAN DOVER, R. B.; FELDER, R. J.;

- MIZUHASHI, K.; LEE, J. O.; EISAKI, H.; UCHIDA, S. Superconductivity in the quaternary intermetallic compounds. *Nature*, London, v. 367, n. 6460, p. 252-253, Jan. 1994.
- [27] WU, M. K. Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 9, p. 908-910, Mar. 1987.
- [28] FELNER, I.; ASAF, U.; LEVI, Y.; MILLO, O. Coexistence of magnetism and superconductivity in $R_{1.4}Ce_{0.6}RuSr_2Cu_2O_{10-\gamma}$ (R=Eu and Gd). *Physical Review B*, Woodbury, v. 55, n. 6, p. R3374, Feb. 1997.
- [29] KADOWAKI, K.; VANDERMEULEN, H. P.; KLAASSE, J. C. P.; VANSPRANG, M.; KOSTER, J. Q. A.; ROELAND, L. W.; DOBOER, F. R.; HUANG, Y. K.; MENOVSKY, A. A.; FRANSE, J. J. M. Coexistence of magnetism and high-Tc superconductivity in $GdBa_2Cu_3O_7$. *Physica B*, Amsterdam, v. 145, n. 3, p. 260-266, Aug. 1987.
- [30] GUO-MENG, Z.; RUI-LAN, W.; ZI-WEN, D. Magnetism and superconductivity in $Ba_2GdCu_3O_{7-y}$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 65, n. 11, p. 1395-1398, Mar. 1988.
- [31] FELNER, I.; YARON, U.; ASAF, U.; KRONER, T.; BREIT, V. Oxygen dependence of the magnetic-anomalies in $Pr_{1.5}Ce_{0.5}Sr_2NbCu_2O_{10}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 49, n. 10, p. 6903-6912, Mar. 1994.
- [32] FELNER, I.; SPRINZAK, D.; ASAF, U.; KRONER, T. Crossover from two-dimensional to three-dimensional magnetic structure in $Pr_{1.5}Ce_{0.5}Sr_2GaCu_2O_9$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 51, n. 5, p. 3120-3127, Feb. 1995.
- [33] BAUERNFEIND, L.; WIDDER, W.; BRAUN, H. F. Ruthenium-based layered cuprates $RuSr_2LnCu_2O_8$ and $RuSr_2(Ln_{1+x}Ce_{1-x})Cu_2O_{10}$ (Ln = Sm, Eu, and Gd) *Physica C*, Amsterdam, v. 254, n. 1/2, p. 151-158, Nov. 1995.
- [34] BERNHARD, C.; TALLON, J. L.; BRÜCHER, E.; KREMER, R. K. Evidence for a bulk Meissner state in the ferromagnetic superconductor $RuSr_2GdCu_2O_8$ from dc

- magnetization. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 22, p. R14960-R14963, June 2000.
- [35] BAUERNFEIND, L.; WIDDER, W.; BRAUN, H. F. Superconductor consisting of CuO_2 and RuO_2 layers. *Journal of Low Temperature Physics*, New York, v. 105, n. 5/6, p. 1605-1610, Dec. 1996.
- [36] TALLON, J.; BERNHARD, C.; BOWDEN, M.; GILBERD, P.; STOTO, T.; PRINGLE, D. Coexisting ferromagnetism and superconductivity in hybrid rutheno-cuprate superconductors. *IEEE Transactions on Applied Superconductivity*, New York, v. 9, n. 2, p. 1696-1699, June 1999.
- [37] BERNHARD, C.; TALLON, J. L.; NIEDERMAYER, C.; BLASIUS, T.; GOLNIK, A.; BRÜCHER, E.; KREMER, R. K.; NOAKS, D. R.; STRONACH, C. E.; ASNALDO, E. J. Coexistence of ferromagnetism and superconductivity in the hybrid ruthenate-cuprate compound $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ studied by muon spin rotation and dc magnetization. *Physical Review B*, Melville, v. 59, n. 21, p. 14099-14107, June 1999.
