

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL
INSTITUTO DE FÍSICA

**TRANSPORTE ELÉTRICO POLARIZADO EM SPIN
NO COMPOSTO HEUSLER Pd_2MnSn E EM LIGAS
DILUÍDAS DE Co-Fe.***

Fabiano Mesquita da Rosa

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

Junho de 2011

*Trabalho financiado pela CAPES.

Este trabalho é dedicado à
minha esposa amada Lissandra e
aos meus pais e avós.

Agradecimentos

Sou extremamente grato à Deus pela oportunidade que me foi dada de adquirir conhecimento em uma instituição formada por excelentes profissionais, que é respeitada não só em nosso país mas em todo o mundo.

Agradecimentos especiais:

- Ao Professor Dr. Paulo Pureur pela amizade, dedicação, seriedade e paciência com a qual orientou minha dissertação.

- Ao Professor Dr. Jacob Schaf pela amizade e produtivas discussões.

- Ao Professor Dr. Gilberto Fraga, a quem devo minha iniciação na pesquisa, pela amizade.

- Lucas e Jorge pela colaboração, companheirismo e amizade.

- Paula, Luciano, Graziela, Cláudia e demais integrantes do grupo de pesquisa pela amizade.

- Lissandra pelo apoio e compreensão.

- Mãe, pai e avós pelo incentivo.

Resumo

Este trabalho apresenta uma investigação experimental sobre as propriedades de magneto-transporte dependentes da orientação de spin de dois sistemas ferromagnéticos clássicos com anisotropias distintas: (i) o composto Heusler de momentos magnéticos localizados Pd_2MnSn e (ii) ligas de $\text{Co-Fe } x \text{ at\%}$ ($x = 2, 4 \text{ e } 6$), que são ferromagnetos de bandas.

O composto Heusler tem anisotropia magnética muito pequena, ao passo que nas ligas de cobalto a anisotropia é pronunciada em razão da presença de elétrons da camada-3d incompleta no nível de Fermi. Em ambos os sistemas foram realizadas medidas de resistividade elétrica, magnetorresistência e efeito Hall em diversas temperaturas entre 2K e 300K, com aplicação de campos entre 0 e 9 Tesla. Medidas de magnetização foram realizadas em apoio às experiências de magneto-transporte. As experiências de magneto-transporte evidenciaram efeitos de correntes eletrônicas polarizadas em spin. Em particular, o termo resistivo de mistura de spin proposto por Campbell e Fert [1], que é responsável pela transferência de momentum entre as sub-bandas dependentes de spin, é importante para descrever os comportamentos da resistividade elétrica e da magnetorresistência dos sistemas estudados no limite de baixas temperaturas. Por outro lado, o processo de espalhamento por desordem de spin é dominante nas regiões de temperaturas intermediárias e altas.

A medida de resistividade de Hall no Pd_2MnSn em função da temperatura apresenta um mínimo em torno de $T = 50 \text{ K}$. A análise da contribuição anômala ao efeito de Hall neste sistema é consistente com as previsões teóricas referentes aos efeitos da fase de Berry no espaço recíproco.

A anisotropia espontânea da resistividade foi detalhadamente estudada no caso das ligas de Co-Fe e a forte polarização de spin relacionada ao espalhamento pelas impurezas de Fe foi evidenciado. Nestas ligas, o efeito Hall é dominado por efeitos de espalhamento assimétrico (skew scattering) produzido pelas impurezas de Fe.

Abstract

This work presents an experimental study of the spin-dependent magnetotransport properties in two classical ferromagnetic systems with distinct anisotropies: (i) the Heusler compound Pd_2MnSn , where the magnetic moments are localized, and (ii) the Co-Fe (Fe = 2, 4 and 6 at %) alloys, that are band ferromagnets.

The Heusler compound has a small magnetic anisotropy, while in the cobalt alloys the anisotropy is pronounced because of the presence of 3d electrons in the Fermi level. In both systems the electrical resistivity, magnetoresistance and Hall Effect were measured in the temperature interval between 2K and 300K under applied magnetic fields ranging between 0 and 9 Tesla. Magnetization measurements were made as a complement to the magnetotransport experiments. The magnetotransport measurements evidenced effects of spin polarized electronic currents. In particular, the spin mixing resistive term proposed by Campbell and Fert [1], to describe the momentum transfer between the spin dependent sub-bands plays an important role in the low temperature electrical resistivity and magnetoresistance of both systems. On the other hand, the scattering process due to spin disorder is dominant in the regions of intermediate and high temperatures.

In Pd_2MnSn the Hall resistivity shows a minimum around $T = 50$ K when plotted as a function of temperature. The analysis of the anomalous contribution to the Hall effect in this system is consistent with the theoretical predictions regarding the effects of the Berry phase in the reciprocal space.

The spontaneous resistivity anisotropy was studied in detail in the case of the Co-Fe alloys. A strong spin polarization related to the electron scattering by impurities was found. In these alloys, the Hall effect is dominated by skew scattering due to Fe impurities.

Índice

1 - Introdução.....	8
2 – Transporte Elétrico Polarizado em Spin.....	10
2.1 – Bandas Eletrônicas Polarizadas em Spin.....	10
2.2 – Modelo de Duas Correntes.....	11
2.2.1 - Modelo de Mott.....	11
2.2.2 - Termo de Mistura de Spin.....	13
2.3 – Propriedades de Magneto-transporte em Ferromagnetos e Previsões do Modelo de Duas Correntes.....	14
2.3.1 – Resistividade em Metais Magnéticos.....	14
2.3.2 – Efeito Hall e Magnetorresistência em Metais.....	17
2.3.3 – Efeito Hall e Magnetorresistência em Materiais Magnéticos.....	20
2.3.3.1 – Efeito Hall em Materiais Magnéticos.....	20
2.3.3.2 – Magnetorresistência em Materiais Magnéticos.....	22
2.3.3.3 – Anisotropia Espontânea da Resistividade.....	23
3 - Materiais e Métodos.....	25
3.1 - Compostos de Heusler.....	25
3.1.1 - Descrição dos Compostos de Heusler.....	25
3.1.2 – Preparação da Amostra de Pd ₂ MnSn.....	26
3.2 - Ligas Diluídas de <u>Co</u> -Fe.....	27
3.2.1 - Descrição das Ligas de <u>Co</u> -Fe.....	27
3.2.2 - Preparação das Amostras de <u>Co</u> -Fe.....	29
3.2.3 – Difratomogramas de Raios-X.....	30
3.2.4 – Microscopia Eletrônica de Varredura e Espectroscopia por Dispersão de Energia.....	32
3.3 - Técnicas Experimentais.....	33
3.3.1 - Magnetização.....	33
3.3.1.1 - Magnetômetro de SQUID.....	33
3.3.1.2 - Preparação das Amostras para Medidas de Magnetização.....	36
3.3.1.3 - Procedimento de Medida de Magnetização.....	37
3.3.2- Transporte Eletrônico.....	38
3.3.2.1 - Plataforma PPMS.....	38

3.3.2.2 – Preparação das Amostras para Medidas de Transporte Elétrico.....	41
3.3.2.3 – Procedimentos de Medida.....	42
4 – Resultados Experimentais.....	43
4.1 – Composto Pd ₂ MnSn.....	43
4.1.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização.....	43
4.1.2 – Magnetorresistência.....	46
4.1.3 – Anisotropia da Magnetorresistência.....	48
4.1.4 – Efeito Hall.....	49
4.2 – Ligas de <u>Co</u> -Fe.....	52
4.2.1 – Resistividade e Magnetização.....	52
4.2.2 – Magnetorresistência.....	54
4.2.3 – Anisotropia da Magnetorresistência.....	58
4.2.4 – Efeito Hall.....	59
5 – Análise e Discussão dos Resultados.....	63
5.1 – Composto de Heusler Pd ₂ MnSn.....	63
5.1.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização DC.....	63
5.1.2 – Magnetorresistência.....	69
5.1.3 – Efeito Hall.....	75
5.1.3.1 – Efeito do Campo Desmagnetizante e Determinação dos Coeficientes de Hall Ordinário e Anômalo.....	75
5.1.3.2 – Análise dos Resultados	78
5.2 – Ligas de <u>Co</u> -Fe.....	82
5.2.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização DC.....	82
5.1.2 – Magnetorresistência.....	85
5.1.2.1 Regime de Baixos Campos – Anisotropia Espontânea da Resistividade.....	87
5.1.2.2 Regime de Altos Campos.....	92
5.3.3 – Efeito Hall.....	95
6 – Considerações Finais.....	101
Referências.....	105

1 - Introdução

Nas décadas de 60 e 70 houve um grande interesse no estudo da magnetorresistência e do efeito Hall de inúmeros sistemas metálicos magnéticos[2][3] e não-magnéticos[4]. Em particular, grande atenção foi dada aos metais ferromagnéticos Ni, Fe e Co assim como às várias ligas contendo estes elementos. O objetivo, na época, era a determinação detalhada da estrutura de bandas, a obtenção de informações sobre a superfície de Fermi e a busca de um melhor entendimento sobre os processos de espalhamento eletrônico que dominam as propriedades de magneto-transporte de sistemas metálicos magnéticos. Com a descoberta de novos fenômenos - a partir do final dos anos 80 e início dos anos 90 - como a magnetorresistência gigante (MRG)[5] em 1988, que motivou a concessão do prêmio Nobel em 2007, e o efeito Hall de spin em 2001 [6], iniciou-se uma nova era na pesquisa relacionada ao transporte eletrônico dependente de spin. Hoje, considera-se que esta linha de trabalho abriu uma nova área do conhecimento, que é genericamente denominada de spintrônica. As novas descobertas possibilitaram avanços quase que imediatos na tecnologia de sensores magnéticos e memórias magnéticas. A MRG, por exemplo, é a responsável pelo aumento significativo, no final da década de 90 e no início do século XXI, da capacidade de armazenamento de dados em discos rígidos. É importante ressaltar que os novos fenômenos de magneto-transporte resultam, em muitos casos, da conformação e estruturação das amostras em escala nanoscópica.

O conhecimento acumulado acerca dos diversos mecanismos envolvidos nos processos de espalhamento eletrônico, bem como o avanço nos estudos da estrutura de bandas dos sólidos, culminaram em um enorme desenvolvimento da tecnologia eletrônica. Por exemplo, o progresso é notável na concepção e aperfeiçoamento de equipamentos muito eficazes para transmitir, processar e armazenar informações. Nessa mesma direção, a spintrônica propõe a utilização do spin - uma propriedade intrínseca do elétron - como um grau de liberdade adicional para a transmissão e processamento da informação, contemplando a construção de dispositivos capazes de transmitir e manipular muito mais informação do que os dispositivos baseados apenas no transporte de carga. Há ainda um longo caminho a ser percorrido até a construção de dispositivos spintrônicos viáveis, embora as pesquisas em sistemas de multicamadas magnéticas já tenham alcançado um considerável sucesso.

O presente trabalho objetiva o estudo das propriedades de magneto-transporte de dois sistemas ferromagnéticos. Os focos principais são a Magnetorresistência Anisotrópica (MA), a Anisotropia Espontânea da Resistividade (AER) e o Efeito Hall Anômalo (EHA). Os sistemas escolhidos são (i) o composto Heusler Pd₂MnSn e (ii) ligas diluídas de Co-Fe. O primeiro é representativo de sistemas com pequena anisotropia magnética, enquanto o segundo é extremamente anisotrópico e apresenta uma banda-**d** semi-preenchida e fortemente polarizada nas proximidades do nível de Fermi, que são características do cobalto.

Esta dissertação está dividida, além deste capítulo introdutório, em mais cinco capítulos: capítulo 2 – Transporte Elétrico Polarizado em Spin, capítulo 3 – Materiais e Métodos, capítulo 4 – Resultados, capítulo 5 – Análise e Discussão e capítulo 6 – Considerações Finais.

No segundo capítulo são apresentados os seguintes temas: ferromagnetismo de bandas, modelo de duas correntes e propriedades de magneto-transporte em ferromagnetos. Estes tópicos formam a base teórica de sustentação à análise e à interpretação de nossos resultados. Previsões do modelo de duas correntes para as propriedades de transporte na presença de campo magnético também são discutidas neste capítulo. O capítulo 3 descreve os sistemas estudados e os equipamentos utilizados nas medidas de magneto-transporte e magnetização. O quarto capítulo apresenta os resultados experimentais de resistividade elétrica, magnetização DC, magnetorresistência e efeito Hall no composto Heusler e nas ligas diluídas de Co-Fe. O capítulo 5 é reservado à discussão dos resultados. Por fim, no capítulo 6, são apresentadas as conclusões do trabalho e as perspectivas futuras.

2 – Transporte Elétrico Polarizado em Spin

Esse capítulo apresenta a base teórica utilizada para análise e interpretação dos dados obtidos nas medidas de transporte eletrônico nos sistemas ferromagnéticos estudados neste trabalho. Inicia-se com uma descrição da origem do ferromagnetismo de bandas. A seguir é feita a apresentação do modelo de duas correntes que descreve os principais mecanismos envolvidos na resistividade elétrica de materiais magnéticos. Por fim são discutidos os aspectos mais relevantes dos fenômenos de transporte elétrico estudados nessa dissertação: magnetorresistência e efeito Hall.

2.1 – Bandas Eletrônicas Polarizadas em Spin

Nos metais de transição existe uma forte correlação da estrutura de bandas com as propriedades de transporte eletrônico e com as propriedades magnéticas. A origem desse comportamento está intimamente ligada à natureza dos elétrons **d**. Embora os elétrons de natureza **s** sejam os principais responsáveis pela condutividade elétrica, processos de espalhamento que levam elétrons **s** para estados do tipo-**d** influenciam fortemente a resistividade. As propriedades magnéticas nesses sistemas podem ser explicadas pelo modelo de elétrons itinerantes e pela teoria do ferromagnetismo de bandas. Este modelo propõe que há uma diferença entre as densidades eletrônicas dependentes de spin na banda-**d** (figura (2.1)), que é causada por correlações eletrônicas e resulta em magnetização espontânea.

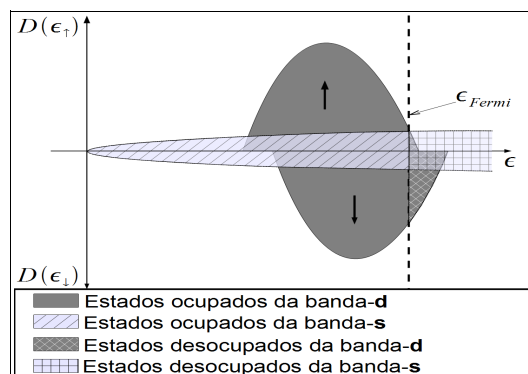


Figura 2.1: Densidade de estados no caso em que banda de elétrons majoritários ($spin(\uparrow)$) está quase totalmente preenchida. A repulsão coulombiana entre elétrons de spin opostos pode estabilizar o deslocamento relativo entre as sub-bandas de spin, resultando numa magnetização espontânea característica de um ferromagneto de bandas.

A alta densidade de estados da banda-**d** no nível de Fermi faz com que a interação coulombiana produza um efeito equivalente ao de um campo magnético externo em um sistema com a banda-**d** não polarizada (figura (2.2.a)), deslocando energeticamente as sub-bandas com spin “ \uparrow ” e spin “ \downarrow ” (figura (2.2.b)). Como o potencial químico (nível de Fermi) deve ser homogêneo em todo o material, uma fração dos elétrons com spin “ \downarrow ” passa a ocupar estados disponíveis na banda-**d** “ \uparrow ” (Figura (2.2.c)). A repulsão coulombiana entre elétrons com spin opostos estabiliza esta polarização mesmo na ausência de campo externo aplicado.

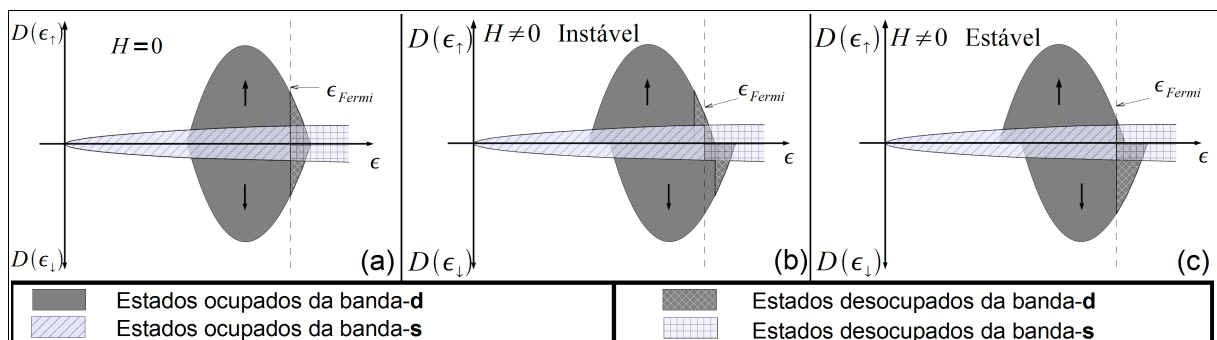


Figura 2.2: Densidade de estados de metais de transição na fase paramagnética ($T > T_c$). (a) Bandas não polarizadas na ausência de campo magnético aplicado: mesmo número de elétrons com spin (\uparrow) e spin (\downarrow). (b) Deslocamento energético da banda-**d** devido à presença de campo magnético aplicado. (c) Equalização do potencial químico para que o sistema adquira estabilidade, resultando em um maior número de elétrons com spin (\uparrow) do que elétrons com spin (\downarrow).

2.2 – Modelo de Duas Correntes

2.2.1 - Modelo de Mott

O modelo de duas correntes supõe que elétrons pertencentes às sub-bandas de spin majoritários e minoritários contribuem de forma independente para a condutividade total. Este modelo foi proposto por Mott [7][8] para explicar o comportamento da condutividade elétrica de metais ferromagnéticos nas vizinhanças de uma transição ferro-paramagnética. Segundo este modelo, a condutividade elétrica em ferromagnetos que tenham momentos magnéticos

itinerantes pode ser considerada como uma associação em paralelo de duas correntes, já que elétrons de uma sub-banda dependente de spin supostamente não são espalhados para estados da outra sub-banda. Desta forma, pode-se expressar a condutividade total como

$$\sigma = \sigma_{\uparrow} + \sigma_{\downarrow} , \quad (2.1)$$

onde σ é a condutividade elétrica total e σ_{\uparrow} e σ_{\downarrow} são as condutividades elétricas associadas aos elétrons majoritários e minoritários, respectivamente.

De forma equivalente, a resistividade total é dada por:

$$\frac{1}{\rho} = \frac{1}{\rho_{\uparrow}} + \frac{1}{\rho_{\downarrow}} \quad (2.2)$$

ou,

$$\rho = \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}} , \quad (2.3)$$

onde ρ é a resistividade elétrica total e ρ_{\uparrow} e ρ_{\downarrow} são as resistividades associadas aos elétrons majoritários e minoritários, respectivamente.

Como já é conhecido de longa data [9], os elétrons da banda-s são os responsáveis pela boa condutividade elétrica nos metais. Isso se deve ao fato de existir uma diferença significativa entre as massas efetivas dos elétrons pertencentes à banda-s (elétrons quase livres) e os elétrons da banda-d (fortemente interagentes com os caroços iônicos). Sendo assim, a condutividade de cada uma das sub-bandas de spin pode ser escrita como a soma de dois termos, onde cada termo está vinculado à natureza dos elétrons de condução. Por exemplo, para a sub-banda de spins majoritários, escreve-se

$$\sigma_{\uparrow} = \sigma_{s\uparrow} + \sigma_{d\uparrow} , \quad (2.4)$$

onde $\sigma_{s\uparrow}$ e $\sigma_{d\uparrow}$ são respectivamente as condutividades dos elétrons das sub-bandas **s** e **d** com spin \uparrow .

A condutividade elétrica é genericamente expressa como $\sigma = \frac{ne^2\tau}{m^*}$, onde n é a densidade eletrônica, e é a carga do elétron, τ é o tempo de relaxação e m^* é a massa efetiva dos portadores de carga. Como a massa efetiva dos elétrons-d é tipicamente uma ordem de grandeza maior que a dos elétrons-s, supõe-se que a condutividade elétrica dos metais de

transição é, de fato, dominada por elétrons de natureza *s*. No entanto, é importante ressaltar que os mecanismos de colisão em que um elétron-*s* é espalhado para um estado do tipo-*d* contribuem fortemente para a resistividade elétrica dos metais de transição [7]. Este tipo de mecanismo é responsável pelo fato de que a resistividade elétrica dos metais de transição é significativamente maior que a resistividade elétrica dos metais em que apenas elétrons de natureza-*s* existem no nível de Fermi [9].

2.2.2 - Termo de Mistura de Spin

O modelo de Mott não leva em conta as interações com inversão de spin (tipo spin-flip) que podem ocorrer quando processos de espalhamento devidos às interações elétron-magnon, ou spin-órbita, estão presentes. Tais processos podem misturar as correntes dependentes de spin modificando a associação em paralelo para a resistividade elétrica proposta pelo modelo de Mott (expressão (2.3)). A adição de tais termos relacionados aos processos de mistura de spin foi proposta por Campbell e Fert [1] em 1976. Eles encontraram que a resistividade elétrica total (ρ), levando em conta os processos de espalhamento que misturam as correntes dependentes de spin, deve ser escrita como

$$\rho = \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow} + \rho_{\uparrow\downarrow}(\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow})}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow} + 4\rho_{\uparrow\downarrow}}, \quad (2.5)$$

onde $\rho_{\uparrow\downarrow}$ é a resistividade elétrica devido aos processos de espalhamentos que promovem a interação entre as correntes dependentes de spin. Esquemáticamente pode-se representar tais processos como ilustrado na figura (2.3).

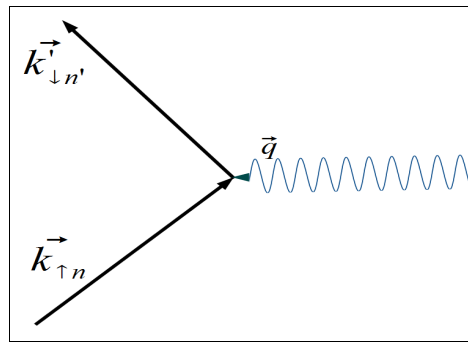


Figura 2.3: Processo de espalhamento dependente de spin causado pela interação com um magnon. Um elétron da sub-banda n com spin \uparrow é espalhado para uma sub-banda n' com spin \downarrow . Para os metais de transição, os índices n e n' estão relacionados com as sub-bandas s e d .

2.3 – Propriedades de Magneto-transporte em Ferromagnetos e Previsões do Modelo de Duas Correntes

2.3.1 – Resistividade em Metais Magnéticos

Os processos de espalhamentos que envolvem elétrons de condução nos materiais não magnéticos têm como origem as interações com fônons, que são dependentes da temperatura, e com as impurezas e outros defeitos estáticos da rede cristalina. Estudando ligas diluídas, em 1864, Matthiessen e Vogt [10] verificaram que a resistividade elétrica dos metais pode ser dividida nestas duas contribuições distintas e independentes. Pode-se expressar esta idéia matematicamente como

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_f(T) \quad , \quad (2.6)$$

onde ρ_0 é a resistividade elétrica residual e ρ_f é a resistividade elétrica devido à interação elétron-fônon.