- [38] PRINGLE, D.; TALLON, J.; WALKER, B. G.; TRODAHL, H. J. Oxygen isotope effects on the critical and Curie temperatures and Raman modes in the ferromagnetic superconductor $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. *Physical Review B*, Melville, v. 59, n. 18, p. R11679-R11682, May 1999.
- [39] HADJIEV, V. G.; FAINSTEIN, A.; ETCHEGOIN, P.; TRODAHL, H. J.; BERNHARD, C.; CARDONA, M.; TALLON, J. L. Raman scattering from magnetic excitations in the ferromagnetic superconductor $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_{8-\delta}$. *Physica Status Solidi B*, Berlin, v. 211, n. 2, p. R5-R6, Feb. 1999.
- [40] BERNHARD, C.; TALLON, J. L.; BRÜCHER, E.; KREMER, R. K. Evidence for a bulk Meissner state in the ferromagnetic superconductor $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ from dc magnetization. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 22, p. R14960-R14963, June 2000.

- [41] FELNER, I.; ASAF, U.; REICH, S.; TSABBA, Y. Magnetic properties of $\text{RSr}_2\text{RuCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (R = Eu and Gd). *Physica C*, Amsterdam, v. 31, n. 3/4, p. 163-171, Jan. 1999.
- [42] KAIBIN, T.; YITAI, Q.; YADUN, Z.; LI, Y.; ZUYAO, C.; YUHENG, Z. Synthesis and characterization of a new layered superconducting cuprate: $\text{RuSr}_2(\text{Gd,Ce})_2\text{Cu}_2\text{O}_z$. *Physica C*, Amsterdam, v. 259, n. 1/2, p. 168-172, Mar. 1996.
- [43] McLAUGHLIN, A. C.; ZHOU, W.; ATTIELD, J. P.; FITCH, A. N.; TALLON, J. L. Structure and microstructure of ferromagnetic superconductor $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. *Physical Review B*, Melville, v. 60, n. 10, p. 7512-7516, Sept. 1999.
- [44] CHMAISSEN, O.; JORGENSEN, J. D.; SHAKED, H.; DOLLAR, P.; TALLON, J. L. Crystal and magnetic structure of ferromagnetic superconducting $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 9, p. 6401-6407, Mar. 2000.
- [45] PICKETT, W. E.; WEHT, R.; SHICK, A. B. Superconductivity in ferromagnetic $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. *Physical Review Letters*, Melville, v. 83, n. 18, p. 3713-3716, Nov. 1999.
- [46] AWANA, V. P. S. Magneto-superconductivity of rutheno-cuprates. Disponível em: <<http://arxiv.org/abs/cond-mat/0407799>>. Acesso em: 10 dez. 2005.
- [47] HROVAT, M.; BENČAN, A.; SAMARDŽIJA, Z.; HOLC, J.; BRGLEZ, A.; MIHAILOVIČ, D. Investigation of the secondary phase formed during the synthesis of the $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ compound. *Journal of Materials Science Letters*, Dordrecht, v. 19, p. 919-920, 2000.
- [48] NAKAMURA, K.; PARK, K. T.; FREEMAN, A. J.; JORGENSEN, J. D. Magnetic and electronic structures of superconducting $\text{RuSr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$. *Physical Review B*, Melville, v. 63, n. 2, 024507 6p., Jan. 2001.
- [49] TOKUNAGA, Y.; KOTEGAWA, H.; ISHIDA, K.; KITAOKA, Y.; TAKAGIWA, H.; AKIMITSU, J. NMR evidence for coexistence of superconductivity and ferromagnetic component in magnetic superconductor $\text{RuSr}_2\text{YCu}_2\text{O}_8$: $^{99,101}\text{Ru}$ and

- ⁶³Cu NMR. *Physical Review Letters*, Melville, v. 86, n. 25, p. 5767-5770, June 2001.
- [50] TALLON, J. L.; BERNHARD, C.; LORAM, J. W. Thermodynamic, transport and magnetic properties of the ferromagnetic superconductor RuSr₂GdCu₂O₈ and related compounds. *Journal of Low Temperatures*, New York, v. 117, n. 3/4, p. 823-830, 1999.
- [51] LYNN, J. W.; KEIMER, B.; ULRICH, C.; BERNHARD, C.; TALLON, J. L. Antiferromagnetic ordering of Ru and Gd in superconducting RuSr₂GdCu₂O₈. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 22, p. R14964-R14967, June 2000.
- [52] YONG, Z.; QIRUI, Z.; WEIYAN, K.; JANSHEG, X.; ZHENHUI, H.; SHIFANG, S.; ZUYAO, C.; YITAI, Q.; GUOQIANG, P. Hall effect in single phase Ba₂YCu₃O_{7-δ}. *Solid State Communications*, Oxford, v. 64, n. 6, p. 885-888, Nov. 1987.
- [53] JORGENSEN, J. D.; CHMAISSEN, O.; SHAKED, H.; SHORT, S.; KLAMUT, P. W.; DABROWSKI, B.; TALLON, J. L. Magnetic ordering in the superconducting weak ferromagnets RuSr₂GdCu₂O₈ and RuSr₂EuCu₂O₈. *Physical Review B*, Melville, v. 63, n. 5, 054440 5p., Feb. 2001.
- [54] POŽEC, M.; DULČIĆ, A.; PAAR, D.; HAMZIĆ, A.; BASLETIĆ, M.; TAFRA, E.; WILLIAMS, G. V. M.; KRÄMER, S. Decoupled CuO₂ and RuO₂ layers in superconducting and magnetically ordered RuSr₂GdCu₂O₈. *Physical Review B*, Melville, v. 65, n. 17, p. 174514-174524, May 2002.
- [55] SEGAWA, K.; ANDO, A. Transport anomalies and the role of pseudogap in the 60K of YBa₂Cu₃O_{7-y}. *Physical Review Letters*, Melville, v. 86, n. 21, p. 4907-4910, May 2001.
- [56] KLEIN, L.; REINER, J. R.; GEBALLE, T. H.; BEASLEY, M. R.; KAPITULNIK, A. Extraordinary Hall effect in SrRuO₃. *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 12, p. R7842-R7845, Mar. 2000.
- [57] KLAMUT, P. W.; DABROWSKY, B.; MINI, S. M.; KOLESNIK, S.; MAXWELL, M.; SHENGELAYA, A.; KHASANOV, R.; KELLER, H.; SAVIC,

- I.; SULKOWSKI, C.; MATUSIAK, M.; WISNIEWSKI, A.; PUZNIAK, R.; FITA, I. On the magnetic and superconducting properties of $\text{Ru}_{1-x}\text{Sr}_2\text{RECu}_{2+x}\text{O}_{8-\delta}$ (RE = Gd, Eu) compounds. *Journal of Applied Physics*, Melville, v. 91, n. 10, p. 7134-7136, May 2002.
- [58] KARPLUS, R.; LUTTINGER, J. M. Hall effect in ferromagnetics. *Physical Review*, New York, v. 95, n. 5, p. 1154-1160, Sept. 1954.
- [59] SMIT, J. The spontaneous Hall effect in ferromagnetics I. *Physica*, Amsterdam, v. 21, n. 11, p. 877-887, Aug. 1955.
- [60] BERGMANN, G. The anomalous Hall effect. *Physics Today*, New York, v. 32, n. 8, p. 25-30, Aug. 1979.
- [61] BERGER, L. Side-jump mechanism for the Hall effect of ferromagnets. *Physical Review B*, New York, v. 2, n. 11, p. 4559-4566, Dec. 1970.
- [62] RUDERMAN, M. A.; KITTEL, C. Indirect exchange coupling of nuclear magnetic moments by conduction electrons. *Physical Review*, New York, v. 96, n. 1, p. 99-102, Oct. 1954.
- [63] YOSIDA, K. Magnetic properties of Cu-Mn alloys. *Physical Review*, New York, v. 106, n. 5, p. 893-898, June 1957.