Denominamos a equação (2.6) como "regra de Matthiessen". De forma geral, esta regra diz que a resistividade é uma propriedade aditiva dos diversos mecanismos de espalhamento que podem atuar sobre os elétrons de condução. No caso específico representado pela equação (2.6), o termo residual é independente da temperatura e tem como

origem o processo de espalhamento dos elétrons de condução com as impurezas e/ou as imperfeições da rede cristalina. O segundo termo da equação (2.6) é dependente da temperatura e decorrente dos processos de espalhamento elétron-fônon. O termo residual depende da pureza e do estado de ordem do metal, enquanto o termo devido ao espalhamento elétron-fônon é intrínseco e característico do material estudado. A regra da aditividade dos mecanismos resistivos não é rigorosa. Teoricamente são previstos pequenos desvios à regra de Matthiessen [11], os quais são observados experimentalmente [10].

Em sistemas metálicos que apresentam ordem magnética, outro termo deve ser adicionado à função resistividade (expressão (2.6)). Este termo provém da interação do spin dos elétrons de condução com a magnetização do metal e pode ser representado como a resistividade devido à ordem magnética (ρ_{o-m}). Como a magnetização é função da temperatura, o termo da resistividade devido à ordem magnética também o será. Em altas temperaturas o termo ρ_{o-m} é comumente chamado de resistividade elétrica devido à desordem de spin. Este termo apresenta um comportamento singular na temperatura de ordenamento magnético [12]. Em baixas temperaturas, a contribuição resistiva em razão da ordem magnética pode ser descrita em termos do espalhamento elétron-magnon. Sendo assim, no caso de metais magnéticos podemos reescrever a equação (2.6) como

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_f(T) + \rho_{o-m}(T) \quad . \quad (2.7)$$

No caso de metais magnéticos também se observa pequenos desvios à regra Matthiessen [10]. O modelo de duas correntes de Campbell e Fert [13], por exemplo, prevê que existe um desvio a esta regra para a resistividade residual de ligas ferromagnéticas ternárias que é causado pela diferença de condutividade elétrica das sub-bandas de condução dependentes de spin. O modelo de Campbell e Fert também faz previsão de desvios à regra de Matthiessen para a resistividade elétrica de ligas binárias no regime de baixas temperaturas [1], no qual as resistividades elétricas residuais dependentes de spin são muito maiores que as ideais. Neste limite, a resistividade elétrica total é dada pela soma de duas contribuições: uma que contém o termo que mistura as correntes dependentes de spin e outra que contém a resistividade elétrica residual acoplada com um termo dependente da temperatura. Segundo este modelo, a resistividade elétrica da liga é dada por [1]

$$\rho(T) = \rho_0 + \left[1 + \frac{(\alpha - \xi)^2}{(\alpha + 1)^2} \right] \rho_i(T) + \left(\frac{\alpha - 1}{\alpha + 1} \right)^2 \rho_{\uparrow\downarrow}(T) \quad , \quad (2.8)$$

onde os termos são definidos como

$$\alpha = \left(\frac{\rho_{0\downarrow}}{\rho_{0\uparrow}} \right) , \quad (2.9)$$

$$\rho_0 = \frac{\rho_{0\uparrow}\rho_{0\downarrow}}{\rho_{0\uparrow} + \rho_{0\downarrow}} , \quad (2.10)$$

$$\xi = \left(\frac{\rho_{i\downarrow}(T)}{\rho_{i\uparrow}(T)} \right) \quad (2.11)$$

e

$$\rho_i(T) = \frac{\rho_{i\uparrow}(T)\rho_{i\downarrow}(T)}{\rho_{i\uparrow}(T) + \rho_{i\downarrow}(T)} . \quad (2.12)$$

Os termos que envolvem ρ_0 relacionam-se à resistividade elétrica residual. Os termos que envolvem $\rho_i(T)$ dizem respeito à resistividade elétrica ideal e tendem a zero em temperatura nula.

A expressão (2.8) é válida se for feita a suposição que $\rho_{\uparrow\downarrow}(T=0) = 0$, o que nem sempre é verdade. No caso em que o espalhamento por impurezas contiver um termo devido ao acoplamento spin-órbita, o termo de mistura de spin não se anula em $T = 0$ K [14].

Tanto sistemas não-magnéticos quanto magnéticos exibem o efeito Hall e o efeito magnetorresistivo ordinários. Tais efeitos serão abordados na próxima seção. Entretanto os últimos apresentam outras contribuições que têm origem física distinta da ação da força de Lorentz. Por se tratar de sistemas que apresentam ordem magnética, ou seja, magnetização espontânea, as interações dos elétrons de Bloch com os momentos magnéticos microscópicos da estrutura cristalina desempenham um papel importante na descrição dos fenômenos de transporte. Esse tipo de interação pode adicionar termos na resistividade elétrica relacionados ao acoplamento spin-órbita e ao espalhamento elétron-magnon se estivermos em regime de baixas temperaturas, no qual o sistema se encontra próximo ao estado fundamental ordenado magneticamente. Assim, a equação (2.7) pode ser generalizada como

$$\rho(T) = \rho_0 + \rho_f(T) + \rho_m(T) + \rho_{s-o}(T) , \quad (2.13)$$

onde $\rho_m(T)$ deve-se ao espalhamento dos elétrons de condução por magnons e $\rho_{s-o}(T)$ resulta das colisões destes elétrons com centros spin-órbita. Genericamente, $\rho_m(T)$ pode ser

interpretado como uma contribuição à resistividade elétrica gerada pela desordem de spin. Os desvios à periodicidade perfeita da rede de momentos magnéticos microscópicos, os quais podem ser estáticos ou dinâmicos (magnons), geram espalhamento dos elétrons de condução.

2.3.2 – Efeito Hall e Magnetorresistência em Metais

Quando um material condutor qualquer em condições isotérmicas é submetido a um campo elétrico \vec{E} , surge como resposta a essa perturbação externa uma densidade de corrente \vec{J} referente ao fluxo de portadores de carga por unidade de tempo que atravessa a seção transversal do material em questão. A relação entre a densidade de corrente e o campo elétrico aplicado depende da natureza da substância e define o tensor resistividade elétrica ($\vec{\rho}$), de modo que

$$\vec{E} = \vec{\rho} \cdot \vec{J} \quad . \quad (2.14)$$

Se adicionarmos ao sistema um campo magnético aplicado \vec{H} , outros efeitos irão aparecer. Os dois efeitos mais comumente tratados nos fenômenos de magneto-transporte elétrico são o efeito Hall (EH) e a magnetorresistência (MR). Nos condutores normais, a origem física desses fenômenos resulta da força de Lorentz atuando sobre as partículas portadoras de carga. No caso de materiais não-magnéticos pode-se escrever $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$. Desta forma, é comum expressar a força de Lorentz como

$$\vec{F} = e(\vec{E} + \mu_0 \vec{v} \times \vec{H}) \quad . \quad (2.15)$$

onde \vec{v} é a velocidade do portador de carga. No caso de metais, entende-se \vec{v} como a velocidade de deriva dos portadores sob ação do campo elétrico \vec{E} .

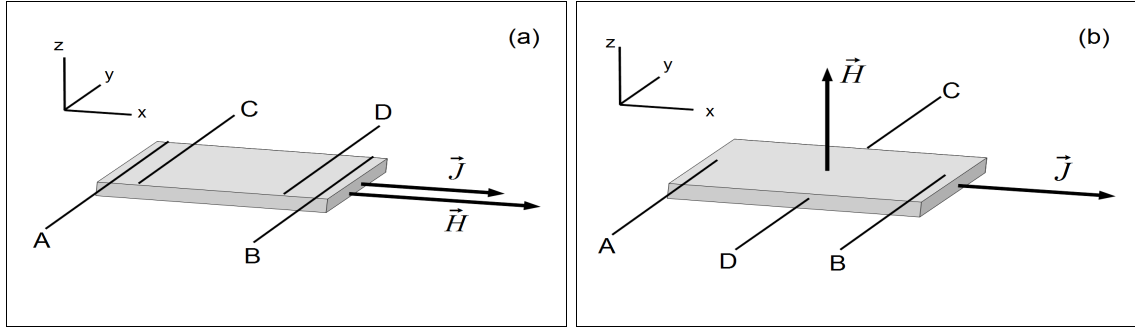


Figura 2.4: Orientações relativas de campo magnético e densidade de corrente relevantes aos fenômenos de magneto-transporte (a) geometria longitudinal ($\vec{H} \parallel \vec{J}$) e (b) geometria transversal ($\vec{H} \perp \vec{J}$) [15]. A corrente é aplicada na amostra através dos pontos A e B. Os pontos C e D são usados para as medidas de tensão longitudinal (caso (a)) e transversal (caso (b)).

Por conveniência se escolhe o sistema de referência de tal forma que o vetor densidade de corrente tenha apenas a componente x não nula ($J_x \neq 0$). O campo magnético pode estar em duas direções distintas em relação ao vetor densidade de corrente: paralelo à \vec{J} (figura (2.4.a)) ou perpendicular à \vec{J} e ao plano da amostra (figura (2.4.b)). O efeito Hall ocorre quando o sistema se encontra em geometria transversal (figura (2.4.b)) e está associado ao aparecimento de um campo elétrico na direção y (d.d.p. entre os pontos C e D na figura (2.4.b)). Este campo é, muitas vezes, denominado de campo de Hall e é perpendicular ao campo elétrico aplicado. O campo de Hall pode ser expresso como [16]

$$E_{Hall} = R_0 J_x \mu_0 H \quad , \quad (2.16)$$

onde $R_0 = \frac{1}{nq}$ é denominado de coeficiente de Hall, n é a densidade de portadores e $q = \pm e$ é a carga dos portadores. A constante de Hall fornece uma medida experimental da densidade n e do sinal dos portadores de carga. Se $R_0 < 0$, os portadores são elétrons, ao passo que se $R_0 > 0$, a corrente se deve às lacunas. A partir da expressão para o campo de Hall (2.16) define-se também a resistividade de Hall.

$$\rho_{Hall} = R_0 \mu_0 H \quad (2.17)$$

A resistividade de Hall (ou resistividade não-diagonal ρ_{xy}) é uma função ímpar do campo magnético aplicado.

A magnetorresistência é o fenômeno relacionado à variação da resistividade elétrica em função do campo magnético aplicado em uma dada temperatura. Como a resistividade elétrica é uma função da orientação relativa entre \vec{H} e \vec{J} , faz-se necessário definir uma

magnetorresistência relativa para as geometrias longitudinal e transversal. Em geral, a magnetorresistência é expressa em termos da variação percentual da resistividade com relação ao valor em campo aplicado nulo, ou seja,

$$\frac{\Delta \rho(H, T)}{\rho(0, T)} = \frac{\rho(H, T) - \rho(0, T)}{\rho(0, T)}, \quad (2.18)$$

onde $\rho(H, T)$ é a resistividade elétrica na presença do campo magnético H na temperatura T e $\rho(0, T)$ é a resistividade elétrica em campo nulo na mesma temperatura. Como existem duas geometrias distintas se faz necessário distingui-las como:

(i) $\frac{\Delta \rho_{\perp}}{\rho(0)}$ é a magnetorresistência transversal, na qual o campo magnético é aplicado

perpendicularmente ao plano da amostra e à densidade de corrente (figura (2.4.b));

(ii) $\frac{\Delta \rho_{\parallel}}{\rho(0)}$ é a magnetorresistência longitudinal, na qual o campo magnético é

aplicado paralelamente à densidade de corrente (figura (2.4.a)).

Para o caso de filmes finos, quando a espessura da amostra é muito menor que as demais dimensões, define-se uma magnetorresistência transversal no plano, na qual o campo magnético é aplicado paralelamente ao plano da amostra e perpendicular à densidade de corrente.

A força de Lorentz, embora não altere os mecanismos de espalhamento eletrônico, produz magnetorresistência positiva devido ao encurvamento das trajetórias dos portadores de carga. Este encurvamento tende a localizar os portadores em órbitas ciclotrônicas e tornar menos efetivo seu avanço na direção paralela ao campo elétrico. A magnetorresistência de Lorentz é proporcional a H^2 no limite de baixos campos magnéticos aplicados e é inversamente proporcional à resistividade elétrica longitudinal. Assim, a magnetorresistência de Lorentz tende a ser significativa em baixas temperaturas, mas se torna pequena em temperaturas elevadas. Deve-se também notar que a força de Lorentz não contribui para a magnetorresistência longitudinal de forma direta.

Os fenômenos de magneto-transporte, tal como descritos acima, dão origem a termos que denominamos de contribuições de Lorentz ou contribuições ordinárias, gerando, então, a magnetorresistência ordinária (MRO) e o efeito Hall ordinário (EHO).

2.3.3 – Efeito Hall e Magnetorresistência em Materiais Magnéticos

2.3.3.1 – Efeito Hall em Materiais Magnéticos

Logo após a descoberta do efeito que leva o seu nome em metais normais, Edwin Hebert Hall verificou, em 1879, que os materiais magnéticos apresentam um efeito com características próprias. Enquanto nos metais normais a resistividade de Hall exibe um comportamento linear com a indução magnética \vec{B} , tal como previsto pela força de Lorentz, nos metais ferromagnéticos se observa duas regiões distintas. Em baixos campos aplicados, a resistividade de Hall cresce rapidamente com a indução magnética, enquanto que em campos mais altos a taxa de aumento da resistividade de Hall diminui e se torna aproximadamente linear com \vec{B} . O comportamento da resistividade Hall em função da indução magnética observada nos metais ferromagnéticos está esquematicamente representado na figura (2.5).

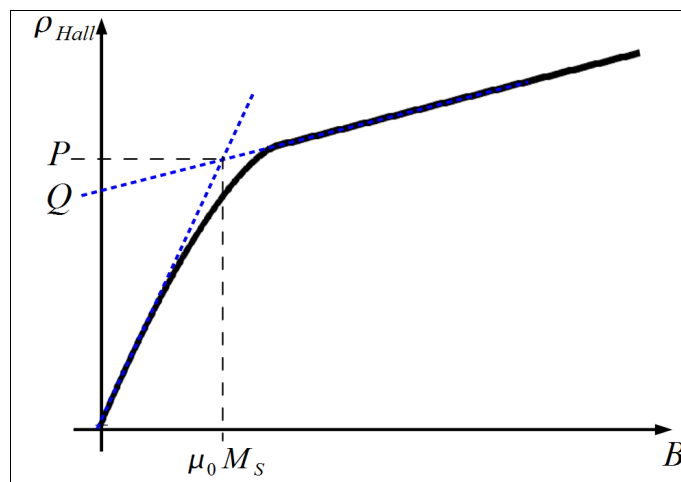


Figura 2.5: Resistividade de Hall em função da indução magnética em um metal ferromagnético (curva contínua). A extrapolação pode ser usada para determinar o valor do coeficiente extraordinário de Hall (curva pontilhada). O valor da resistividade de Hall no ponto Q é igual a $\mu_0 R_s M_s$. A intersecção entre as extrapolações dos regimes de baixo e de alto campo magnético aplicado ocorre quando o sistema atinge a magnetização de saturação. No ponto de intersecção o valor da resistividade Hall (ponto P) é igual a $\mu_0 (R_0 + R_s) M_s$.

Interpreta-se o efeito Hall em metais ferromagnéticos supondo-se que, em adição à contribuição devida à força de Lorentz, ocorre um termo adicional denominado de efeito Hall anômalo (EHA) ou efeito Hall extraordinário. Na década de 1930 Pugh e Lippert [17][18] estabeleceram uma relação empírica para a resistividade de Hall em sistemas magnéticos como função do campo magnético aplicado e da magnetização. Atualmente é usual se expressar a resistividade de Hall nos metais magnéticos como:

$$\rho_{Hall} = R_0 B + R_S \mu_0 M . \quad (2.19)$$

O primeiro termo do lado direito da expressão acima está relacionado ao efeito Hall ordinário (EHO) e R_0 é denominada de constante de Hall ordinária, assim como descrito na seção 2.3.2. O segundo termo está associado ao efeito Hall anômalo (EHA) e R_S é denominada de constante de Hall anômala, ou extraordinária.

A contribuição anômala do efeito Hall pode resultar de três mecanismos principais: deflexão intrínseca, “side jump” e “skew scattering”. O primeiro mecanismo está diretamente ligado às propriedades topológicas dos estados de Bloch. Esta contribuição foi inicialmente proposta por Karplus e Luttinger [19] e é modernamente interpretada como efeito da fase de Berry nas funções de onda eletrônicas submetidas ao espalhamento spin-órbita. Esta contribuição é intrínseca e depende quase que exclusivamente da estrutura eletrônica da banda de condução e da topologia da superfície de Fermi. O mecanismo de “side-jump” é resultado da interação do pacote de ondas eletrônico com impurezas magnéticas através da interação spin-órbita. Este mecanismo produz um espalhamento que desloca lateralmente o centro de massa do pacote de ondas eletrônico. Tanto a deflexão intrínseca quanto o “side-jump” são proporcionais ao quadrado da resistividade [20]. Porém, no caso do “side-jump”, é necessária a presença de impurezas. O “skew scattering” tem como origem a interação direta do spin do elétron de condução com o momento angular orbital do centro espalhador e é proporcional à resistividade longitudinal [21][22]. Dessa forma, escreve-se a resistividade elétrica transversal devido ao efeito Hall extraordinário como [19]

$$\rho_{AHE} \equiv \lambda M (a \rho + b \rho^2) , \quad (2.20)$$

onde λ é a constante de acoplamento spin-órbita, a e b , são constantes e M é o módulo da magnetização. O termo linear com a resistividade se deve ao “skew scattering”, enquanto que o termo quadrático expressa a soma das contribuições intrínseca e de “side-jump”.

2.3.3.2 – Magnetorresistência em Materiais Magnéticos

Nos metais magnéticos e estruturalmente isotrópicos, a resistividade elétrica é função da orientação relativa entre o vetor densidade de corrente elétrica e o vetor indução magnética. Pode-se escrever a equação genérica (2.13), sem o termo de acoplamento spin-órbita, como

$$\rho(T, B, \theta) = \rho_0 + \rho_f(T) + \rho_m(T, B) + \delta\rho(B, \theta) \quad , \quad (2.21)$$

onde θ é o ângulo entre \vec{J} e \vec{B} e $\delta\rho(B, \theta)$ representa o efeito da anisotropia. Este fenômeno é conhecido como anisotropia da magnetorresistência (AMR) e pode ser definida, para o caso específico em que $\theta = 0^\circ$ (ρ_{\parallel}) e $\theta = 90^\circ$ (ρ_{\perp}), como

$$\frac{\Delta\rho}{\rho(0)} = \frac{\rho_{\perp}(H) - \rho_{\parallel}(H)}{\rho(H=0)} \quad . \quad (2.22)$$

O termo $\rho_m(T, B)$ é associado à desordem de spin e pode ser escrito como [23]

$$\rho_m(B) = A \left[1 - \frac{\langle S \rangle^2}{S(S+1)} \right] \quad , \quad (2.23)$$

onde A é uma constante e $\langle S \rangle$ é a média termodinâmica do operador spin do sítio espalhador.

Este termo resistivo sempre acarreta magnetorresistência negativa, a qual varia aproximadamente com M^2 , em razão da supressão da desordem de spin induzida pelo campo magnético aplicado.

Há também contribuições da força de Lorentz e do mecanismo de condução por duas correntes à magnetorresistência dos metais ferromagnéticos. A força de Lorentz sempre produz magnetorresistência positiva. Como já visto, esta contribuição é diretamente proporcional a H^2 e inversamente proporcional à resistividade na ausência de campo.

A condução por duas correntes dependentes de spin também pode produzir magnetorresistência positiva na fase ordenada. Onose e col. [24] propuseram que a origem da magnetorresistência positiva observada no sistema ferromagnético $\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x\text{Si}$ se deve à diminuição da densidade eletrônica da sub-banda de spin minoritário nas vizinhanças do nível de Fermi. Esta diminuição é induzida pelo deslocamento Zeeman produzido pelo campo aplicado (figura (2.2.c)) e afeta tanto a magnetização quanto a condutividade do material

ferromagnético. Onose e col. [24], usando a teoria de Boltzmann para a condutividade [9], encontraram uma expressão que associa a variação da condutividade elétrica em função do campo magnético com o aumento da magnetização induzida pela transferência de elétrons da sub-banda de spin minoritário para a sub-banda majoritária. A expressão proposta por Onose e col. [24] pode ser escrita como:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho(H=0)} = \rho(H) \delta M (A+B) , \quad (2.24)$$

onde $\rho(H)$ é a resistividade elétrica longitudinal na presença de campo magnético, $\delta M = M(H) - M(0)$ é a variação da magnetização induzida pelo campo magnético e os termos A e B são dados por

$$A = \frac{e}{3\mu_0} (\mu_{\downarrow} - \mu_{\uparrow}) \quad (2.25)$$

e

$$B = \frac{ev_F^2}{3\mu_0} \left\{ \mu_{\downarrow} m_{\downarrow}^* \frac{\partial}{\partial \epsilon_F} (\ln(D_{\downarrow}(\epsilon_F))) - \mu_{\uparrow} m_{\uparrow}^* \frac{\partial}{\partial \epsilon_F} (\ln(D_{\uparrow}(\epsilon_F))) \right\}. \quad (2.26)$$

Nas equações (2.25) e (2.26) μ_{σ} é a mobilidade dos elétrons da sub-banda de spin σ , v_F é a velocidade de Fermi, m_{σ}^* é a massa efetiva dos elétrons da sub-banda de spin σ , e é a carga do elétrons, μ_0 é a permeabilidade magnética no vácuo e $D_{\sigma}(\epsilon_F)$ é a densidade de estados por direção de spin no nível de Fermi (ϵ_F) para a sub-banda σ .

O sinal da magnetorresistência, em primeira aproximação, será dado pela diferença entre as mobilidades das duas sub-bandas de spin. No entanto, se a densidade de estados variar fortemente com a energia na posição do nível de Fermi, o termo B , dado pela equação (2.26), poderá ser o responsável pelo sinal da magnetorresistência [24].

2.3.3.3 – Anisotropia Espontânea da Resistividade

Em metais ferromagnéticos um termo resistivo adicional ocorre em razão da presença da ordem magnética intrínseca no sistema. Este termo é anisotrópico e reflete a diferença da resistividade elétrica (em campo nulo) nos casos em que a corrente é paralela ou

perpendicular à magnetização espontânea do material. Assim, a anisotropia espontânea da

resistividade $\left(\frac{\Delta\rho}{\bar{\rho}}\right)_{AER}$ é definida como [14]

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\bar{\rho}}\right)_{AER} = \frac{\rho_{\parallel}(B \rightarrow 0) - \rho_{\perp}(B \rightarrow 0)}{\frac{1}{3}\rho_{\parallel}(B \rightarrow 0) + \frac{2}{3}\rho_{\perp}(B \rightarrow 0)}, \quad (2.27)$$

onde os sub índices se referem à orientação relativa entre o campo magnético aplicado e a densidade de corrente elétrica.

As resistividades em $B = 0$ são obtidas através de extrapolação dos dados medidos em presença de campo, conforme esquematizado na figura (2.6).