- [64] DZIALOSHINSKII, I. On the stability of the phase boundaries between normal and superconducting states. *Soviet Physics JETP*, New York, v. 3, n. 6, p. 980-981, Jan. 1957.
- [65] MORIYA, T. New mechanism of anisotropic superexchange interaction. *Physical Review Letters*, New York, v. 4, n. 5, p. 228-230, Mar. 1960.
- [66] TAGUCHI, Y.; OOHARA, Y.; YOSHIZAWA, H.; NAGAOSA, N.; TOKURA, Y. Spin chirality, Berry phase, and anomalous Hall effect in a frustrated ferromagnet. *Science*, Washington, v. 291, p. 2573-2576, Mar. 2001.
- [67] VILLAIN, J. Two-level systems in a spin-glass model. I. General formalism and two-dimensional model. *Journal of Physics C*, London, v. 10, n. 23, p. 4793-4803, Dec. 1977.

- [68] KAWAMURA, H. Chiral ordering in Heisenberg spin glasses in two and three dimensions. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 68, n. 25, p. 3785-3788, June 1992.
- [69] KAWAMURA, H. Dynamical simulation of spin-glass and chiral-glass orderings in three-dimensional Heisenberg spin glasses. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 80, n. 24, p. 5421-5424, June 1998.
- [70] HUKUSHIMA, K.; KAWAMURA, H. Chiral-glass transition and replica symmetry breaking of a three-dimensional Heisenberg spin glass. *Physical Review E*, Melville, v. 61, n. 2, p. R1008-R1011, Feb. 2000.
- [71] IMAGAWA, D.; KAWAMURA, H. Replica symmetry breaking transition of the weakly anisotropic Heisenberg spin glasses in magnetic fields. *Physical Review Letters*, Melville, v. 92, n. 7, 772041 4p., Feb. 2004.
- [72] NAKAMURA, T.; ENDOH, S.-I. A spin-glass and chiral-glass transition in a $\pm J$ Heisenberg spin-glass model in three dimensions. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 71, n. 9, p. 2113-2116, Sept. 2002.
- [73] LEE, L. W.; YOUNG, A. P. Single spin and chiral glass transition in vector spin glasses in three dimensions. *Physical Review Letters*, Melville, v. 90, n. 22, 2272031 4p. June 2003.
- [74] TATARA, G.; KAWAMURA, H. Chirality-driven anomalous Hall effect in weak coupling regime. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 71, n. 11, p. 2613-2116, Nov. 2002.
- [75] FABRIS, F. W. *Efeitos de ordenamento chiral em supercondutores e sistemas magnéticos desordenados*. 2004. 167 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2004.
- [76] PUREUR, P.; FABRIS, F. W.; SCHAF, J.; CAMPBELL, I. A. Chiral susceptibility in canonical spin glass and re-entrant alloys from Hall effect measurements. *Europhysics Letters*, Paris, v. 67, n. 1, p. 123-129. Apr. 2004.

- [77] KAWAMURA, H. Anomalous Hall effect as a probe of the chiral order in spin glasses. *Physical Review Letters*, Melville, v. 90, n. 4, 472021 4p., Jan. 2003.
- [78] BERRY, M. V. Quantal phase factors accompanying adiabatic changes. *Proceedings of Royal Society of London A*, London, v. 392, n. 1802, p. 45-57, Mar. 1984.
- [79] SUNDARAN, G.; NIU, Q. Wave-packet dynamics in slowly perturbed crystals: Gradient corrections and Berry-phase effects. *Physical Review B*, Melville, v. 59, n. 23, p. 14915-14925, June 1999.
- [80] ONODA, M.; NAGAOSA, J. Topological nature of anomalous Hall effect in ferromagnets. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 71, n. 1, p. 19-22. Jan. 2002.