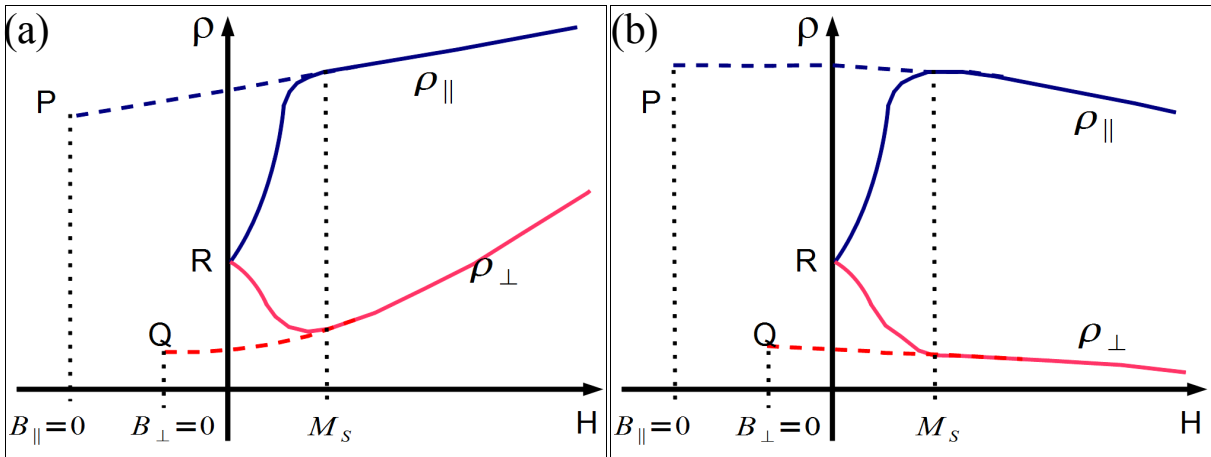


Figura 2.6: Extrapolação para determinar o valor da anisotropia espontânea da resistividade em $B = 0$ no regime (a) de baixas temperaturas e (b) de altas temperaturas. A diferença entre os valores de campo aplicado para as extrapolações das resistividades ρ_{\parallel} (ponto P) e ρ_{\perp} (ponto Q) se deve ao efeito do campo desmagnetizante H_d . O ponto R representa o valor da resistividade em campo aplicado nulo, no qual não existe diferença entre as resistividades elétricas longitudinal e transversal.

Utilizando o modelo de duas correntes, que leva em conta o mecanismo de mistura de spins apresentado anteriormente, Campbell e col. [14] encontraram uma expressão associada à anisotropia espontânea da resistividade. Esta anisotropia tem como origem a interação spin-órbita e pode ser expressa como

$$\left(\frac{\Delta\rho}{\bar{\rho}}\right)_{AER} = \gamma(\alpha - 1), \quad (2.28)$$

onde $\alpha = (\rho_{0\downarrow} / \rho_{0\uparrow})$ e γ é uma constante relacionada ao acoplamento spin-órbita e à energia de troca. Para os metais de transição, γ é aproximadamente igual a 0.01 [14].

3 - Materiais e Métodos

Neste capítulo são apresentadas algumas das características relevantes dos sistemas utilizados neste trabalho, assim como são descritos os métodos de preparação das amostras do composto de Heusler Pd_2MnSn e das ligas de Co-Fe . É feita também uma breve apresentação dos equipamentos e a descrição dos procedimentos utilizados nas medidas de magnetização e de magneto-transporte.

3.1 - Compostos de Heusler

3.1.1 - Descrição dos Compostos de Heusler

Os compostos de Heusler são sistemas intermetálicos cúbicos que são caracterizados pela estequiometria X_2TZ . A estrutura cristalográfica dominante é $L2_1$. Porém, as variantes parcialmente desordenadas $C1_b$, $B2$ e $A2$ também são catalogadas como compostos de Heusler. A estrutura característica $L2_1$ é mostrada na figura (3.1).

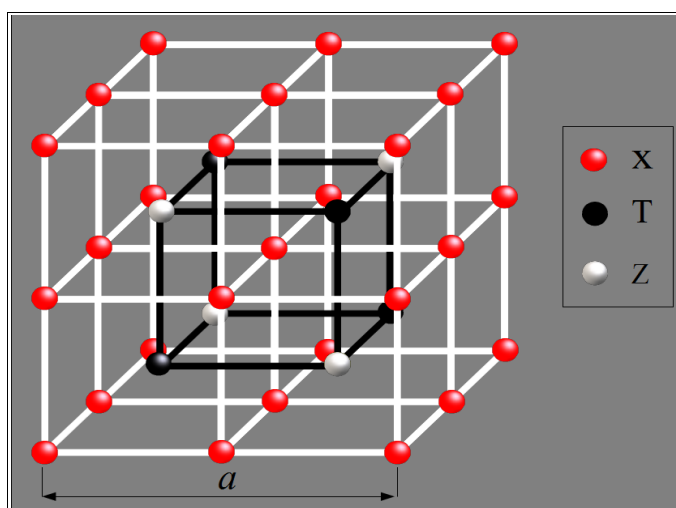


Figura 3.1: Estrutura cristalina $L2_1$ dos compostos Heusler com a estequiometria X_2YZ e parâmetro de rede a . Para o Pd_2MnSn este parâmetro de rede é aproximadamente igual a 6 \AA .

O elemento **X** é normalmente um metal nobre ou de transição. Exemplos são: paládio, níquel e ouro. O elemento **T** é um metal de transição podendo ser manganês, vanádio, nióbio e outros ou um terra-rara como o gadolínio, por exemplo. O elemento **Z** é em geral um metal **s-p** como alumínio, índio ou estanho.

Um dos interesses no estudo desses compostos se deve ao fato de que os elementos **X**, **T** e **Z** são normalmente metais não magnéticos em temperatura ambiente. No entanto, os compostos podem ser ferromagnéticos (como no caso do Pd₂MnSn) ou antiferromagnéticos (como, por exemplo, o Pd₂MnIn).

O manganês é o responsável pela presença de momento magnético localizado nos compostos X₂MnZ. Como a distância entre os átomos de Mn é de aproximadamente 4 Å, a ordem magnética não pode ser ocasionada pela interação de troca direta. Sendo assim, o ordenamento magnético ocorre via interação indireta, do tipo RKKY, na qual os momentos magnéticos localizados dos átomos de Mn interagem entre si via polarização dos elétrons da banda de condução.

O composto Heusler estudado nesta dissertação é o Pd₂MnSn. Este sistema apresenta uma transição ferromagnética em torno de 189 K [25][26]. O parâmetro de rede do Pd₂MnSn é de aproximadamente 6 Å [27].

3.1.2 – Preparação da Amostra de Pd₂MnSn

A amostra de Pd₂MnSn utilizada neste trabalho foi cedida pelo Dr. C.M. Hurd da Universidade de Ottawa, no Canadá. Os elementos que formam o composto apresentavam pureza maior ou igual 99,999 at % [25].

O processo de fusão dos elementos constituintes para a fabricação da amostra foi feito em atmosfera de argônio. Utilizou-se um forno de indução e cadinho de alumina (Al₂O₃). Para maximizar a ordem e homogeneidade da amostra, fez-se um tratamento térmico de 71 h em 1073 K, seguido de resfriamento lento até temperatura ambiente [25]. Análises químicas foram feitas para verificar a composição da amostra. Análises por difração de raios-X confirmam a presença da estrutura L2₁ [25].

A amostra de Pd₂MnSn para medidas de magneto-transporte precisou ser usinada para

melhorar a relação sinal/ruído nas medidas de efeito Hall e para se adaptar ao tamanho do porta-amostra do sistema de medidas. As dimensões originais eram 15 mm x 2,56 mm x 1 mm. Após a usinagem, as dimensões são 5,64 mm x 2,56 mm x 0,26 mm. Para o processo de usinagem, utilizou-se uma serra circular de diamante para diminuir o comprimento e lixas (grão 1200) para diminuir a espessura.

3.2 - Ligas Diluídas de Co-Fe

3.2.1 - Descrição das Ligas de Co-Fe

O cobalto puro apresenta uma transição martensítica em torno de 420°C. Abaixo desta temperatura a estrutura cristalina é hexagonal compacta (hcp) com parâmetros de rede $a = 2,507 \text{ \AA}$ e $c = 4,07 \text{ \AA}$ (figura (3.2.a)) [28]. Acima desta temperatura a estrutura é cúbica de face centrada (cfc), com parâmetro de rede $a = 3,545 \text{ \AA}$ (figura (3.2.b)) [29].

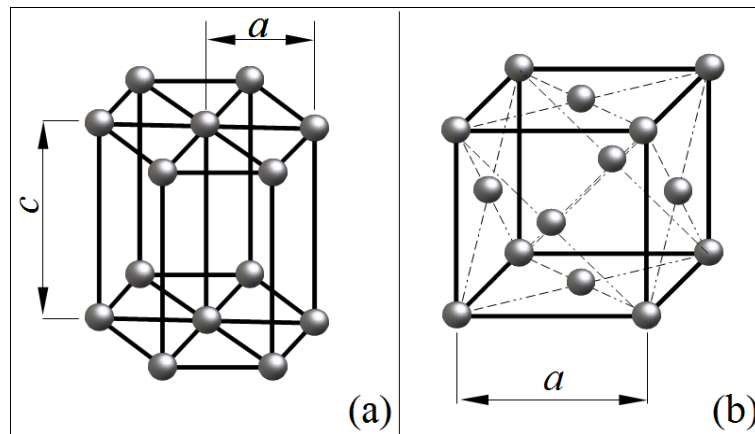


Figura 3.2: (a) Estrutura cristalina hexagonal para o Co com parâmetros de rede $a = 2,507 \text{ \AA}$ e $c = 4,07 \text{ \AA}$. (b) Estrutura cristalina cúbica de face centrada para o mesmo metal com parâmetro de rede $a = 3,545 \text{ \AA}$.

A estrutura hcp introduz uma anisotropia cristalina intrínseca no cobalto metálico. No entanto, pode-se eliminar esta anisotropia cristalina introduzindo ferro como impureza diluída no cobalto. Desta forma, suprime-se a transição martensítica, facilitando a obtenção da

estrutura cúbica. O diagrama de fases da liga (figura (3.3)) mostra que para concentrações de Fe acima de 4 at %, a fase cfc (fase γ) é estabilizada.

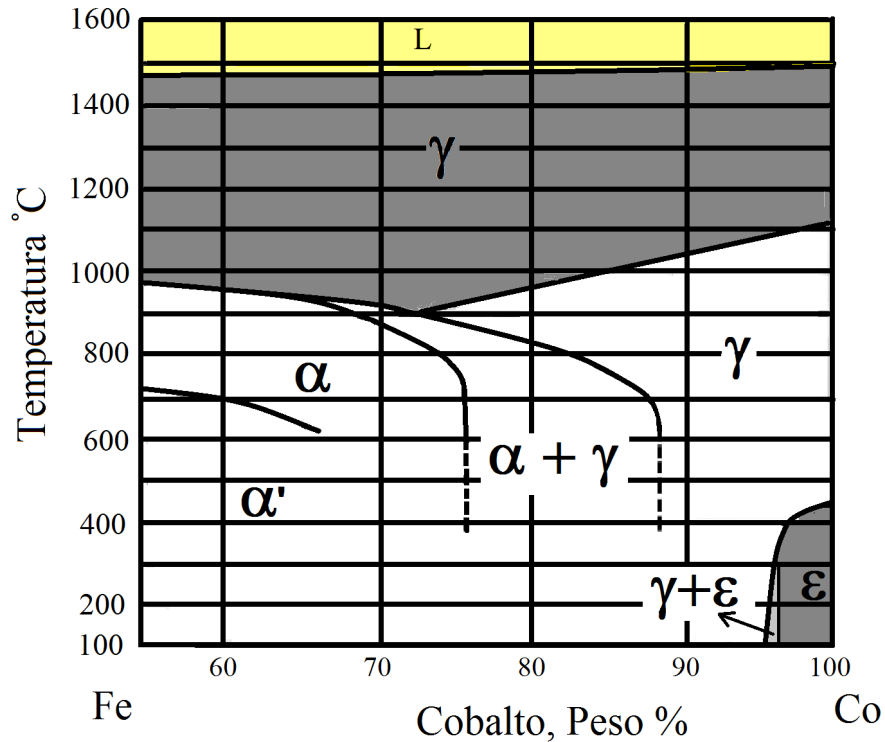


Figura 3.3: Diagrama de fase da liga de Co-Fe contendo as fases α , α' , γ , ϵ e L. A fase α apresenta estrutura cúbica centrada (cc) ordenada, enquanto a fase α' apresenta estrutura cc desordenada. A estrutura cúbica de face centrada (cfc) está presente na fase γ . A fase ϵ é caracterizada pela estrutura hexagonal compacta (hcp)[30].

Porém, a fronteira da estabilidade da fase γ nas ligas de Co-Fe no regime diluído não é perfeitamente definida. Para concentrações de ferro inferiores a 5 at % pode ocorrer coexistência das fases γ e ϵ (fase hcp) segundo o diagrama da figura (3.3). Alguns pesquisadores têm estudado processos térmicos e mecânicos que possam controlar de forma mais efetiva a transformação de fase estrutural no cobalto [31][32]. Além da concentração de impurezas no cobalto e do tratamento térmico utilizado, outros fatores influenciam na estabilização da fase γ nas ligas, como, por exemplo, o tamanho de grão[32].

3.2.2 - Preparação das Amostras de Co-Fe

Neste trabalho foram utilizadas três amostras de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 . As purezas são 99,999 % para o Co e 99,9 % para o Fe. A fabricação das amostras foi feita com o auxílio de um forno de resistência elétrica que utiliza elementos aquecedores "glowbar". O processo de fusão dos elementos constituintes para a fabricação das amostras foi feito em atmosfera controlada (vácuo ou pressão de argônio). Para isso, utilizou-se uma câmara, para controle da atmosfera, na qual se fixou em um tubo de alumina recozido. O material foi fundido em cadinhos de alumina, em quantidades da ordem de 4,5 g para cada amostra. Para se verificar a concentração final das ligas, mediu-se a massa antes e depois do processo de fusão dos elementos. Verificou-se desvios iguais ou menores que 0,02 at % na concentração de Fe [10].

As amostras para medidas de magneto-transporte foram formatadas com o auxílio de um equipamento que utiliza o processo de eletroerosão para efetuar o corte. Desta forma o tensionamento mecânico nos materiais, em virtude dos processos de formatação, é praticamente eliminado. Processos de polimento também foram utilizados. As amostras tomaram a forma de paralelepípedos com dimensões aproximadas de 13 mm x 1,5 mm x 0,5 mm. Posteriormente, as amostras foram tratadas termicamente durante 24 horas à 900° C e resfriadas lentamente até temperatura ambiente numa taxa de 4° C/min. Outros detalhes sobre a preparação e caracterização destas amostras são discutidos na referência [10].

Para o presente estudo foi necessário diminuir a espessura e o comprimento das amostras para aumentar a relação sinal/ruído nas medidas de efeito Hall. As dimensões finais aproximadas das amostras são 10 mm x 1,5 mm x 0,2 mm. Após este processo foi realizado um tratamento térmico adicional com o objetivo de minimizar tensões mecânicas e promover a estabilização da fase γ . Durante a têmpera, as amostras permaneceram em uma cápsula de quartzo, em atmosfera de argônio, por 12 horas em 600° C. Em seguida, as amostras foram resfriadas rapidamente em água em temperatura ambiente. Para acelerar o processo de resfriamento a cápsula foi quebrada no instante em que entrou em contato com a água.

3.2.3 – Difratomogramas de Raios-X

Em razão da quantidade de variáveis que podem dificultar a estabilização da fase γ nas ligas Co-Fe, medidas de difração de raios-X foram realizadas nas amostras policristalinas para a verificação da estrutura cristalina presente nas ligas.

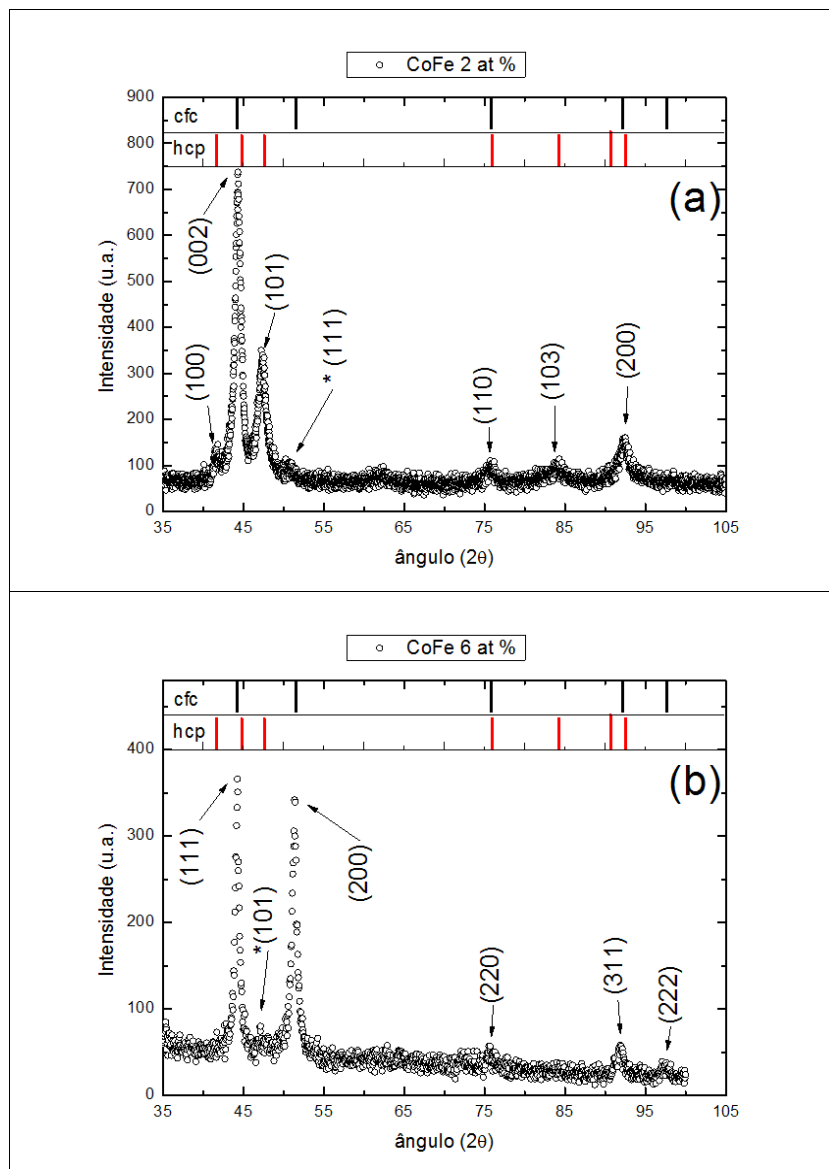


Figura 3.4: Difratomogramas das ligas de Co-Fe x at % com $x = 2$ (a) e $x = 6$ (b). As linhas dos picos de difração da fase hexagonal compacta (hcp) e da fase cúbica de face centrada (fcc) estão indicados na parte superior de cada difratograma. Os planos de reflexão da fase predominante estão indicados nas figuras e os planos de reflexão com asterisco indicam os picos da fase minoritária.

Um difratômetro da Siemens equipado com goniômetro modelo 500, usando a linha K_{α} do Cu, foi utilizado para análise da estrutura cristalina das ligas de Co-Fe. Os difratogramas foram obtidos a partir da difração de raios-X pela superfície dos “bulks” policristalinos.

Os difratogramas das amostras de Co-Fe x at % com $x = 2$ e 6 podem ser vistas nas figura (3.4.a) e (3.4.b), respectivamente. A amostra com menor concentração de Fe apresenta predominantemente a fase hcp enquanto que na amostra com 6 at % de Fe predomina a fase cfc.

3.2.4 – Microscopia Eletrônica de Varredura e Espectroscopia por Dispersão de Energia

Imagens de microscopia eletrônica de varredura (MEV) e análises de espectroscopia por dispersão de energia (Electron Dispersive Spectroscopy – EDS) foram feitas no Pd_2MnSn e nas ligas de Co-Fe no Laboratório de Microscopia do IF-UFRGS. Análises do espectro de dispersão de energia de diversas região da amostra de Pd_2MnSn confirmaram a estequiometria do composto. Contaminações com C e Si estão presentes em algumas regiões da amostra.

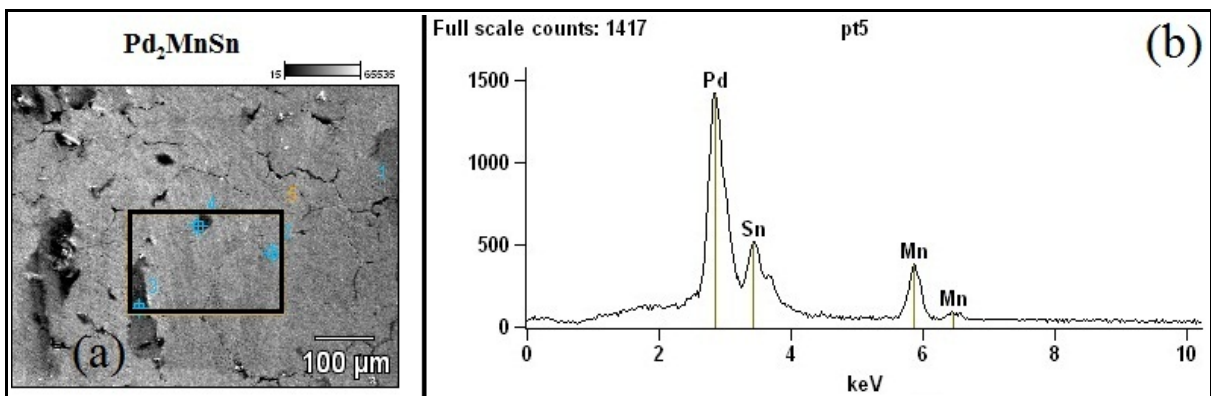


Figura 3.5: (a) Imagem obtida por MEV do composto Pd_2MnSn com uma amplificação de 200 vezes e uma tensão de aceleração de 20 kV. (b) Espectro de energia obtido pela técnica de EDS da região interna ao retângulo no painel (a). A análise indica que o peso atômico percentual dentro da região do quadrado é de 49,49 at % de Pd, 25,57 at % de Mn e 24,94 at % de Sn.

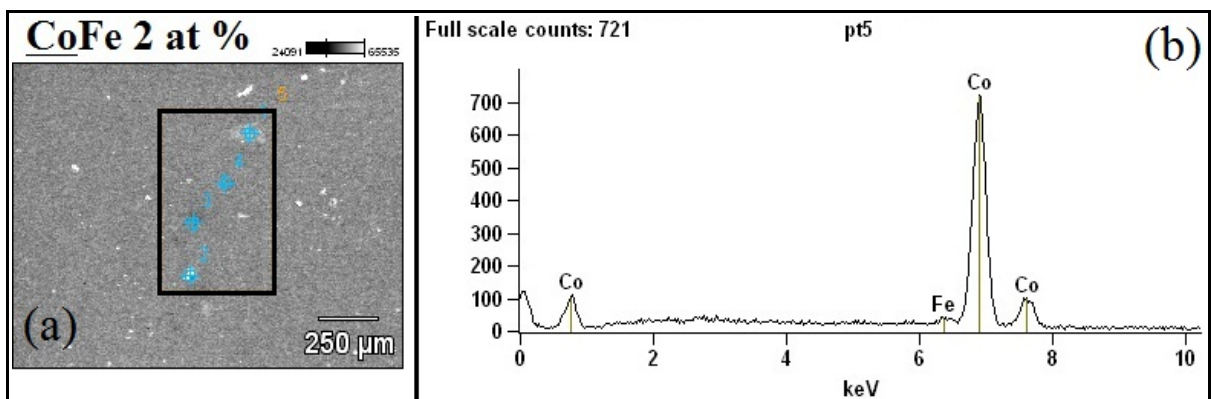


Figura 3.6: (a) Imagem obtida por MEV da liga Co-Fe 2 at % com uma amplificação de 80 vezes e uma tensão de aceleração de 20 kV. (b) Espectro de energia obtido pela técnica de EDS na região interna ao retângulo da imagem do painel (a). Para esta concentração, a análise EDS indica 98,02 at % de Co e 1,98 at % de Fe.

Análises dos espectros de dispersão de energia das ligas de Co-Fe confirmam a estequiometria das amostras. A figura (3.6) mostra os resultados para o Co-Fe 2 at %.

3.3 - Técnicas Experimentais

Medidas de magnetização e de magneto-transporte foram realizadas nas ligas de Co-Fe e no composto de Heusler Pd₂MnSn. As próximas duas seções contêm breves descrições dos equipamentos, da preparação das amostras para cada técnica (magnetização ou magneto-transporte) e dos procedimentos utilizados nas medidas.

3.3.1 - Magnetização

3.3.1.1 - Magnetômetro de SQUID

As medidas de magnetização DC foram realizadas em um magnetômetro de SQUID (Superconductor Quantum Interference Device), modelo MPMS-XL (Magnetic Properties Measurements System) da empresa Quantum Design. Este equipamento pode trabalhar em um intervalo de temperatura de 2 K a 400 K e aplicar campos magnéticos entre 0 e 50 kOe. Devido à alta sensibilidade, o sensor SQUID é capaz de detectar momentos magnéticos com precisão de 5×10^{-9} emu. No entanto, também existem limitações, as quais impedem que se possa medir amostras que apresentem momentos magnéticos acima de 10^{-1} emu.

Pode-se dividir o magnetômetro de SQUID em duas partes principais: criogenia e eletrônica.

A criogenia é formada por um criostato com dois compartimentos isolados termicamente, um central contendo hélio líquido e um mais externo para nitrogênio líquido. Ambos são isolados do meio externo por paredes duplas. O compartimento entre as paredes é evacuado. A figura (3.7) ilustra a parte criogênica do equipamento.

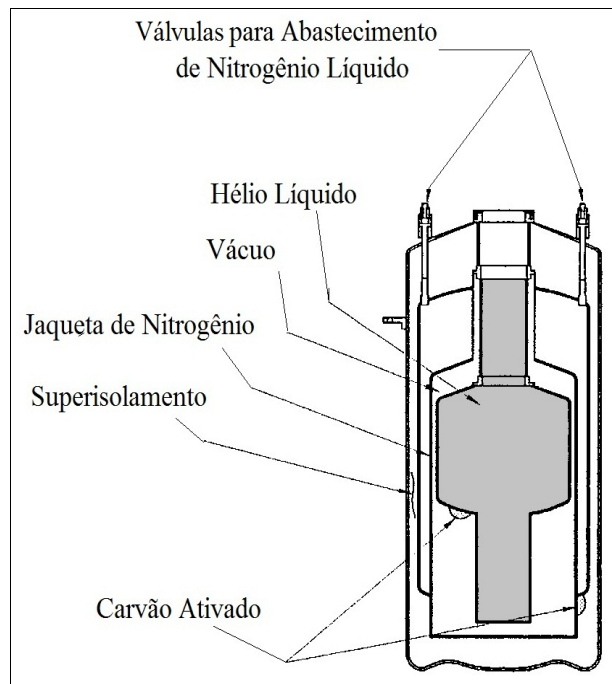


Figura 3.7: Corte transversal do dewar do SQUID. O dewar contém um reservatório de hélio líquido com capacidade de 56 litros, um reservatório de nitrogênio com capacidade de 30 litros, uma câmara evacuada entre os reservatórios, parede externa com superisolamento e carvão ativado.

Dentro do criostato estão: o magneto de material supercondutor (Nb_3Sn), o sensor SQUID, o sistema de termometria, a haste de medidas e diversos componentes eletrônicos e criogênicos auxiliares. Estes itens podem ser vistos esquematicamente na figura (3.8).

A interface entre os diversos dispositivos que formam o magnetômetro e um computador é feita via placa IEEE-488. Um software desenvolvido pelo fabricante do equipamento controla todas as operações necessárias para o funcionamento do magnetômetro, com exceção do procedimento de abastecimento de hélio e nitrogênio líquidos, que são realizados manualmente.

O controle do transporte da amostra, do acionamento do aquecedor interno, da detecção do sinal do sensor SQUID, da fonte de corrente para a bobina supercondutora que produz o campo externo, da chave do modo persistente do magneto supercondutor, da impedância e do sensor de nível de hélio líquido, são feitos pelo controlador modelo 1822.

O controle da chave de fluxo de gás hélio, da chave de fluxo de ar e do sistema de vácuo são feitos por outro controlador. O controle do sensor de temperatura e aquecimento do gás hélio são feitos pelo controlador R/G modelo 1802.

O MPMS tem dois modos de medida e de transporte da amostra. Um deles é o sistema DC, que mede o momento magnético da amostra por uma técnica de extração. Para cada medida de momento magnético o sistema desloca a amostra entre bobinas detectoras dispostas segundo um gradiômetro de 2ª ordem, e, no final, retoma a posição inicial. O deslocamento é feito em passos (steps) e em cada parada o equipamento mede a variação no fluxo magnético.

O outro modo que pode ser utilizado denomina-se RSO (Reciprocating Sample Option). Seu funcionamento se assemelha ao de um magnetômetro de amostra vibrante, no qual a amostra descreve movimentos oscilatórios em torno de uma posição central, entre as bobinas do gradiômetro, com uma frequência fixa.

No presente trabalho, todas as medidas foram realizadas com o modo DC.

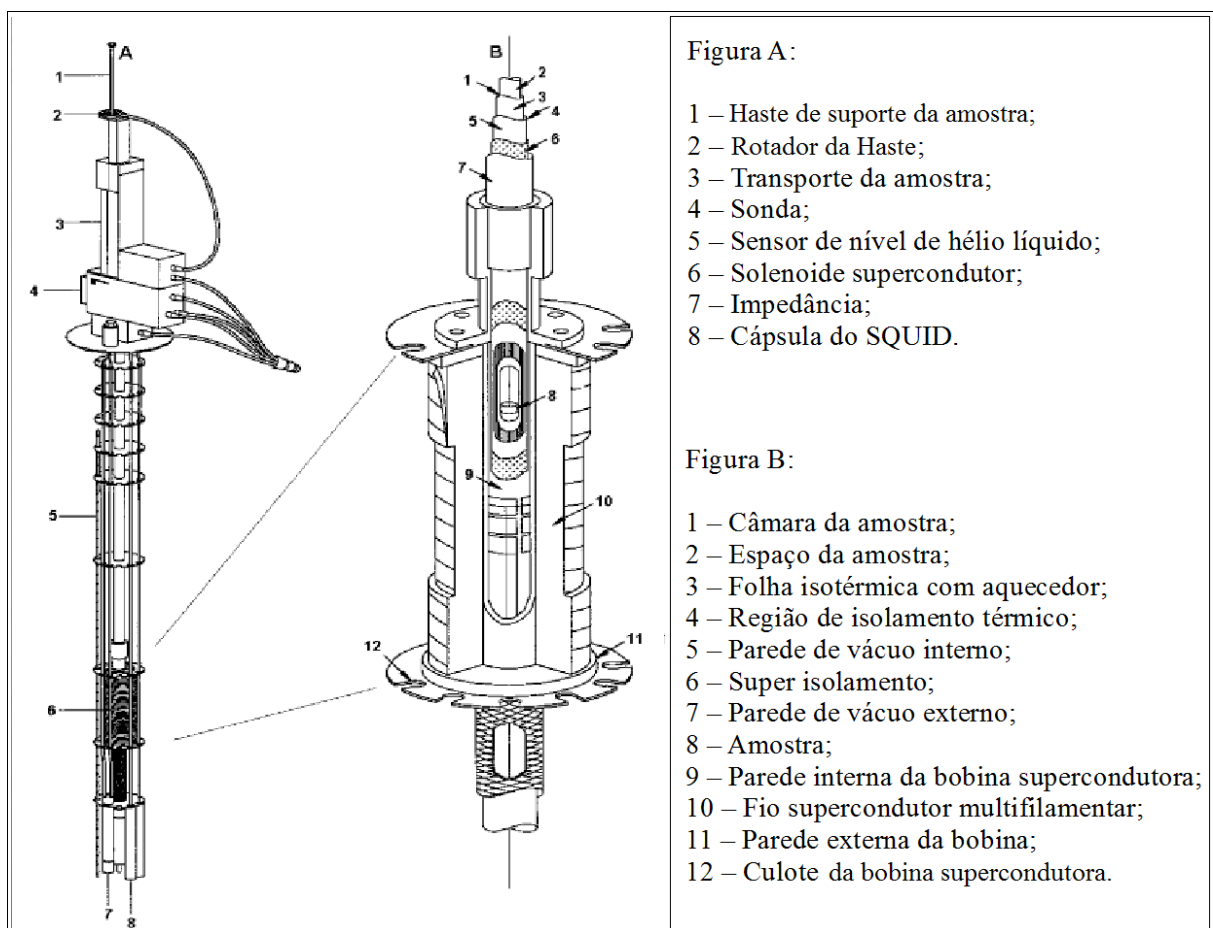


Figura 3.8: Componentes que formam a estrutura interna do criostato.

3.3.1.2 - Preparação das Amostras para Medidas de Magnetização

Como dito anteriormente, o magnetômetro de SQUID apresenta um limite superior para a medida do momento magnético das amostras. Sendo assim, deve-se extrair pequenos pedaços de cada amostra ferromagnética, de forma que a magnitude do sinal lido pelo sensor permaneça dentro dos limites do equipamento durante toda a medida. Com o auxílio de um alicate de corte, um pequeno pedaço foi retirado de cada amostra. Procurou-se obter amostras com a geometria de cilindros longos com o intuito de diminuir os efeitos do campo desmagnetizante.

Após o processo de formatação, as massas das amostras foram determinadas utilizando-se uma balança analítica eletrônica OHAUS adventurer Modelo AR2140.

O porta-amostra que se utiliza no magnetômetro SQUID é um tubo plástico que apresenta resposta magnética extremamente baixa na presença de campo magnético aplicado. Um pequeno pedaço deste canudo é cortado para servir de envólucro para fixar a amostra no interior do tubo porta-amostra. Para que a amostra não se desloque da sua posição no canudo durante a medida, tufo de algodão são colocados no interior do envólucro (figura (3.9)).

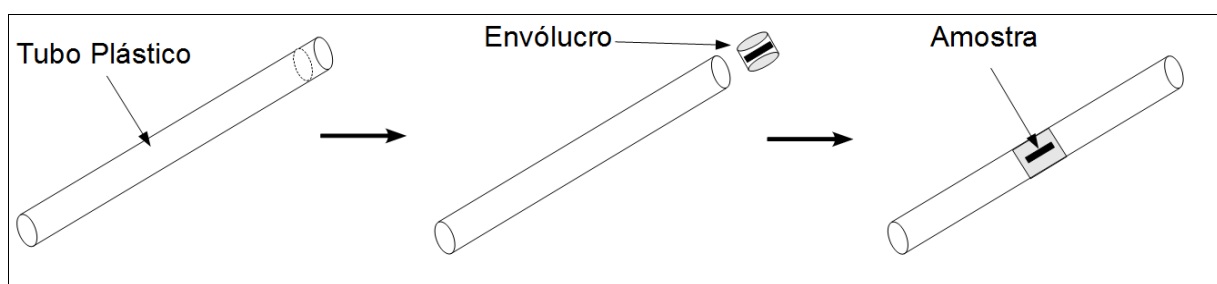


Figura 3.9: O porta-amostra utilizado no magnetômetro de SQUID é um tubo plástico de material com baixa resposta magnética. A amostra é fixada num pequeno pedaço do mesmo tubo com o auxílio de algodão. Este conjunto é inserido no interior do canudo porta-amostra.

3.3.1.3 - Procedimento de Medida de Magnetização

Todas as amostras foram submetidas a medidas de magnetização em função do campo magnético aplicado, mantendo-se a temperatura fixa. Para uma dada temperatura, a variação do campo magnético aplicado foi de 0 até 50 kOe. O objetivo principal destas experiências foi a determinação da magnetização de saturação (M_s) e do campo magnético de saturação (H_s) (figura (3.10)). Este procedimento foi realizado para diversas temperaturas. As medidas de magnetização em função do campo magnético aplicado são extremamente importantes para a análise das medidas de magneto-transporte.

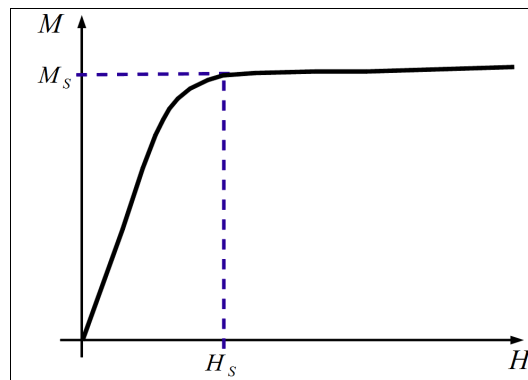


Figura 3.10: Figura esquemática da curva de magnetização versus campo magnético aplicado para a fase ordenada ferromagneticamente. Existe duas regiões distintas no qual a resposta magnética muda de comportamento que ocorre em torno do campo de saturação H_s .

Medidas de magnetização em função da temperatura em campo magnético fixo foram realizadas no Pd_2MnSn . O objetivo destas medidas é a identificação da transição magnética que este sistema apresenta em $T_c = 189$ K. Nas ligas de Co-Fe estas medidas não foram realizadas, uma vez que para estas ligas a transição magnética está muito acima da faixa de temperatura em que o magnetômetro de SQUID pode operar. Para o cobalto puro, $T_c \approx 1400$ K [33]. A adição de pequenas quantidades de Fe pouco altera o valor de T_c .

3.3.2- Transporte Eletrônico

3.3.2.1 - Plataforma PPMS

As medidas de resistividade elétrica, magnetorresistência e efeito Hall foram realizadas em numa plataforma PPMS (Physical Properties Measurements System) da empresa Quantum Design. Esse equipamento pode operar em um intervalo de temperatura de 2 K a 400 K e aplicar campos magnéticos entre 0 e 90 kOe. Existem diversos módulos (oferecidos como opcionais) que podem ser instalados no PPMS, tornando possível a medida de diversas propriedades físicas: magnetometria DC e AC, capacidade térmica, transporte térmico e transporte elétrico.

Pode-se dividir o PPMS em três principais partes: criogenia, eletrônica base e módulos opcionais.

A criogenia é formada por um criostato super-isolado contendo hélio líquido. A figura (3.11) ilustra a parte criogênica do equipamento.

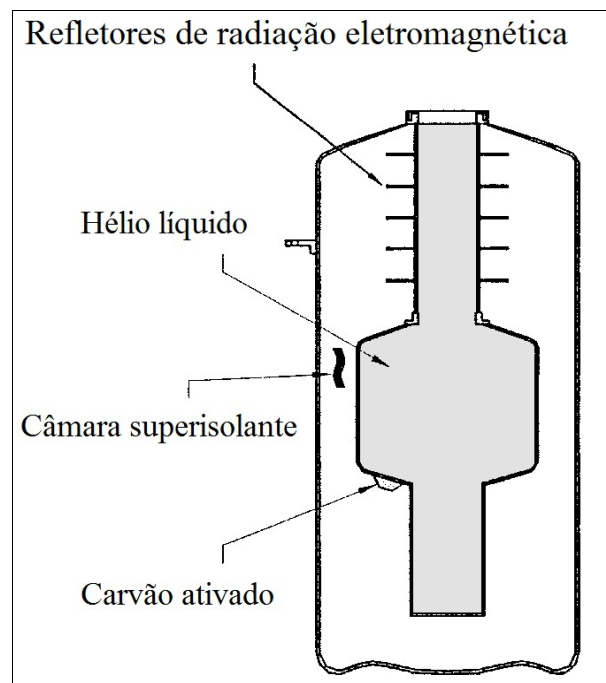


Figura 3.11: Corte transversal do dewar. O dewar contém cinco refletores de radiação eletromagnética no pescoço, reservatório de hélio líquido com capacidade de 30 litros, depósito de carvão ativado e uma câmara evacuada revestida com uma camada superisolante.

Dentro do criostato estão o magneto supercondutor, o sistema de termometria e a câmara de amostra. Os itens descritos anteriormente podem ser vistos esquematicamente na figura (3.12).

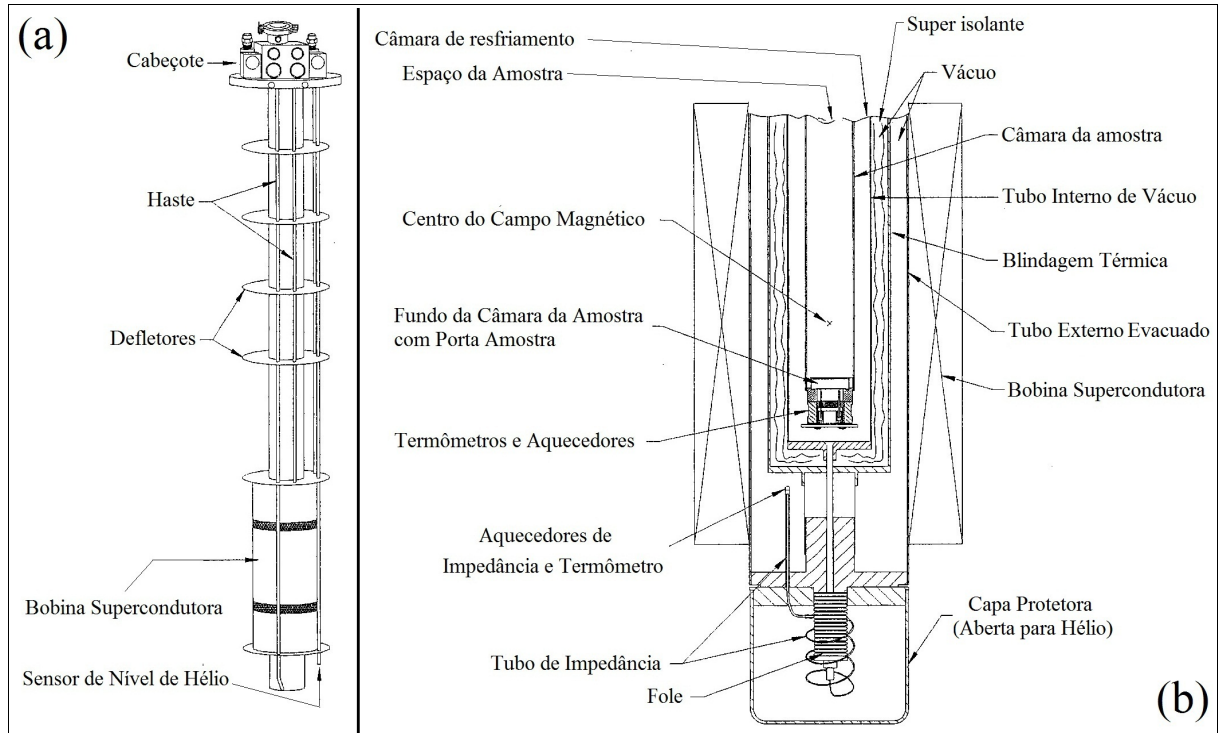


Figura 3.12: (a) Mostra a estrutura interna com os principais componentes internos da sonda do PPMS. (b) Corte transversal da região da bobina supercondutora ((a)).

A eletrônica base é formada pelo módulo 6000, que é responsável por gerenciar todas as ações necessárias para o funcionamento do plataforma PPMS e das opções que podem ser adicionadas a esta. Apenas o procedimento de abastecimento de hélio é realizado manualmente.

O controle dos três sensores de temperatura, do aquecimento do gás hélio, do sensor de nível de hélio líquido, da chave de fluxo de gás e do sistema de vácuo são feitos pelo módulo 6000. O controle da fonte de corrente para a bobina supercondutora é feita pelo módulo 6700. O diagrama em blocos do PPMS (figura (3.13)) ilustra de forma esquemática como os dispositivos são gerenciados pelo módulo 6000.

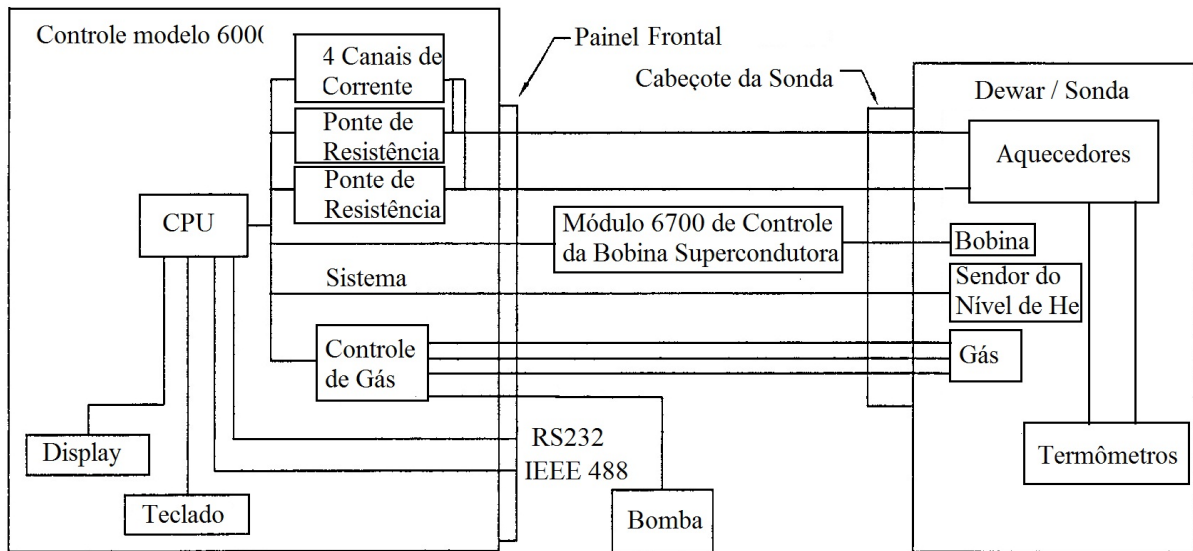


Figura 3.13: Diagrama em blocos do PPMS.

Um software desenvolvido pelo fabricante do equipamento pode ser usado para enviar os comandos para o módulo 6000 via computador.

Para este trabalho, utilizou-se a opção “Resistivity”, que utiliza a mesma eletrônica que mede a temperatura nos termômetros. Antes de iniciar qualquer medida, deve-se informar a corrente, tensão e potência máxima a ser aplicada. O equipamento limita a corrente em 5 mA, a tensão em 95 mV e a potência em 1 mW. A máxima resolução desta opção depende dos valores da corrente e tensão máxima. Por exemplo, para uma corrente máxima de 5 mA e uma tensão máxima de 20 nV, a máxima sensibilidade é de $4\mu\Omega$. A resistência elétrica da amostra é determinada a partir das medidas de tensão e corrente através da amostra que o PPMS mede. Logo após, o sistema aplica a mesma corrente a qual a amostra está submetida em um resistor referência. A tensão neste resistor é usada para se determinar um fator de ajuste. Este procedimento aumenta a acurácia da medida. O fabricante denomina esta opção de medida como modo standard.