- [81] YE, J.; KIM, Y. B.; MILLIS, A. J.; SHRAIMAN, B. I.; MAJUMDAR, P.; TEŠANOVIĆ, Z. Berry phase theory of the anomalous Hall effect: application to colossal magnetoresistance manganites. *Physical Review B*, Melville, v. 83, n. 18, p. 3373-3740, Nov. 1999.
- [82] MATL, P.; ONG, N. P.; YAN, Y. F.; LI, Y. Q.; STUDEBAKER, D.; BAUM, T.; DOUBININA, G. Hall effect of the colossal magneto-resistance manganite $\text{La}_{1-x}\text{Ca}_x\text{MnO}_3$. *Physical Review B*. Woodbury, v. 57, n. 17, p. 10248-10251, May 1998.
- [83] CHUN, S. H.; SALAMON, M. B.; LYANDA-GELLER, Y.; GOLDBART, P. D.; HAN, P. D. Magnetotransport in manganites and the role of quantal phases: theory and experiment. *Physical Review Letters*, Melville, v. 84, n. 4, p. 757-760, Jan. 2000.
- [84] IOFFE, L. B.; KALMEYER, V.; WEIGMANN, P. B. Hall coefficient of the doped Mott insulator: a signature of parity violation. *Physical Review B*, Woodbury, v. 43, n. 1, p. 1219-1222, Jan. 1991.
- [85] IOFFE, L. B.; LESOVIK, G. B.; MILLIS, A. J. Hall voltage fluctuations as a diagnostic of internal magnetic field fluctuations in high temperature

- superconductors and the half-filled Landau level. *Physical Review B*, Woodbury, v. 77, n. 8, p. 1584-1587, Aug. 1996.
- [86] YIE, Y. Transport properties of high- T_c cuprates. In: GINSBERG, D. M. (Ed.). *Physical properties of high temperature superconductor*. Singapore: World Scientific, 1992. v. 3, p. 285-362.
- [87] MOSHCHALKOV, V. V. Transport phenomena and magnetic susceptibility of highly correlated charge carriers in heavy fermion and high- T_c compound. *Physica B*, Amsterdam. v. 163, n. 1/3, p. 59-62, Apr. 1990.
- [88] HARRIS, J. M.; WU, H.; ONG, N. P.; MENG, R. L.; CHU, C. W. Hall-effect measurements of $\text{HgBa}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{6+\delta}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 50, n. 5, p. 3246-3249, Aug. 1994.
- [89] ANDERSON, P. W. Hall effect in the two-dimensional Luttinger liquid. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 15, p. 2092-2094, Oct. 1991.
- [90] USUI, M.; OGASAWARA, T.; YASUKOCHI, K.; TOMODA, S. Magnetization, flux-flow, resistance and Hall effect in superconducting vanadium. *Journal of the Physical Society of Japan*, Tokyo, v. 27, n. 3, p. 574-590, Sept. 1969.
- [91] ROJAS, J. R. *Flutuações nas propriedades de magneto-transporte de supercondutores de alta temperatura crítica*. 1999. 192 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1999.
- [92] LANG, W.; GÖB, W.; PEDARNING, J. D.; RÖSSLER, R.; BÄUERLE, D. Anomalous Hall effect and vortex pinning in the high- T_c superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 364/365, p. 518-521, Nov. 2001.
- [93] GALFEY, M.; ZIRNGIEBL, E. Hall effect of bulk $\text{YBa}_2\text{Cu}_2\text{O}_{7-x}$. *Solid State Communications*, Oxford, v. 68, n. 10, p. 927-933, Oct. 1988.
- [94] FREIMUTH, A.; HOHN, C.; GALFFY, M. Sign change of the flux flow Hall resistance in high- T_c superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 44, n. 18, p. 10396-10399, Nov. 1991.

- [95] HAGEN, S. J.; SMITH, A. W.; RAJESWARI, M.; PENG, J. L.; LI, Z. Y.; GREENE, R. L.; MAO, S. N.; XI, X. X.; BHATTACHARYA, S.; LI, QI; LOBB, C. J. Anomalous flux-flow Hall effect: $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ and evidence for vortex dynamics. *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 2, p. 1064-1068, Jan. 1993.