3.3.2.2 – Preparação das Amostras para Medidas de Transporte Elétrico

As amostras foram submetidas a medidas de resistividade em função da temperatura e do campo magnético aplicado. Para isso, foi necessário estabelecer contatos elétricos que permanecessem estáveis durante as ciclagens em temperatura. Usou-se a técnica de quatro pontas. Os contatos externos (tiras A e D nas figuras (3.14)) são usados como entrada e saída de corrente e os contatos mais internos (tiras ou círculos B e C nas figuras (3.14)) são usados para determinar a tensão. Duas geometrias de contatos foram feitas – longitudinal e transversal – para que medidas de magnetorresistência e de efeito Hall pudessem ser realizadas.

Nas amostras de Co-Fe os fios de cobre que serviram de condutores foram soldados com a técnica de solda ponto e logo após aplicou-se a cola prata em cima da solda ponto. Fez-se uso da energia térmica emitida por uma lâmpada incandescente de 100W para acelerar o processo de cura da cola prata, neste caso. Já para o composto Heusler fez-se contatos apenas com cola prata. Logo após a aplicação de cola prata, a amostra foi levada ao forno e aquecida por 30 minutos à 250°C para realizar a cura da cola. O último passo foi colar os fios de cobre nas trilhas de prata usando a mesma cola e novamente a amostra foi levada ao forno por mais 2 horas à 250°C .

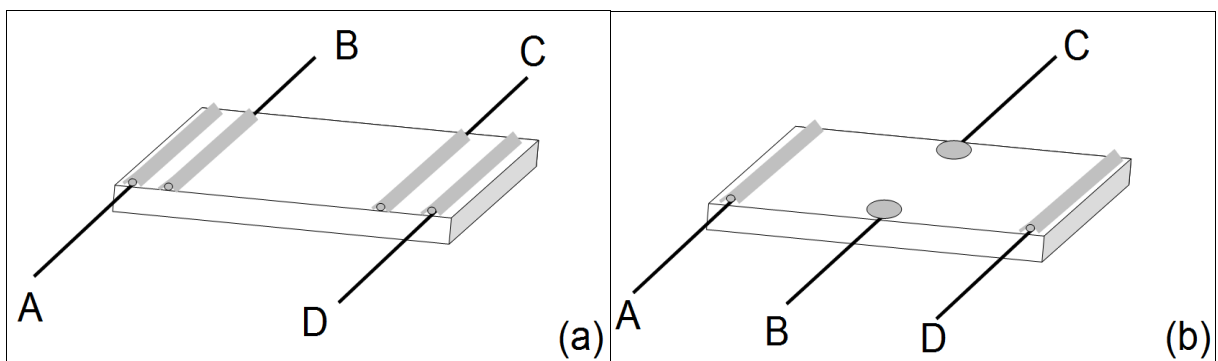


Figura 3.14: Disposição dos contatos elétricos na geometria longitudinal (a) e transversal (b). Os contatos A e D são utilizados para a entrada e saída de corrente elétrica e os contatos B e D são usados para determinar a tensão.

3.3.2.3 – *Procedimentos de Medida*

Todas as amostras foram submetidas a medidas de resistividade elétrica, magnetorresistência e efeito Hall. As medidas de resistividade elétrica cobriram uma faixa de temperatura de 2 K à 300 K a uma taxa de variação da temperatura de 1 K/min. Para as medidas de magnetorresistência e resistividade de Hall em função do campo magnético aplicado, escolheu-se para as ligas de Co-Fe as seguintes temperaturas: 2, 50, 100, 150, 200, 250 e 300 K. Já para o Pd₂MnSn, escolheu-se as temperaturas de 2, 15, 30, 50, 120, 180, 200, 220, 240 e 300 K. Em todas as amostras, os campos magnéticos aplicados variaram entre -90 kOe e +90 kOe.

Para as experiências de efeito Hall no Pd₂MnSn se fixou a temperatura nos seguintes valores: 2, 50, 120, 160, 180, 220, 240 e 300 K. Os campos magnéticos aplicados variaram entre -90 kOe e +90 kOe.

Em todas as medidas de magneto-transporte a variação de campo magnético aplicado foi feita de forma contínua a uma taxa de 100 Oe/s, usando o modo Standard do PPMS.

4 – Resultados Experimentais

Neste capítulo são apresentados os resultados experimentais de resistividade elétrica, magnetização DC, magnetorresistência e efeito Hall dos sistemas estudados. Inicia-se com o composto Pd_2MnSn , seguido das ligas de Co-Fe x at % com $x = 2, 4$ e 6 . Análises e interpretações dos resultados serão feitas no próximo capítulo.

4.1 – Composto Pd_2MnSn

4.1.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização

A figura (4.1) mostra a medida de resistividade elétrica em função da temperatura para o Pd_2MnSn e a figura (4.2) mostra medidas de magnetização para o mesmo composto.

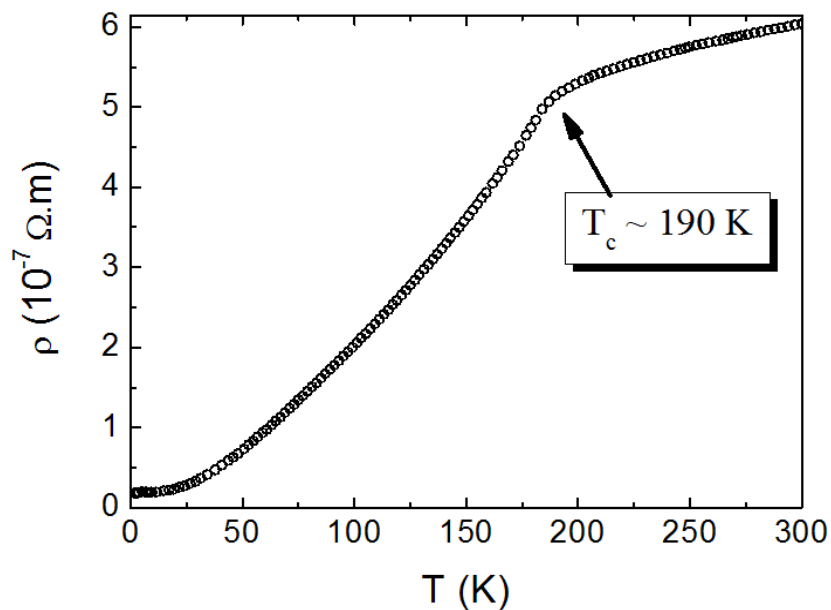


Figura 4.1: Comportamento da resistividade elétrica em função da temperatura para o composto Pd_2MnSn na ausência de campo magnético aplicado.

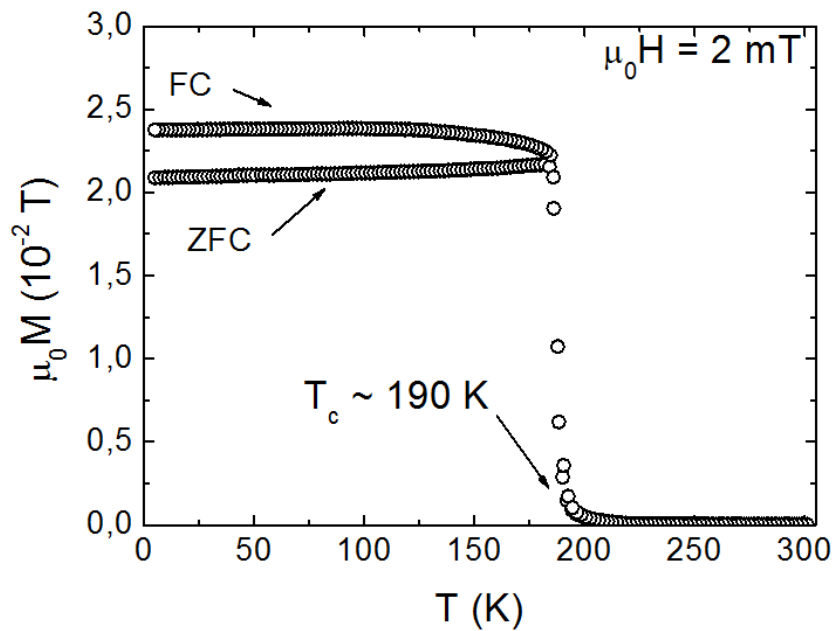


Figura 4.2: Curva de magnetização em função da temperatura com campo magnético aplicado de 20 Oe para a amostra de Pd₂MnSn. A medida foi feita segundo os procedimentos FC (Field Cooling) e ZFC (Zero Field Cooling).

Tanto a medida de resistividade elétrica quanto a de magnetização DC em função da temperatura apresentam comportamentos típicos de sistemas ferromagnéticos. Na medida de resistividade elétrica a transição da fase ferromagnética para o estado paramagnético é percebida como uma mudança marcante na taxa de variação de $\rho(T)$ conforme a temperatura aumenta. Esta mudança ocorre em torno de $T_c = 190$ K, como pode ser visto na figura (4.1). Já na medida de magnetização em função da temperatura se observa uma diminuição abrupta da resposta magnética do composto em torno de 190 K. Trata-se, claramente, do desaparecimento da magnetização espontânea na temperatura crítica, que assinala a transição de fase ferromagnética. Além disso, percebe-se a presença de efeitos de irreversibilidade magnética caracterizados pela separação entre as curvas FC e ZFC em temperaturas inferiores a T_c . Estas irreversibilidades devem-se à sensibilidade da estrutura de domínios à história magnética da amostra. Os efeitos do campo desmagnetizante também se manifestam na medida apresentada na figura (4.2) através da forma plana de $M(T)$ na fase ferromagnética. O valor da temperatura crítica do Pd₂MnSn encontrada neste trabalho, $T_c \approx 189$ K, concorda com dados da literatura [25][26][34].

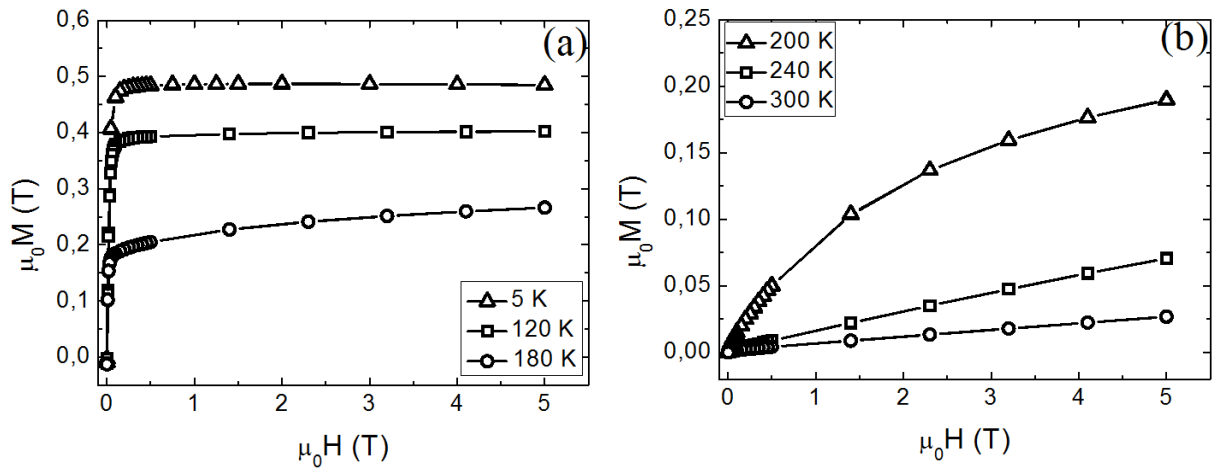


Figura 4.3: Medidas representativas de magnetização DC em função do campo magnético realizadas no Pd₂MnSn na fase ferromagnética (a) e paramagnética (b). Abaixo de T_c percebe-se a existência de uma região de saturação da magnetização característica de ferromagnetos. Para temperaturas acima de transição de fase a magnetização mostra o comportamento característico da função de Brillouin.

Nas medidas de magnetização em função do campo magnético na região de temperaturas inferiores à T_c (figura (4.3.a)), verifica-se o comportamento típico de ferromagnetos macios: em baixas temperaturas e para campos magnéticos acima de $\mu_0 H = 0,5$ T a magnetização atinge o valor de saturação M_s . Por outro lado, elevando-se a temperatura para 180 K, observa-se que a magnetização não satura completamente, mesmo em campos magnéticos elevados.

Diferentemente da figura (4.3.a), que apresenta forte resposta magnética ao campo magnético aplicado, a figura (4.3.b) mostra curvas características do magnetismo na sua forma fraca, que neste caso é o paramagnetismo. Para as temperaturas mais elevadas ($T = 240$ K e $T = 300$ K) a resposta magnética é linear com o campo magnético aplicado em quase toda a faixa estudada. No entanto, para temperaturas próximas a T_c , a susceptibilidade não é independente do campo magnético, e a magnetização é aproximadamente descrita pela função de Brillouin.

4.1.2 – Magnetorresistência

A maioria dos resultados das medidas isotérmicas de magnetorresistência na geometria transversal ($\vec{H} \perp \vec{j}$) estão mostradas na figura (4.4). Os dados obtidos nos experimentos realizados em geometria longitudinal ($\vec{H} \parallel \vec{j}$) são semelhantes aos apresentados para a magnetorresistência transversal. Na próxima seção alguns resultados serão apresentados para tornar explícita a isotropia da magnetorresistência no Pd₂MnSn.

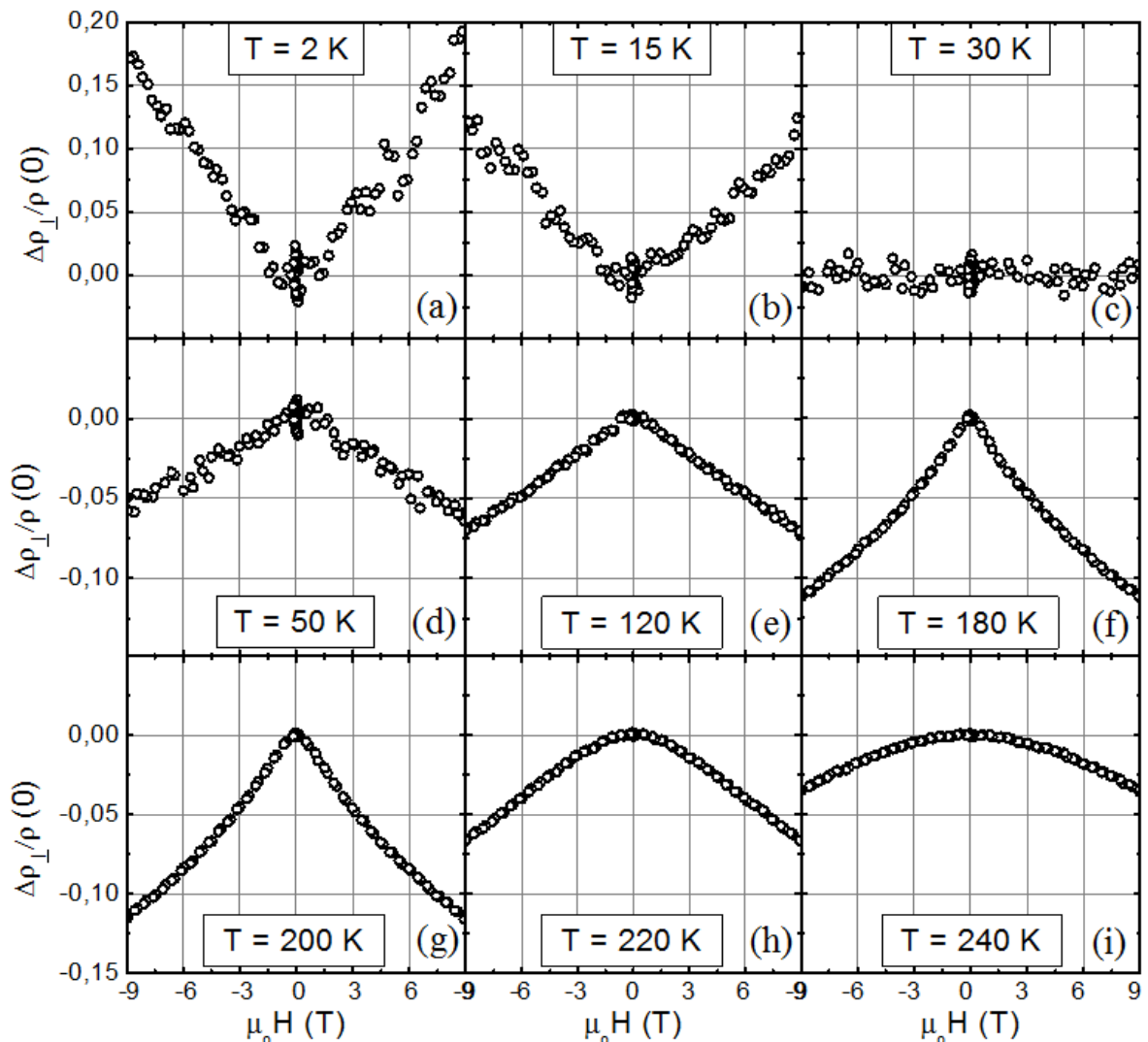


Figura 4.4: Medidas representativas da MR transversal isotérmica em função do campo magnético no Pd₂MnSn. Existe uma inversão de sinal da MRT em torno de 30 K. (c) Nesta temperatura específica a MRT é quase nula. A MRT é positiva para temperaturas inferiores à 30 K (figuras (a) e (b)) e negativa para temperaturas acima de 30 K (figuras (d), (f), (g), (h), (i) e (j)). Nas proximidades de T_c, a MRT apresenta um pico bem definido e centrado em H = 0 (figuras (f) e (g)).

Nas figuras (4.4.a) – (4.4.i) pode-se acompanhar a mudança do comportamento da magnetorresistência transversal (MRT) do Pd₂MnSn ao longo de uma larga faixa de temperatura, a qual se estende desde as proximidades de $T = 0$, na fase ferromagnética, até 100 K acima de T_c . Para temperaturas abaixo de 30 K o sistema apresenta MRT positiva (figuras (4.4.a) e (b)). Em temperaturas maiores que 30 K a MRT é negativa e, exatamente em 30 K (figura (4.4.c)), torna-se praticamente nula. A aplicação do campo magnético máximo, $\mu_0 H = 9$ T, causa um aumento de aproximadamente 17% na resistividade no regime de baixas temperaturas (figuras (4.4.a) e (b)).

A existência de um pico centrado em $H = 0$ nas medidas de MRT nas proximidades de T_c (figuras (4.4.f) e (g)) é uma característica de ferromagnetos. Este comportamento, que se assemelha a uma cúspide, reflete o aumento da ordem magnética causada pela aplicação do campo magnético. Conforme a temperatura aumenta para valores acima do T_c , a MRT tende a mostrar uma dependência quadrática com o campo aplicado.

A amplitude da MRT apresenta um máximo na temperatura crítica, como mostra a figura (4.5). Conforme se aumenta a temperatura para valores superiores à T_c , a MRT tende rapidamente a zero. Quando se diminui a temperatura, a MRT muda de sinal em 30 K e sua magnitude aumenta fortemente em temperaturas mais baixas. O comportamento mostrado na figura (4.5) reproduz qualitativamente resultados anteriormente publicados [26].

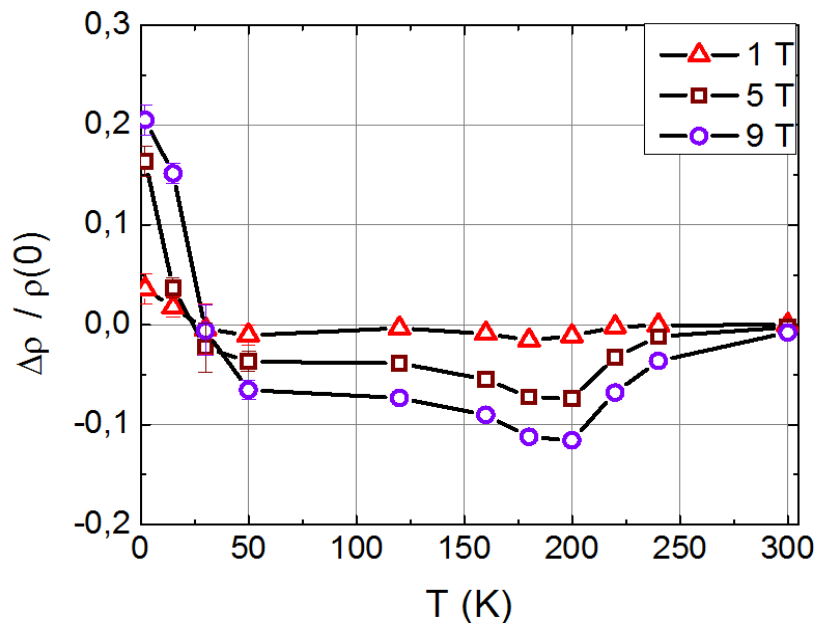


Figura 4.5: Medidas representativas da dependência da MRT em função da temperatura em três campos magnéticos ($\mu_0 H = 1, 5$ e 9 T).

4.1.3 – Anisotropia da Magnetorresistência

A figura (4.6) mostra exemplos de medidas de MR longitudinal (MRL) e transversal (MRT) realizadas na amostra de Pd₂MnSn em temperaturas muito distintas. Percebe-se que este composto apresenta um comportamento característico de um ferromagneto idealmente isotrópico, uma vez que não há diferença significativa entre as duas medidas.

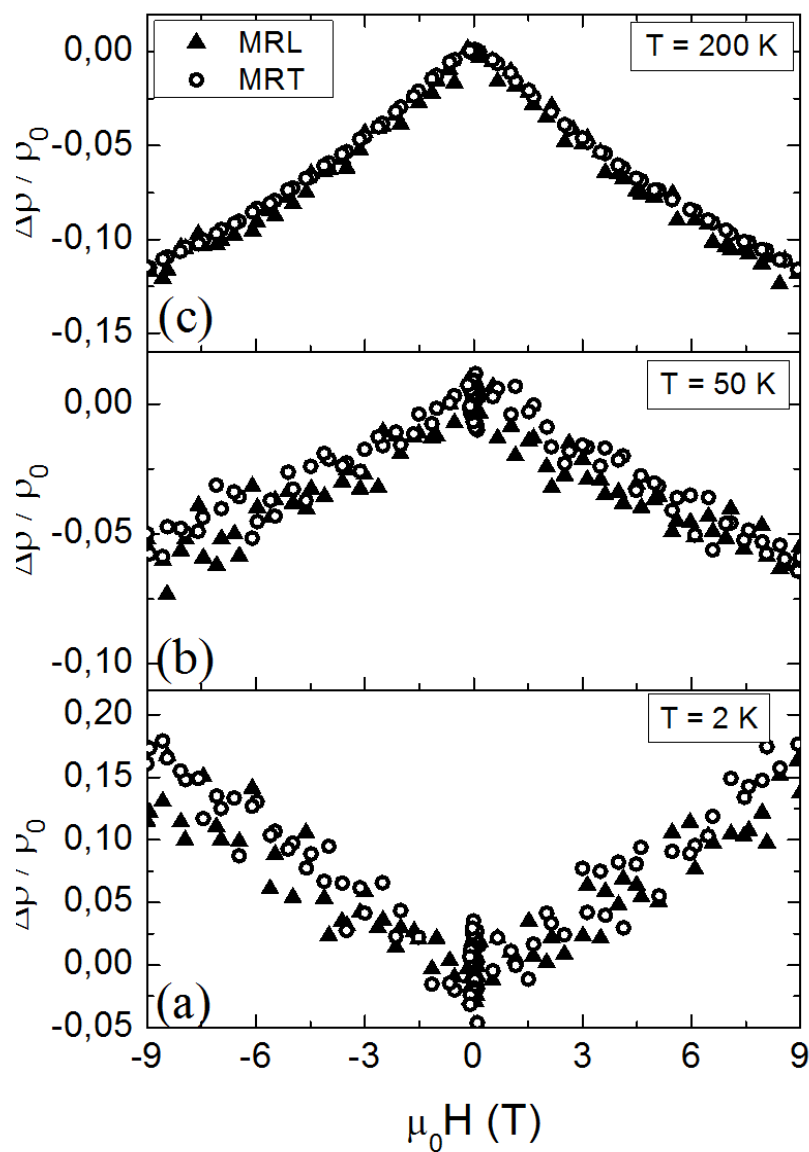


Figura 4.6: Gráficos da variação percentual da magnetorresistência em função do campo magnético. Os dados foram obtidos das medidas de magnetorresistência longitudinal e transversal feita no Pd₂MnSn em três temperaturas 2 K (a), 50 K (b) e 200 K (c). Observa-se que a anisotropia da MR é insignificante.

4.1.4 – Efeito Hall

Os resultados experimentais são apresentados nas figuras (4.7.a) – (4.7.d) (círculos). As linhas contínuas na figura (4.7) foram ajustadas aos pontos experimentais e toda a análise do efeito Hall é feita com o auxílio destas curvas. A barra de erro foi determinada pela amplitude média da dispersão das medidas da resistividade de Hall para campos magnéticos acima de $\mu_0 H = 1$ T.

Os valores da resistividade de Hall são extremamente pequenos para toda a faixa de temperatura estudada, principalmente na região paramagnética (figura (4.7.d)). Na região ferromagnética ocorrem variações no comportamento de ρ_{Hall} (T) que podem ser percebidas observando-se o sinal e a magnitude da taxa de variação da resistividade de Hall com o campo aplicado em diferentes temperaturas.

Na figura (4.7.a) percebe-se que, em $T = 2$ K, a resistividade de Hall é positiva e cresce quase linearmente conforme a intensidade de H aumenta. Uma fraca curvatura negativa é perceptível quando se eleva a temperatura para 120 K, nota-se que a resistividade de Hall inicialmente aumenta com o campo aplicado, passa por um máximo em $\mu_0 \approx 2$ T e, em altos campos passa a diminuir com H , embora permaneça positiva em todo o intervalo de campos estudado. À medida em que nos aproximamos da temperatura de transição magnética (figura (4.7.c)) o aumento da ρ_{Hall} em baixos campos aplicados se torna mais abrupto e intenso. A taxa de decréscimo de ρ_{Hall} com o aumento subsequente do campo aplicado também se torna maior. Porém, em $T = 180$ K a resistividade de Hall ainda permanece positiva em todo o intervalo de campos estudado. Em altas temperaturas ($T = 300$ K) o efeito é muito pequeno em todo o intervalo de campos magnéticos aplicados (figura (4.7.d)). Em baixos campos se distingue uma pequena contribuição positiva em ρ_{Hall} . Os resultados mostram que há uma contribuição positiva dominante para ρ_{Hall} , que se manifesta principalmente em baixos campos, a qual se superpõe uma contribuição negativa que é visível na região de altos campos. Esta contribuição negativa se manifesta através de uma leve curvatura invertida na curva ρ_{Hall} versus H em $T = 2$ K, porém torna-se clara em temperaturas mais elevadas.

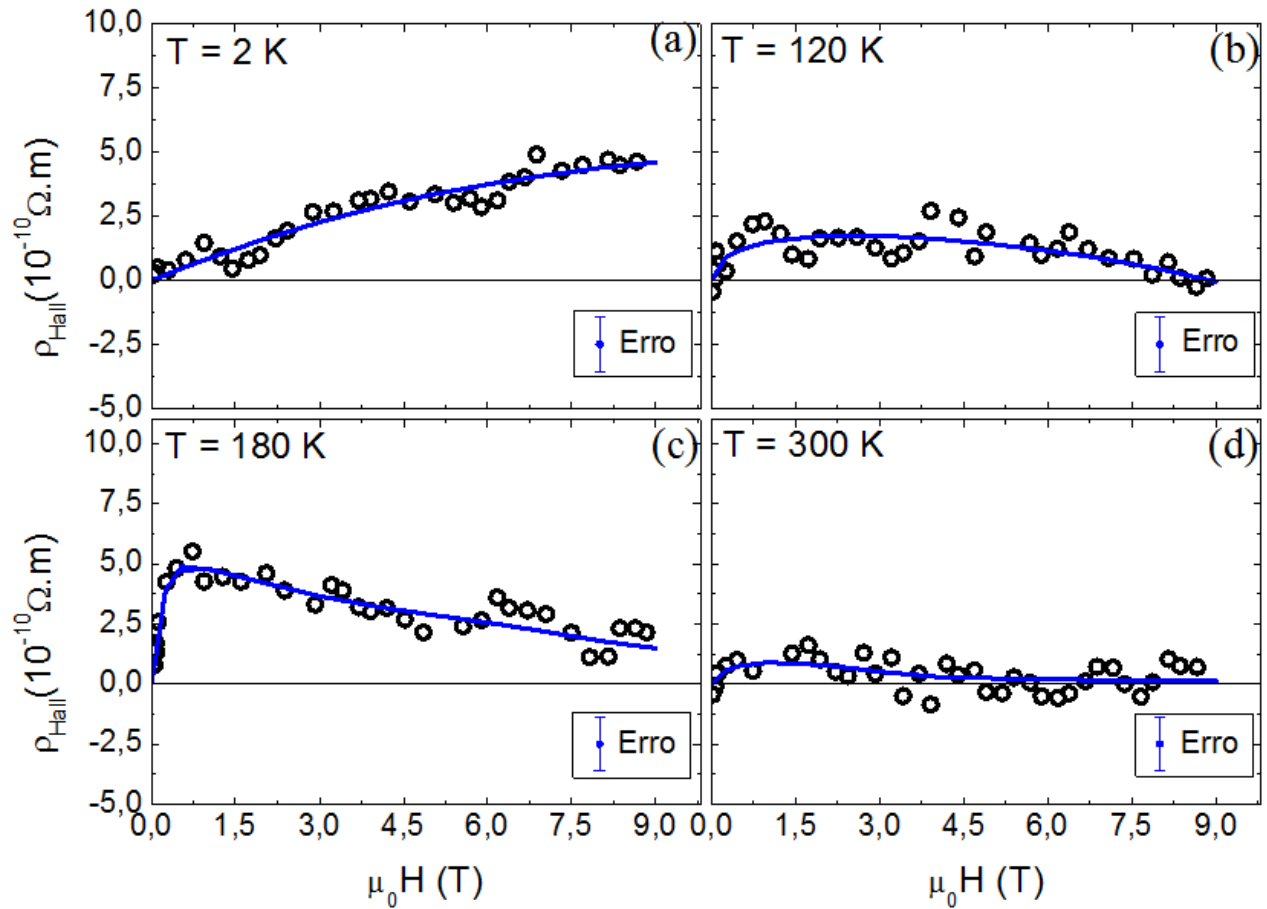


Figura 4.7: Medidas representativas das experiências de efeito Hall realizadas na amostra de Pd₂MnSn. A resistividade de Hall medida (círculos) em função do campo magnético aplicado para quatro temperaturas 2, 120, 180 e 300 K, conforme mostram as figuras a, b, c e d, respectivamente. Curvas (linhas contínuas) foram ajustadas aos pontos experimentais para servir de guia para os olhos. O erro foi determinado pela amplitude da dispersão dos pontos experimentais.

Na figura (4.8) a resistividade de Hall é apresentada em função da temperatura para três campos magnéticos aplicados. Nos três campos, ρ_{Hall} apresenta um máximo em torno de T_c e um mínimo em torno de 50 K. C.M. Hurd e colaboradores [25], estudando este mesmo composto, já havia encontrado um comportamento qualitativamente similar ao mostrado na figura (4.8).

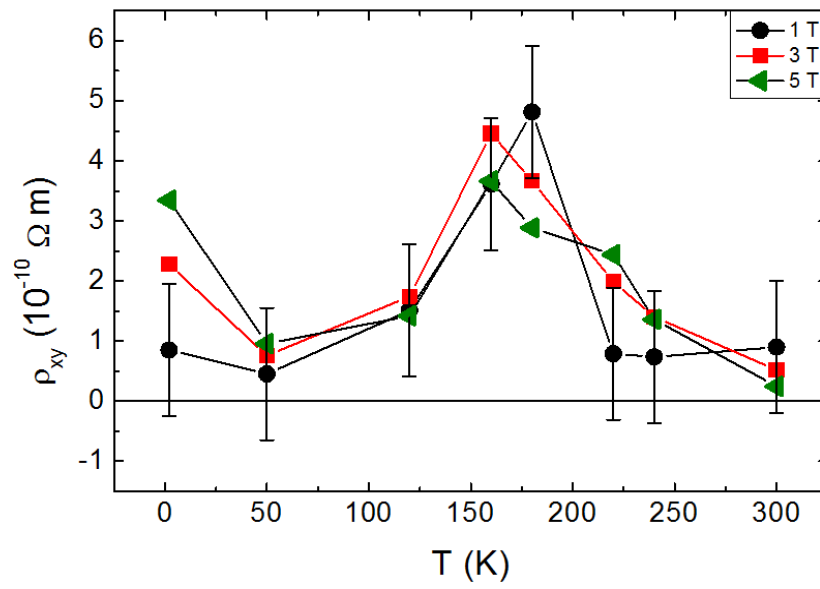


Figura 4.8: Medidas representativas da resistividade de Hall em função da temperatura para três campos magnéticos aplicados $\mu_0 H = 1, 3$ e $5 T$.

4.2 – Ligas de Co-Fe

4.2.1 – Resistividade e Magnetização

A figura (4.9) mostra as medidas de resistividade elétrica em função da temperatura para as ligas Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 .

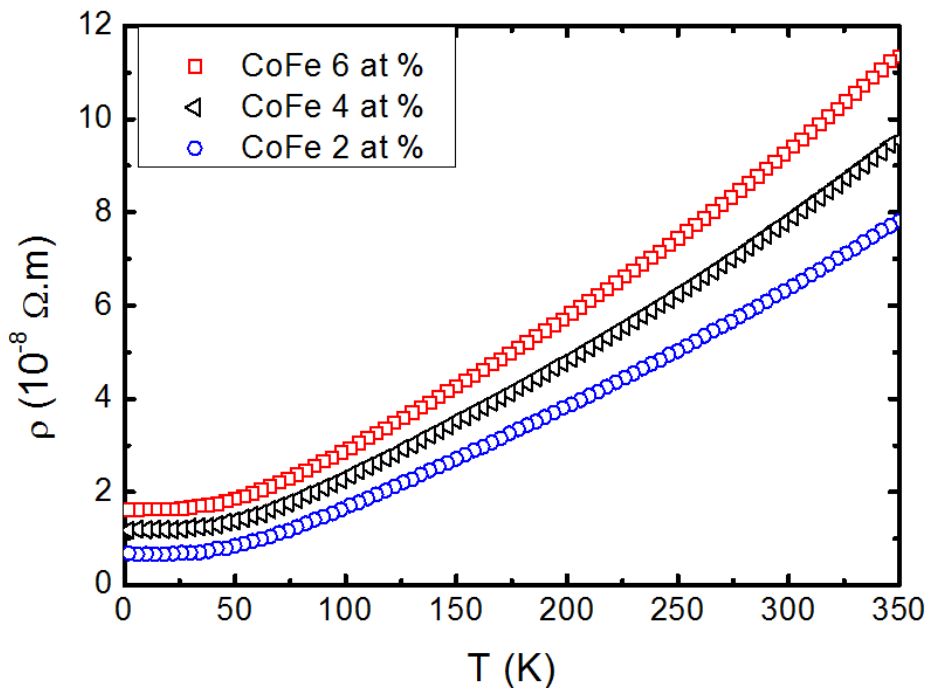


Figura 4.9: Medida de resistividade em função da temperatura realizadas nas amostras de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 . Na figura (a) as medidas foram realizadas abrangendo um largo intervalo de temperatura (2 à 350 K).

O comportamento da resistividade elétrica das ligas diluídas de Co-Fe é tipicamente metálico, observando-se um aumento de ρ à medida que se aumenta a temperatura (figura (4.9)). O valor da resistividade residual, ρ_0 , cresce conforme se adiciona mais impurezas ao sistema. O crescimento de ρ_0 é aproximadamente linear com a concentração de impurezas.

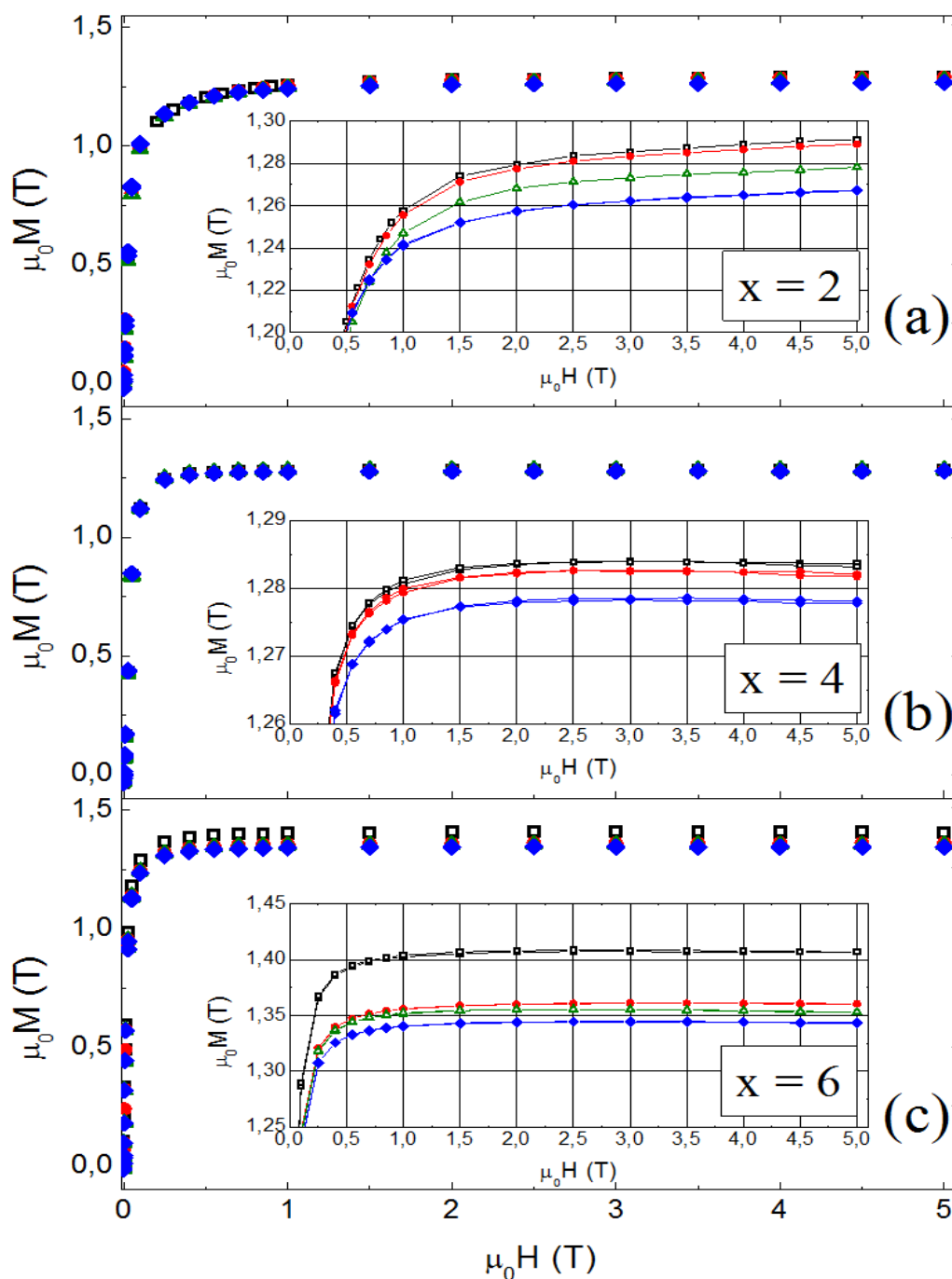


Figura 4.10: Medidas representativas de magnetização DC em função do campo magnético para as ligas de Co-Fe x at %, com $x = 2$ (a), 4 (b) e 6 (c), nas temperaturas de 5 K (quadrado), 50 K (circulo), 100 K (triângulo) e 250 K (diamante). A amostra com $x = 2$ não satura completamente mesmo em altos campos. Em todas as curvas a magnetização de saturação diminui na medida que se aumenta a temperatura, como pode ser visto nas inserções.

Nas medidas de magnetização DC em função do campo magnético (figuras (4.10.a) - (c)) se verifica um comportamento característico de ferromagnetos, no qual a magnetização tende a saturar em campos aplicados superiores à $\mu_0 H \approx 0,5$ T. A alta susceptibilidade

magnética no regime de baixos campo magnéticos é outro comportamento típico de ferromagnetos. A magnetização da amostra Co-Fe 2 at % não satura inteiramente até o mais alto campo aplicado. O valor de M_s aumenta ligeiramente com o aumento da concentração de Fe nas ligas.

4.2.2 – Magnetorresistência

Os resultados das medidas de magnetorresistência nas geometrias longitudinal e transversal para as ligas de Co-Fe x at % são mostrados nesta seção. Inicia-se apresentando a amostra com $x = 2$ na figura (4.11). Os resultados para as amostras com $x = 4$ e $x = 6$ são mostradas nas figuras (4.12) e (4.13), respectivamente.

Nas figuras (4.11.a) e (4.11.b) pode-se acompanhar a mudança do comportamento da magnetorresistência transversal (MRT) da amostra de Co-Fe 2 at % ao longo de uma larga faixa de temperatura e em diferentes valores de campo externo. Para temperaturas abaixo de 50 K o sistema apresenta MRT totalmente positiva e crescente com o campo magnético aplicado. Em altas temperaturas a MRT é pequena e negativa.

Em $T = 2$ K, a MRT cresce de modo aproximadamente linear com H em campos superiores a 3 T. Em $T = 50$ K, a MRT varia de modo aproximadamente quadrático com o campo magnético. Em $T = 100$ K, identifica-se uma contribuição negativa na MRT no regime de baixos campos. Em $T = 250$ K, a MRT é pequena e negativa em todo o intervalo de campo magnético estudado.

Os resultados de magnetorresistência longitudinal (MRL) (figura (4.11.c) e (4.11.d)) mostram que esta é sempre positiva. Em baixas temperaturas a MRL cresce rapidamente com o campo magnético no regime de baixos campos magnéticos, depois passa a variar linearmente com H . A magnitude da MRL decresce rapidamente com a temperatura, conforme se verifica na figura (4.11.d).

Em $T = 2$ K, a MRL cresce de modo sub-linear com o aumento do campo. Em $T = 50$ K e $T = 100$ K, a MRL cresce de modo quase linear com o campo aplicado. Em $T = 250$ K, a MRL é muito pequena, mas se mantém positiva em todo o intervalo de campos estudado.

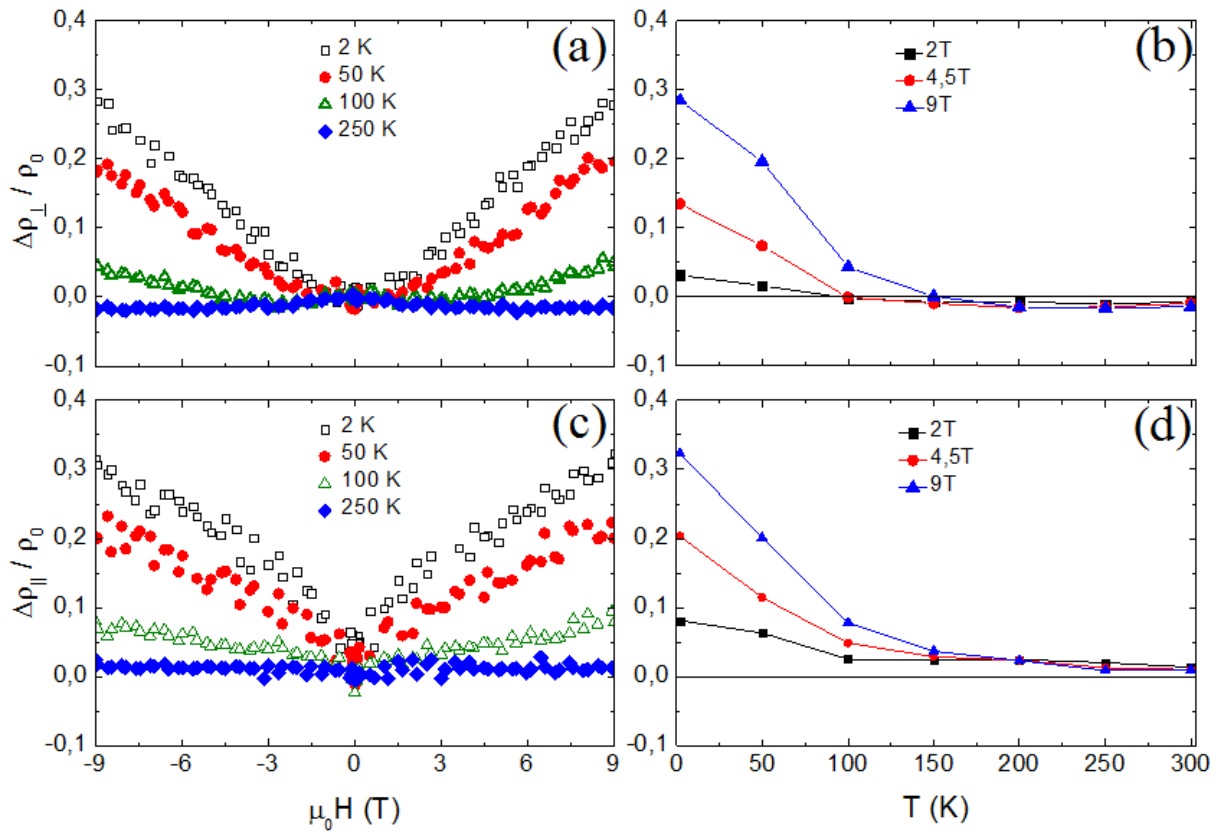


Figura 4.11: Medidas representativas das experiências de magnetorresistência em função do campo magnético para a liga de Co-Fe 2 at % (figuras (a) e (c)) nas temperaturas indicadas. As medidas de MR na geometria transversal em função do campo magnético estão representadas na figura (a) e as medidas de MR na geometria longitudinal estão representadas na figura (c). A variação da MR nas geometrias transversal e longitudinal em função da temperatura para os campos magnéticos $\mu_0 H = 2, 4,5$ e 9 T, estão representados nas figuras (b) e (d), respectivamente.

O comportamento da MRT e da MRL em função do campo magnético e da temperatura para a amostra de Co-Fe 4 at % está ilustrado nas figuras (4.12.a) – (4.12.d). Os resultados são qualitativamente semelhantes ao caso anterior. Porém, a contribuição negativa à MRT no regime de baixos campos magnéticos torna-se mais evidente e está presente mesmo em $T = 2$ K. A MRL se mantém positiva em todo o intervalo de campos e temperaturas investigado.