- [96] RICE, J. P.; RIGAKIS, N.; GINSBERG, D. M.; MOCHEL, J. M. Sign reversal of the Hall effect below T_c in untwined single-crystal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. *Physical Review B*, Woodbury, v. 46, n. 17, p. 11050-11055, Nov. 1992.
- [97] BARDEEN, J.; STEPHEN, M. J. Theory of motion of vortices in superconductors. *Physical Review*, New York, v. 140, n. 4A, p. 1197-1207, Nov. 1965.
- [98] NOZIERES, P.; VINEN, W. F. Motion of flux lines in type-II superconductors. *Philosophical Magazine*, London, v. 14, n. 130, p. 667-688. Oct. 1966.
- [99] ABEGAOKAR, V.; HALPERIN, B. I.; NELSON, D. R.; SIGGIA, E. D. Dynamic of super-fluid films. *Physical Review B*, New York, v. 21, n. 5, p. 1806-1826, Mar. 1980.
- [100] ALIGIA, A. A.; GUSMÃO, M. A. Magnetic and orbital ordering of RuO_2 planes in the $\text{RuSr}_2(\text{Eu,Gd})\text{Cu}_2\text{O}_8$. *Physical Review B*, Melville, v. 70, n. 17, 054403 7p., Aug. 2004.
- [101] Andrade, S.; Fonseca, F. C.; Jardim, R. F.; Bossi, I.; Torikachvili, M. S.; Lacerda, A. H.; Bem-Dor, L. Superconductivity in magnetically ordered $\text{Ru}_{1-x}\text{Ir}_x\text{Sr}_2\text{GdCu}_2\text{O}_8$ compounds. *Brazilian journal of Physics*, São Paulo, v. 33, n. 4, p. 686-689. Dec. 2003.
- [102] COSTA, R. M. *Flutuações na magnetocondutividade de supercondutores de alta temperatura crítica*. 1998. 149 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [103] MALOZEMOFF, A. P. Macroscopic magnetic properties of high temperature superconductors. In: GINSBERG, D. M. (Ed.). *Physical properties of high temperature superconductors*. Singapore: World Scientific, 1989. v. 1, p. 71-150.

- [104] COSTA, R. M. *Flutuações na condutividade do YBaCuO na presença de campo magnético*. 1993. 94 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1993.
- [105] PUREUR NETO, P. *Supercondutividade e materiais supercondutores*. Porto Alegre: Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 2004. v. 1.
- [106] SEBEK, J.; STEHNO, J.; NEKVASIL, V.; SAFRATA, S.; HAVELA, L.; SVOBODA, P.; VALVODA, V.; SECHOVSKY, V.; SRAMEK, J.; HRUSKA, K. Magnetic properties of REBa₂Cu₃O₇ (RE = Y, Nd, Sm, Eu, Gd, Dy, Ho). *Physica C*, Amsterdam, v. 153/155, p. 186-187. June 1988.
- [107] DUNLAP, B. D.; SLASKI, M.; HINKS, D. G.; SODERHOLM, L.; BENO, M.; ZHANG, K.; SEGRE, C.; CRABTREE, G. W.; KWOK, W. K.; MALIK, S. K.; SCHULLER, I. K.; JORGENSEN, J. D.; SUNGAILA, Z. Electronic and magnetic properties of rare-earth ions in ReBa₂Cu₃O_{7-δ} (Re = Dy, Ho, Er). *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, Amsterdam, v. 68, n. 2, p. 139-144, Aug. 1987.
- [108] FABRIS, F. W. *Transição resistiva e irreversibilidades magnéticas do supercondutor granular DyBa₂Cu₃O_{7-δ}*. 1998. 102 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [109] XIAO, D.; SHI, J.; NIU, Q. Berry phase correction to electron density of states in solids. *Physical Review Letters*, Melville, v. 95, n. 13, 137204 4p., Sept. 2005.