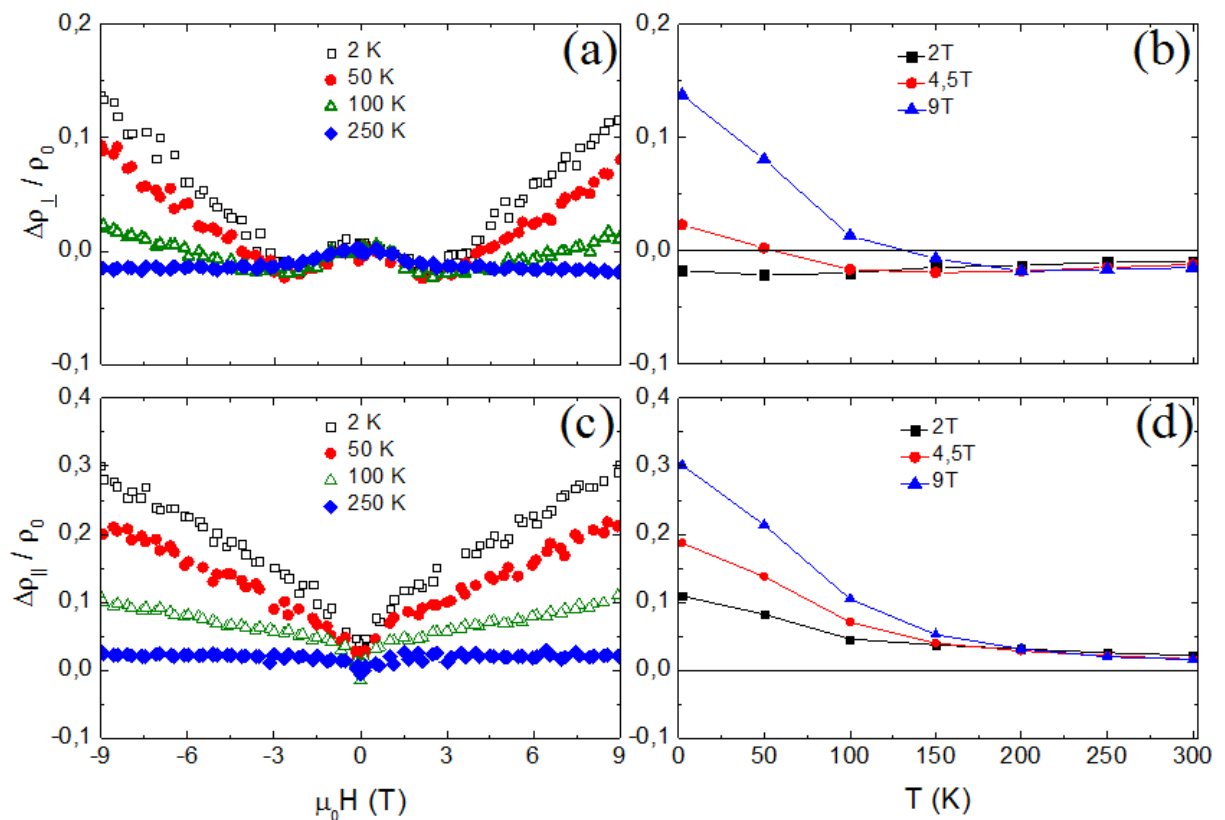


Figura 4.12: Medidas representativas das experiências de magnetorresistência em função do campo magnético para a liga de Co-Fe 4 at % (figuras (a) e (c)) nas temperaturas indicadas. As medidas de MR na geometria transversal em função do campo magnético estão representadas na figura (a) e as medidas de MR na geometria longitudinal estão representadas na figura (c). A variação da MR nas geometrias transversal e longitudinal em função da temperatura para os campos magnéticos $\mu_0 H = 2, 4,5$ e 9 T, estão representados nas figuras (b) e (d), respectivamente.

A amostra de Co-Fe x at % com $x = 6$ apresenta um comportamento similar às anteriores. A contribuição negativa à MRT em baixos campos se torna ainda mais pronunciada. Como nos casos anteriores, a MRL é sempre positiva.

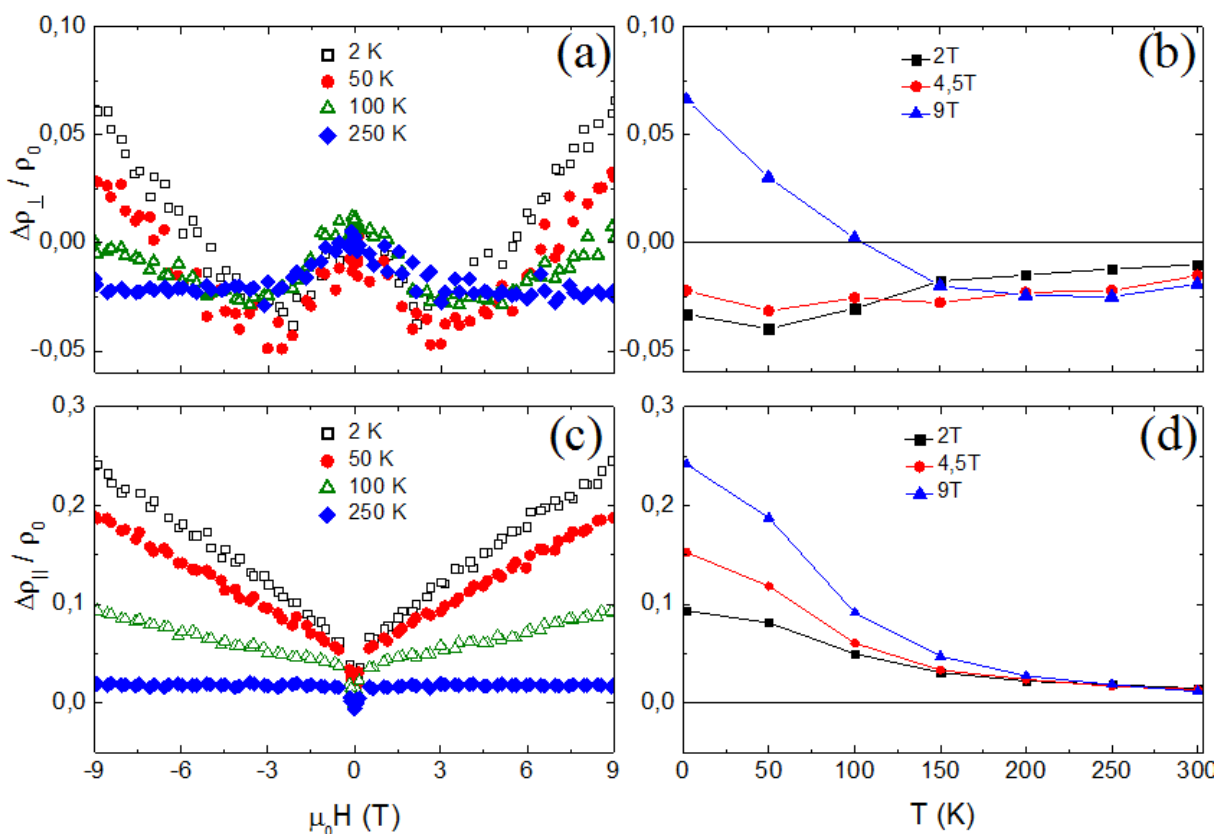


Figura 4.13: Medidas representativas das experiências de magnetorresistência em função do campo magnético para a liga de Co-Fe 6 at % (figuras (a) e (c)) nas temperaturas indicadas. As medidas de MR na geometria transversal em função do campo magnético estão representadas na figura (a) e as medidas de MR na geometria longitudinal estão representadas na figura (c). Os gráficos da MR na geometria transversal e longitudinal em função da temperatura para os campos magnéticos $\mu_0 H = 2, 4,5$ e 9 T, estão representados nas figuras (b) e (d), respectivamente.

4.2.3 – Anisotropia da Magnetorresistência

A anisotropia da magnetorresistência em função do campo aplicado para as amostras de $\text{Co-Fe } x \text{ at } \%$ é mostrada nas figuras (4.14). As anisotropias são determinadas pela diferença entre as curvas MRT e MRL, medidas em temperatura fixa e campo variável.

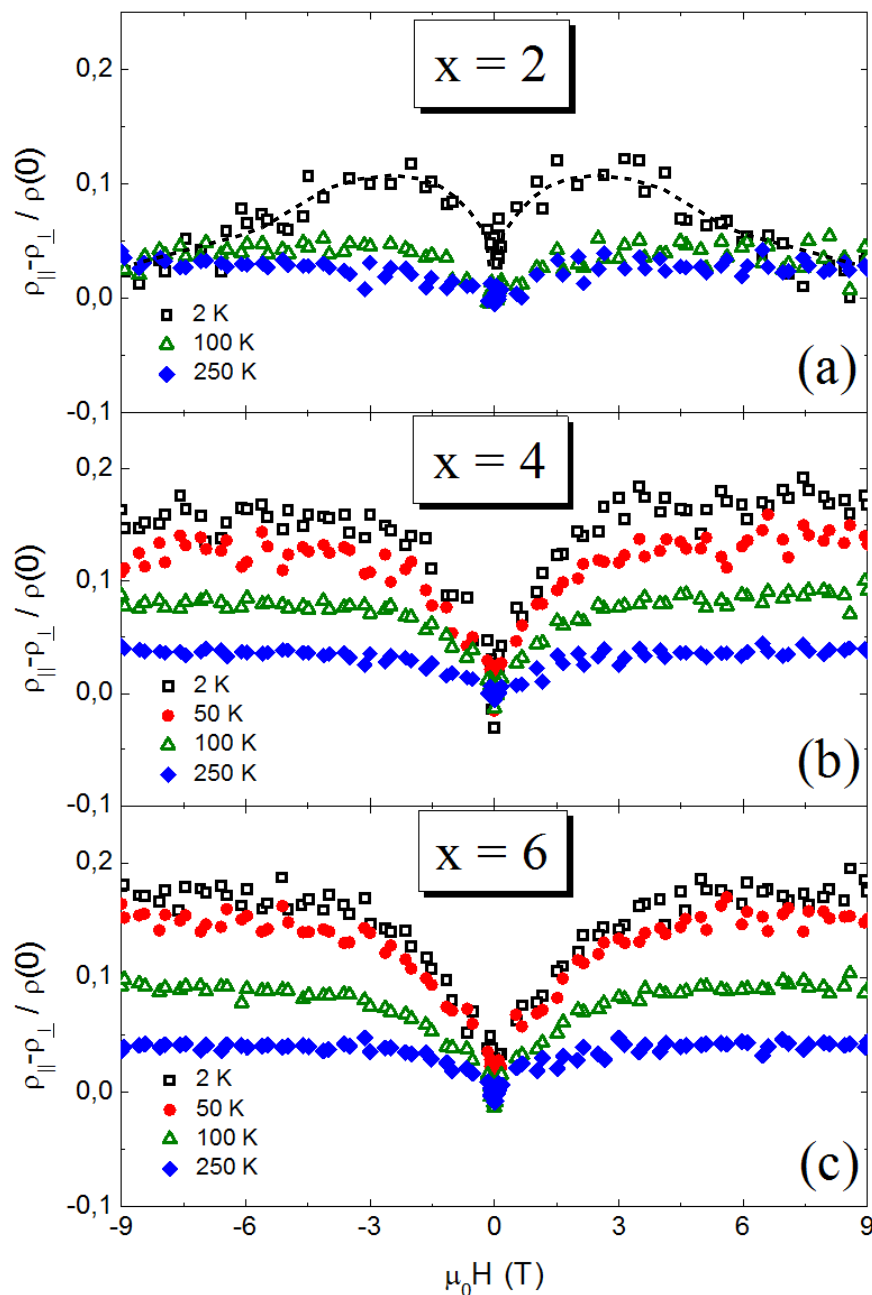


Figura 4.14: Anisotropia da magnetorresistência (AMR) em função do campo magnético para as ligas de $\text{Co-Fe } x \text{ at } \%$ em diferentes temperaturas. A linha tracejada no caso da amostra de $x = 2$ é guia para os olhos.

As curvas da figura (4.14) evidenciam dois tipos diferentes de comportamento. Na amostra com $x = 2$ a anisotropia é fraca e mostra uma competição entre contribuições positiva e negativa. Por outro lado, nas amostras com $x = 4$ e $x = 6$ a anisotropia é sempre positiva, tende a saturar em altos campos magnéticos e é praticamente independente da contribuição de impurezas. Provavelmente estas diferenças qualitativas estão relacionadas com as predominâncias da fase hcp na amostra com $x = 2$ e cfc nos outros dois sistemas (ver pág. 30).

4.2.4 – Efeito Hall

As medidas de resistividade de Hall para as ligas de Co-Fe x at % estão apresentadas nas figuras (4.15), (4.16) e (4.17).

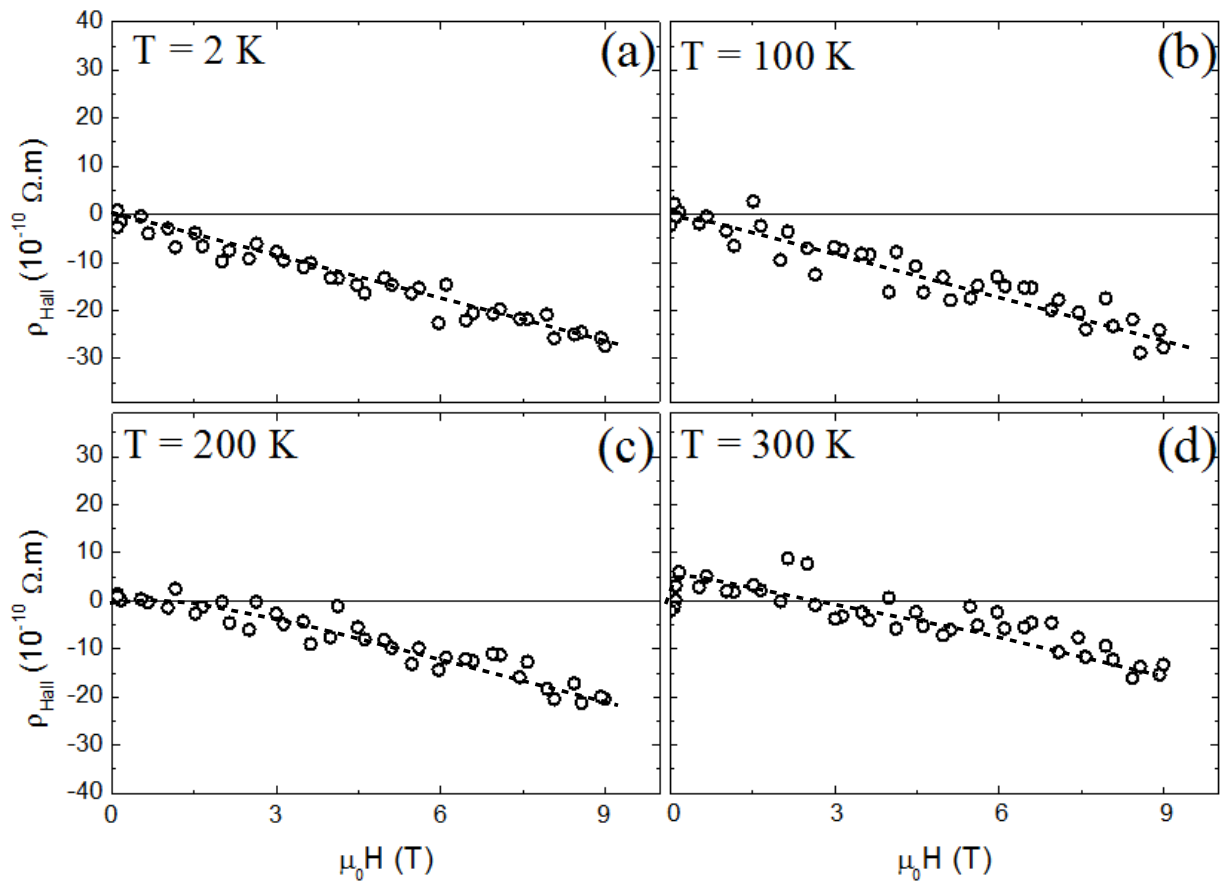


Figura 4.15: Medidas representativas das experiências de resistividade de Hall realizadas na amostra Co-Fe 2 at % em função do campo magnético aplicado em diferentes temperaturas. As linhas tracejadas são guias para os olhos.

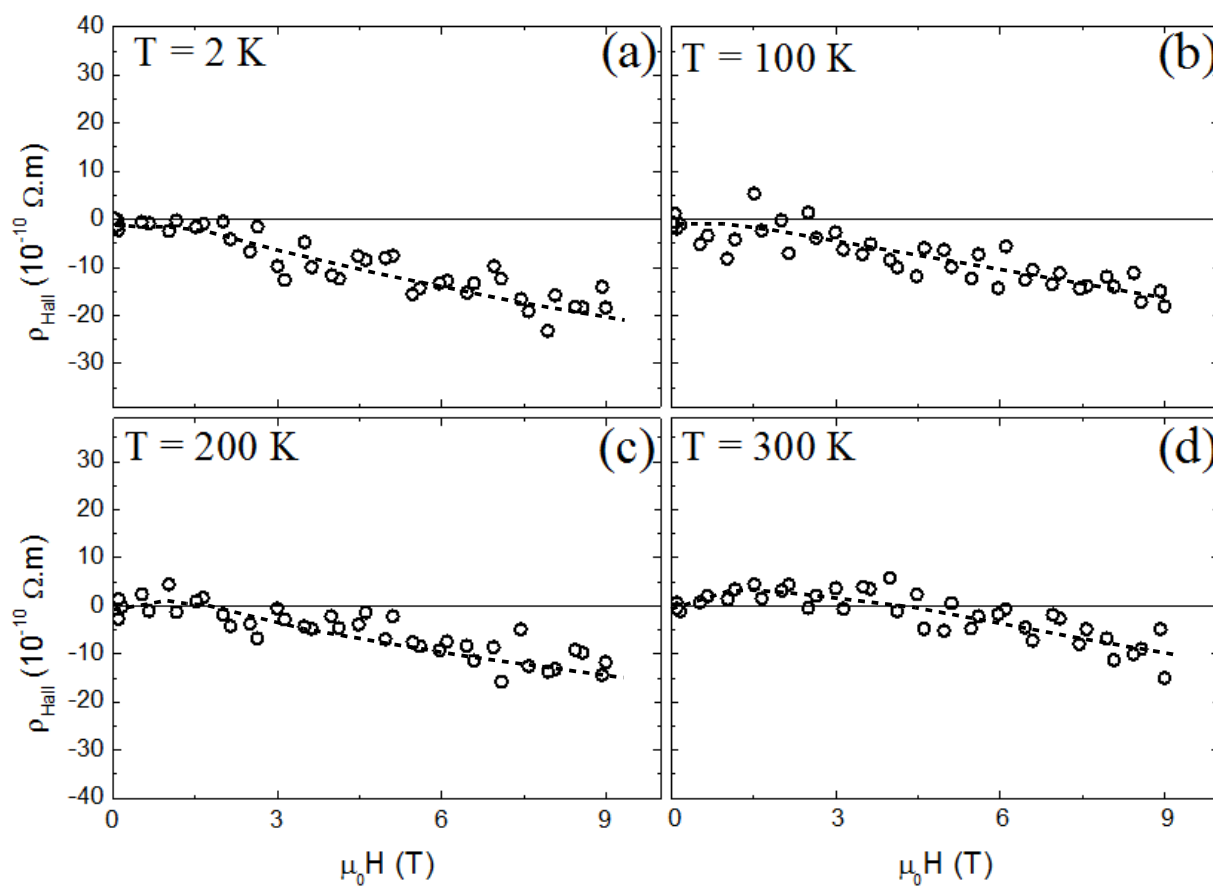


Figura 4.16: Medidas representativas das experiências de resistividade de Hall realizadas na amostra Co-Fe 4 at % em função do campo magnético aplicado em diferentes temperaturas. As linhas tracejadas são guias para os olhos.

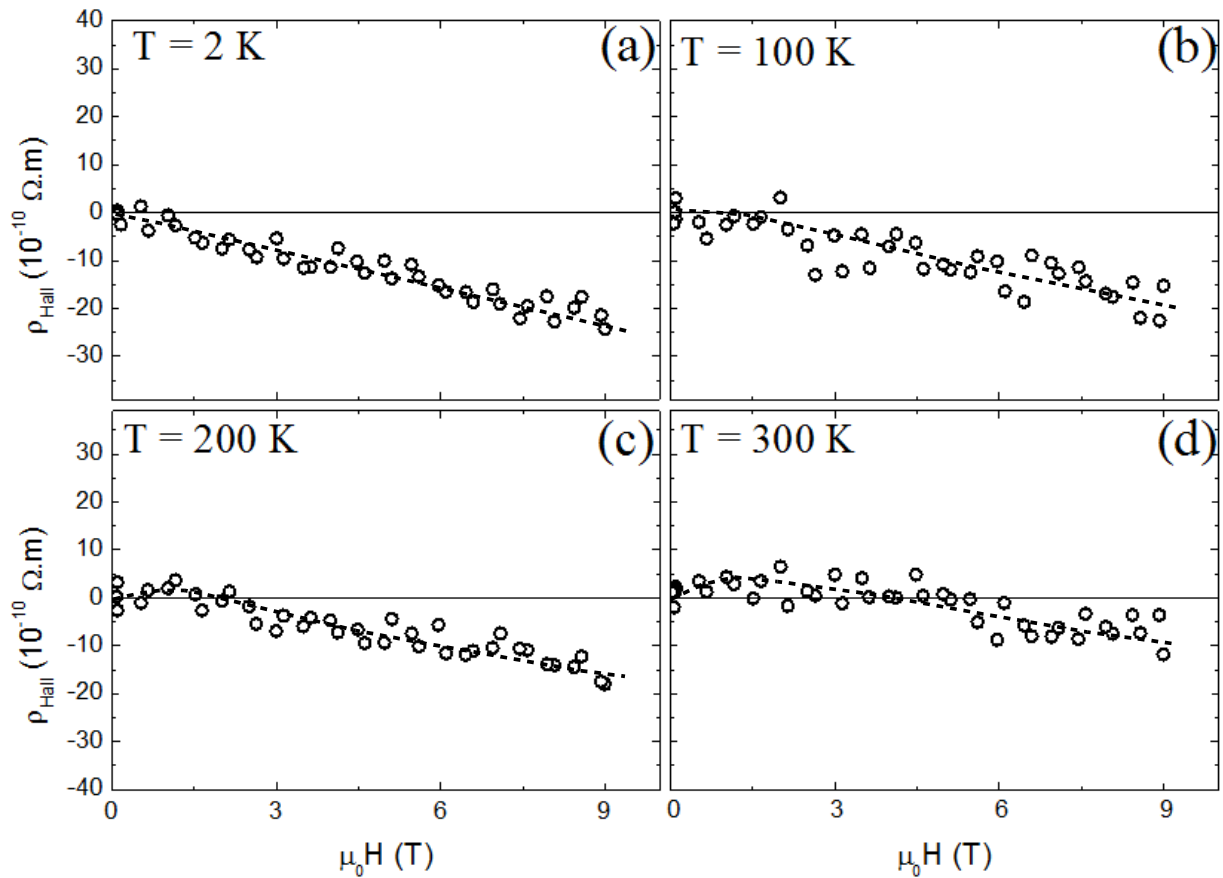


Figura 4.17: Medidas representativas das experiências de resistividade de Hall realizadas na amostra Co-Fe 6 at % em função do campo magnético aplicado em diferentes temperaturas. As linhas tracejadas são guias para os olhos.