- [110] PUREUR, P.; FABRIS, F. W.; SCHAF, J.; VIEIRA, V. N.; CAMPBELL, I. A. Chiral anomalous Hall effect in reentrant AuFe alloys. *Physical Review B*, Melville, v. 74, n. 21, 214201 3p., Dec. 2006.
- [111] JUNGWIRTH, T.; NIU, Q.; MACDONALD, A. H. Anomalous Hall effect in ferromagnetic semiconductors. *Physical Review Letters*, Melville, v. 88, n. 20, 207208 4p., May 2002.

- [112] ONODA, S.; NAGAOSA, N. Spin chirality fluctuations and anomalous Hall effect in itinerant ferromagnets. *Physical Review Letters*, Melville, v. 90, n. 19, 196602 4p., May 2003.
- [113] FANG, Z.; NAGAOSA, N.; TAKAHASHI, K. S.; ASAMITSU, A.; MATHIEU, R.; OGASAWARA, T.; YAMADA, H.; KAWASAKI, M.; TOKURA, Y.; TERAOKA, K. The anomalous Hall effect and magnetic monopoles in momentum space. *Science*, Washington, v. 302, p. 92-95, Oct. 2003.
- [114] YAO, Y.; KLEINMAN, L.; MacDONALD, A. H.; SINOVA, J.; JUNGWIRTH, T.; WANG, D. S.; WANG, E.; NIU, Q. First principles calculation of anomalous Hall conductivity in ferromagnetic bcc Fe. *Physical Review Letters*, Melville, v. 92, n. 3, 037204 4p., Jan. 2004.
- [115] SHENG, L.; SHENG, D. N.; TING, C. S.; HALDANE, F. D. M. Nondissipative spin Hall effect via quantized edge transport. *Physical Review Letters*, Melville, v. 95, 136602 4p., Sept. 2005.
- [116] ZHOU, H.; SEAMAN, C. L.; DALICHAOUCH, Y.; LEE, B. W.; YANG, K. N.; HAKE, R. R.; MAPLE, M. B.; GUERTIN, R. P.; KURIC, M. V. Normal and superconducting state magnetic properties of $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ compounds. *Physica C*, Amsterdam, v. 152, n. 4, p. 321-328, June 1988.
- [117] SAXENA, S. S.; AGARWAL, P.; AHILAN, K.; GROSCHE, F. M.; HASELWIMMER, R. K. W.; STEINER, M. J.; PUGH, E.; WALKER, I. R.; JULIAN, S. R.; MONTHOUX, P.; LONZARICH, G. G.; HUXLEY, A.; SHEIKIN, I.; BRAITHWAITE, D.; FLOUQUET, J. Superconductivity on the border of itinerant-electron ferromagnetism in UGe_2 . *Nature*, London, v. 406, p. 587-592, Aug. 2000.
- [118] ISHIHARA, S.; INOUE, J.; MAEKAWA, S. Effective Hamiltonian in manganites: study of the orbital and spin structures. *Physical Review B*, Woodbury, v. 55, n. 13, p. 8280-8286, Apr. 1997.

- [119] FEINER, L. F.; OLEŚ, A. M.; ZAADEM, A. M. Quantum disorder versus order-out-of-disorder in the Kugel-Khomskii model. *Journal of Physics: Condensed Matter, Bristol*, v. 10, n. 32, p. L555-L561, Aug. 1998.
- [120] FREIMUTH, A.; HOHN, C.; GALFFY, M. Sign change of the flux-flow Hall resistance in the high- T_c superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 44, n. 18, p. 10396-10399, Nov. 1991.
- [121] HAGEN, S. J.; LOBB, C. J.; GREENE, R. L. Anomalous Hall effect in the superconductors near their critical temperatures. *Physical Review B*, Woodbury, v. 41, n. 16, p. 11630-11633, June 1990.
- [122] HAGEN, S. J.; SMITH, A. W.; RAJESWARI, M. Anomalous flux-flow Hall effect: $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ an evidence for vortex dynamics. *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 2, p. 1064-1068, Jan. 1993.