Não se verifica variações significativas no comportamento da resistividade de Hall ao longo da série de ligas de Co-Fe estudada, tanto em função do campo magnético quanto em função da temperatura (figura (4.18)). A inclinação negativa da resistividade de Hall mostra que os portadores de carga são predominantemente elétrons. Em $T = 200$ K e $T = 300$ K uma pequena contribuição positiva para a ρ_{Hall} é observada na região de baixos campos nas amostras com $x = 4$ e $x = 6$.

Na figura (4.18) mostra-se a magnitude da resistividade de Hall medida em $\mu_0 H = 9$ T em função da temperatura para as três ligas estudadas.

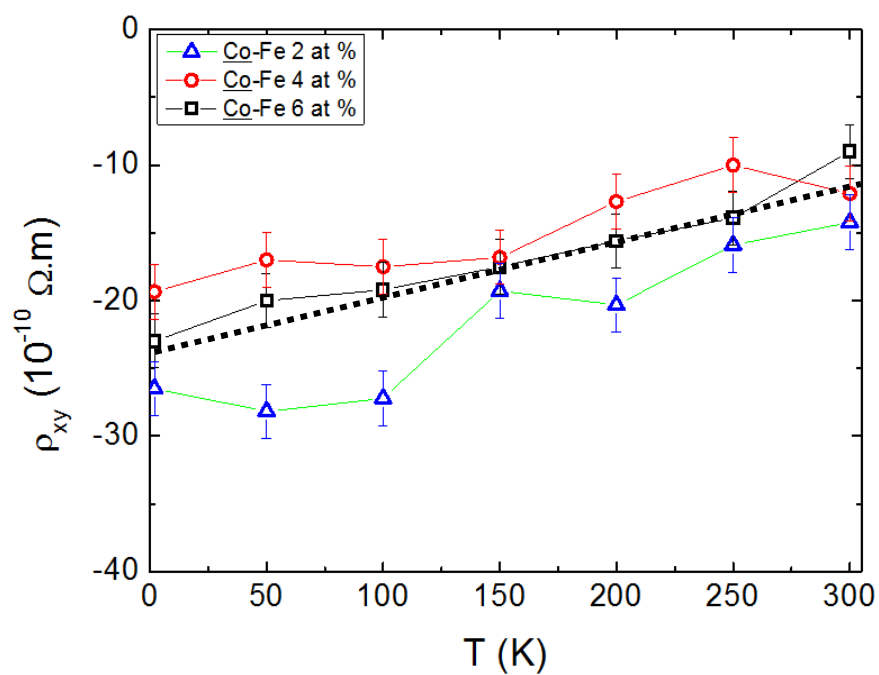


Figura 4.18: Medidas representativas da resistividade de Hall em função da temperatura no campo fixo $\mu_0 H = 9 T$. A linha tracejada é um para os olhos.

5 – Análise e Discussão dos Resultados

Neste capítulo os resultados experimentais são analisados e interpretados com base nos conceitos e mecanismos teóricos discutidos no capítulo 2. Procura-se identificar as contribuições magnética e da força de Lorentz à magnetorresistência e as contribuições ordinária e anômala ao efeito Hall do composto Heusler Pd₂MnSn e das ligas de Co-Fe. Inicia-se com a caracterização dos sistemas estudados através da análise das medidas de resistividade elétrica e de magnetização. Posteriormente, discute-se os resultados de magnetorresistência e de efeito Hall. Tal como feito na apresentação dos resultados, o capítulo é separado em duas seções. A primeira seção contém a análise e discussão dos resultados obtidos para o composto Heusler Pd₂MnSn e a segunda contém a análise e discussão relativas às ligas de Co-Fe x at % ($x = 2, 4$ e 6).

5.1 – Composto de Heusler Pd₂MnSn

5.1.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização DC

O composto Heusler Pd₂MnSn apresenta uma transição ferromagnética em torno de 189 K [35], que pode ser vista nas medidas de resistividade elétrica e de magnetização em função da temperatura no capítulo de resultados. No entanto, para se obter uma identificação mais precisa da temperatura de transição do Pd₂MnSn é interessante realizar análises da derivada da resistividade elétrica e da magnetização em relação à temperatura. A figura (5.1) mostra a medida de resistividade elétrica do Pd₂MnSn e a sua derivada em função da temperatura.

Conforme se aumenta a temperatura, uma alteração significativa no comportamento de $\rho(T)$ (ver figura (4.1)) é percebida em torno da temperatura de transição magnética. A mudança de ordem magnética torna-se mais evidente quando se observa a derivada da resistividade em relação à temperatura ($d\rho/dT$), mostrada na figura (5.1). Esta derivada apresenta um pico pronunciado em torno de 185 K, e tende para um valor constante em

temperaturas superiores à 300 K. Este comportamento evidencia a ocorrência de uma transição de fase magnética nas vizinhanças da temperatura do pico. Nesta região, as flutuações que dominam o comportamento da contribuição magnética ao calor específico também são responsáveis pelo espalhamento eletrônico. Assim, o comportamento crítico do calor específico eletrônico nas vizinhanças da transição de fase ferromagnética é reproduzido em $d\rho/dT$ [36]. Em geral, o pico em $d\rho/dT$ ocorre numa temperatura pouco inferior a T_c , tal como se observa na figura (5.1)[37].

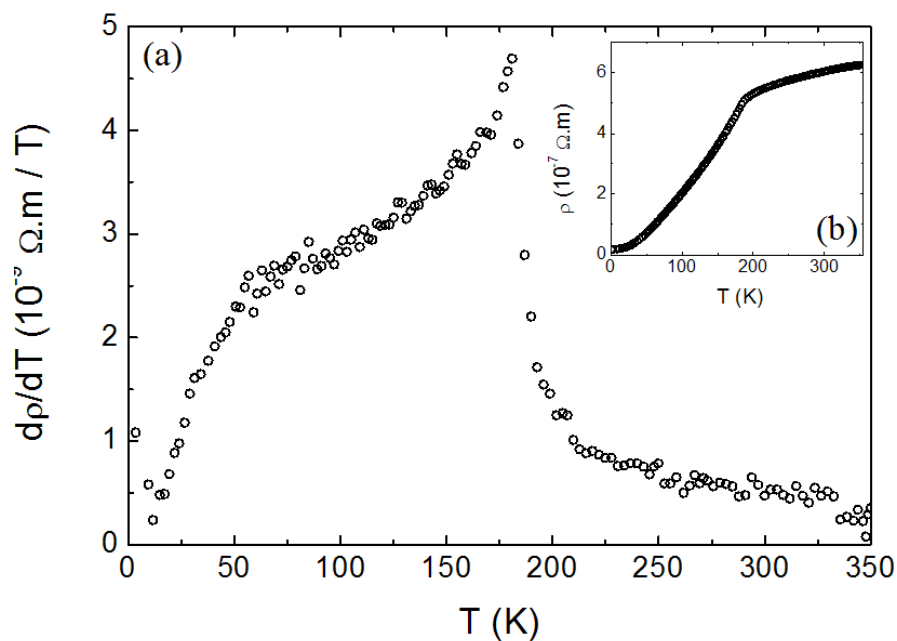


Figura 5.1: (a) Comportamento da derivada $d\rho/dT$ em função de T no Pd₂MnSn na ausência de campo magnético. (b) A inserção no gráfico mostra a resistividade em função de T .

A resistividade elétrica ideal do Pd₂MnSn (descontada a resistividade elétrica residual) apresenta um comportamento que pode ser descrito qualitativamente por leis de potência em temperatura ($\rho_i(T) \sim T^n$), como mostra a figura (5.2). Este comportamento concorda com observações reportadas na literatura [25] [37].

De acordo com a figura (5.2), pode-se dividir a dependência em temperatura da resistividade elétrica do Pd₂MnSn em três regiões. Em temperaturas inferiores à 50 K observa-se um regime caracterizado por $n \approx 2,7$. Em temperaturas intermediárias (entre 50 K e 190 K) o expoente é $n \approx 1,6$. A terceira região, com $n \approx 0,3$, caracteriza o intervalo de temperaturas superiores à 190 K.

Na primeira região, $T < 50$ K , o espalhamento por magnons é o processo dominante na resistividade elétrica. Embora um valor $n \approx 2$ fosse esperado neste caso, trabalhos anteriores encontraram expoentes entre 1,7 e 3 para os compostos de Heusler [37]. C.M. Hurd e col. [25] sugerem que este valor é uma possível combinação dos termos com $n = 2$, para o espalhamento elétron-magnon ou elétron-elétron, com o termo característico do espalhamento elétron-fônon, para o qual $n = 5$ [9]. Outra possibilidade, conforme será discutido adiante, é que o comportamento aproximadamente proporcional a T^3 seja originado pelo termo de mistura de spins, proposto no modelo de duas correntes de Campbell e Fert [13].

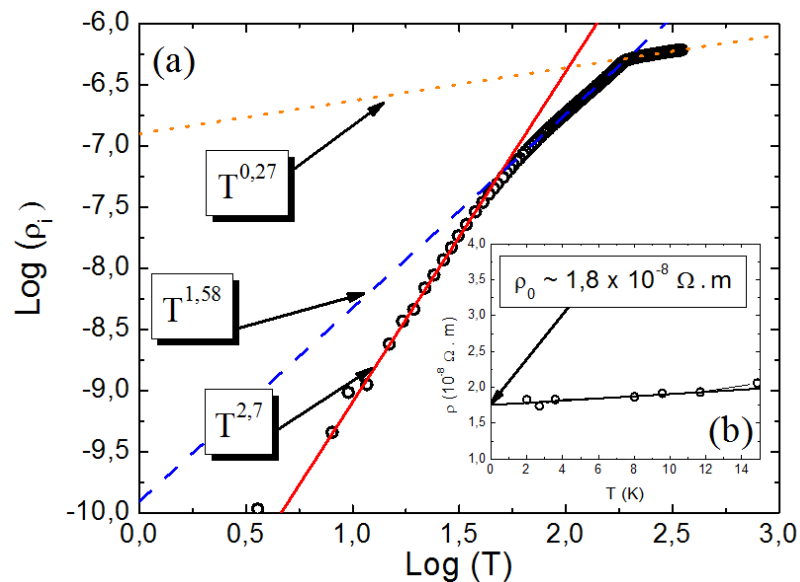


Figura 5.2: (a) Logaritmo da resistividade elétrica ideal ($\rho_i(T)$) em função do logaritmo da temperatura e os regimes em lei de potência observados. (b) O inserto mostra a determinação da resistividade residual a partir da extrapolação da resistividade total ($\rho(T)$) para $T = 0$ no regime de baixas temperaturas. A resistividade ideal foi obtida de $\rho_i(T) = \rho(T) - \rho_0$.

No intervalo de temperaturas entre 50 K e 190 K, onde $n \approx 1,6$, a contribuição resistiva devida à desordem de spin é largamente dominante. O espectro de magnons está fortemente excitado e o processo de espalhamento elétron-magnon produz uma resistividade que efetivamente varia de modo proporcional a $T^{1.6}$. C. M. Hurd e col. [25] afirmam que o comportamento resistivo com o expoente $n \approx 1,6$ é uma propriedade geral para ferromagnetos. Esta proposta é baseada na observação de valores muito próximos a 1,6 em outros sistemas metálicos (por exemplo, o composto de Heusler Ni_2MnSn [38]).

Os efeitos de flutuações relacionados à desordem de spin também se manifestam na

curvatura negativa de $\rho(T)$, caracterizada pelo expoente $n \approx 0,3$ e observada em temperaturas superiores a 190 K. No caso ideal, a contribuição da desordem de spin para a resistividade elétrica, ($\rho_m(T,B)$), tenderia a um valor constante em temperaturas superiores à T_c [23]. No entanto, efeitos de flutuações termodinâmicas são percebidos em $\rho_m(T,B)$ mesmo em temperaturas bem superiores à T_c . Somente para $T > 330$ K (figura (5.3)), verifica-se o comportamento linear com a temperatura esperado para a resistividade elétrica originada pelos efeitos de espalhamento eletrônico por fônons ($n = 1$) [9].

Descontando a resistividade residual ρ_0 – determinada por extrapolação de comportamento da resistividade elétrica em baixas temperaturas (ver figura(5.2.b)) – e estimando a resistividade devida ao espalhamento por fônons, $\rho_f(T)$, através da extrapolação do comportamento linear de altas temperaturas, pode-se construir a figura (5.3), na qual se nota que a maior contribuição para a resistividade elétrica do Pd₂MnSn na região de temperaturas $T \geq 50$ K deve-se ao termo de desordem de spin. Este termo é estimado através da subtração $\rho_m(T) = \rho_i(T) - \rho_f$.

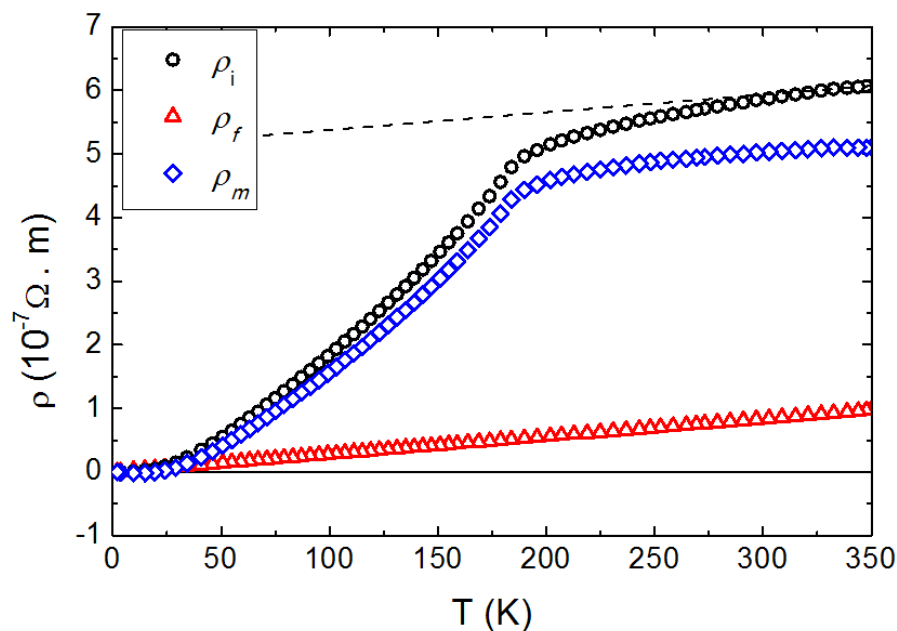


Figura 5.3: Resistividade elétrica ideal no Pd₂MnSn (círculos). Estimativas para a contribuição da desordem de spin, $\rho_m(T)$ (losangos) e para a contribuição da interação elétron-fônon $\rho_f(T)$ (triângulos). Esta última é extrapolada a partir do comportamento linear de alta temperatura observado na resistividade ideal medida (ver linha tracejada).

A transição ferromagnética do Pd₂MnSn é marcante nas medidas de magnetização. Conforme mostra a figura (5.4), a derivada da magnetização em relação à temperatura apresenta um pico acentuado em $T = 188$ K, que denota, aproximadamente, a posição de T_c .

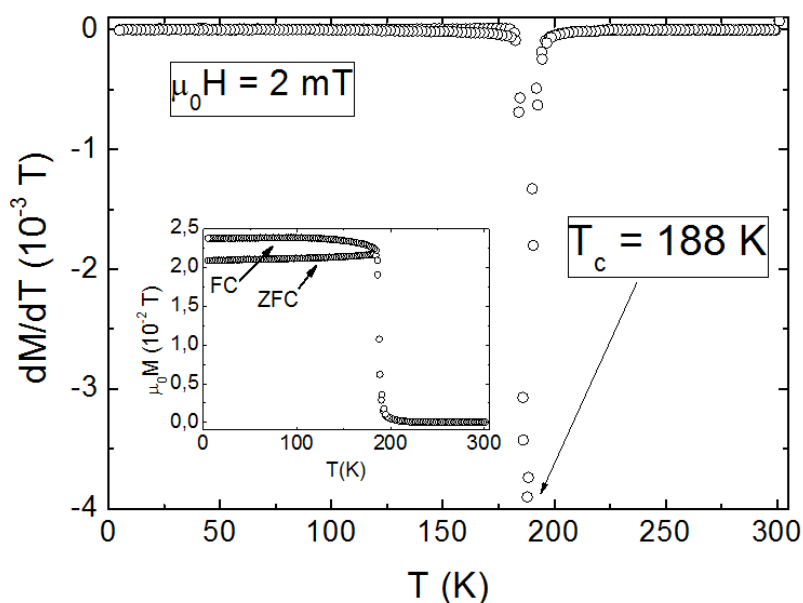


Figura 5.4: Derivada da magnetização em função da temperatura para o Pd₂MnSn. A derivada foi determinada a partir de medidas realizadas em campo magnético aplicado de 20 Oe (ver inserto).

Na fase ferromagnética, pode-se dividir o comportamento da magnetização $M(H)$ nos regimes de baixos e altos campos magnéticos (figura (4.3)). O primeiro regime é caracterizado pela alta susceptibilidade magnética que descreve o processo de orientação dos domínios magnéticos na direção do campo aplicado externamente. No segundo regime, a magnetização tende à saturação M_S .

Para determinar os valores da M_S em função da temperatura foram utilizadas as curvas de M versus H na fase ferromagnética (figura (4.3.a)) em $T \ll T_c$. Os valores de $M_S(T)$ foram normalizados pela medida de mais baixa temperatura ($M_S(T = 5$ K)) e o resultado pode ser visto na figura (5.5.a). A linha na figura (5.5.a) é apenas um guia para os olhos.

Para se obter a constante de Curie e a temperatura crítica construiu-se o gráfico do inverso da susceptibilidade (χ) em função da temperatura fazendo uso das experiências de magnetização DC na fase paramagnética (figura (4.3.b)). A lei de Curie-Weiss é válida quando

a resposta magnética é linear com o campo magnético. Retas foram ajustadas aos pontos experimentais (figura (5.6)) para auxiliar na determinação do valor da susceptibilidade no intervalo de temperaturas e campos em que a lei de Curie-Weiss é válida. As susceptibilidades estimadas a partir dos resultados da figura (5.6) estão representados na forma $1/\chi$ versus T na figura (5.5.b). O ajuste da reta aos pontos experimentais fornece $T_c = 190 (\pm 3) \text{ K}$ e $C = 1,02 (\pm 0,08) \text{ K}$, onde C é a constante de Curie. A partir desta constante, que é definida

como $C = \frac{\mu_0 n \mu_m^2}{3 k_B}$, onde n é a número de íons magnéticos por volume de célula unitária, μ_0

é a permeabilidade magnética no vácuo, k_B é a constante de Boltzman e μ_m é o momento magnético, é possível estimar o momento magnético por átomo de Mn. Encontra-se o valor de $\mu_m \approx 5 \mu_B$, que está em acordo com a literatura e indica que o momento magnético do Mn no Pd₂MnSn se comporta como um spin puro ($s = 5/2$, $L = 0$)[25].

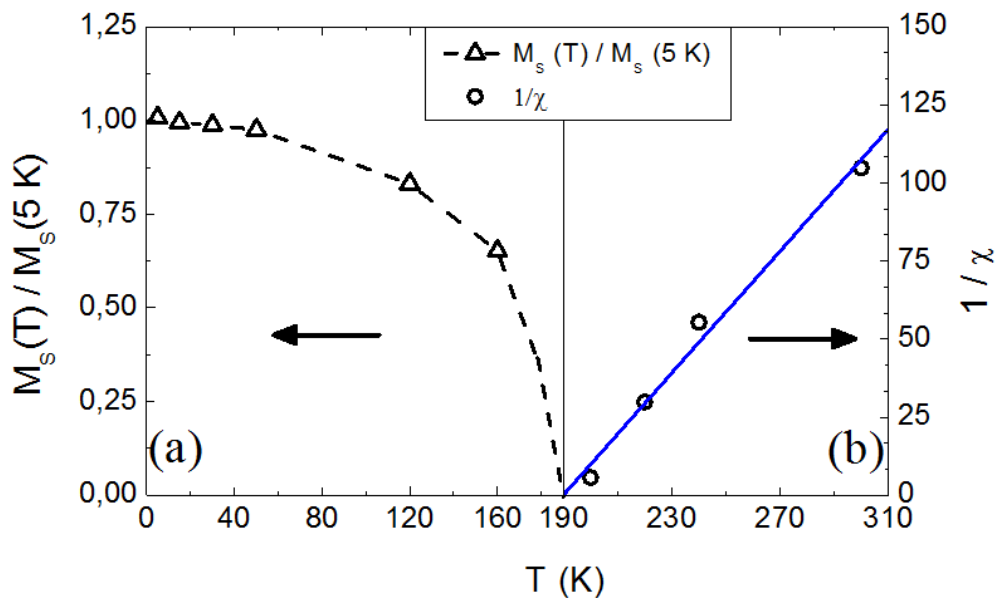


Figura 5.5: Curvas obtidas das medidas das medidas de magnetização no Pd₂MnSn. Em (a) é mostrada a magnetização de saturação em função da temperatura normalizada pela magnetização medida na temperatura mais baixa (5 K). A linha tracejada é um guia para os olhos. Em (b) tem-se o inverso da susceptibilidade magnética em função da temperatura. A linha contínua é um ajuste à lei de Curie-Weiss.

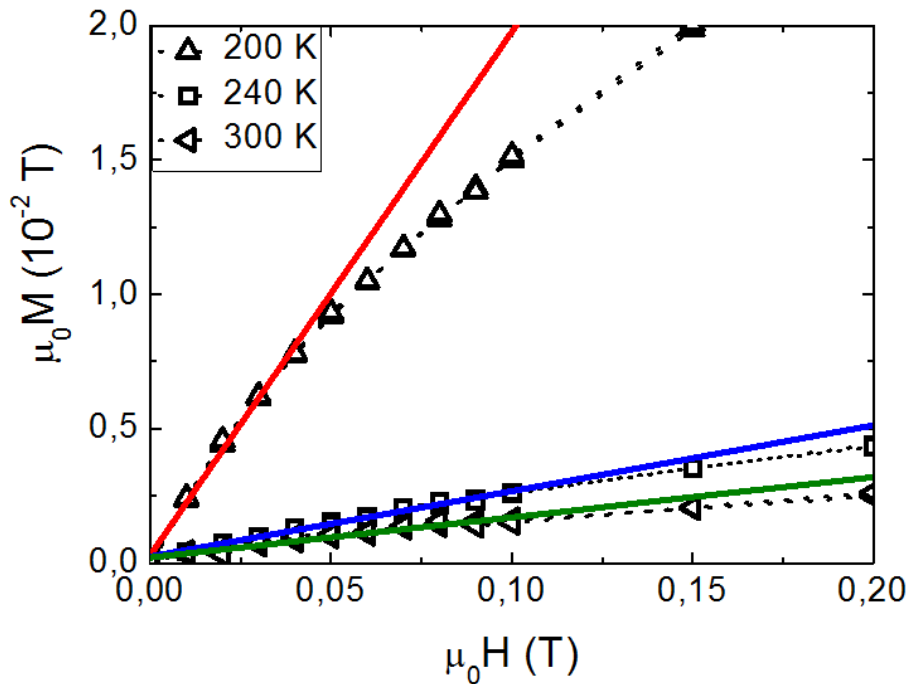


Figura 5.6: Medidas representativas de magnetização DC em função do campo magnético realizadas no Pd₂MnSn na fase paramagnética. Os ajustes lineares para o regime de baixos campos magnéticos aplicados estão representados pelas linhas contínuas. As linhas tracejadas são guias para os olhos.

5.1.2 – Magnetorresistência

No intuito de realizar uma análise inicial dos resultados da magnetorresistência no composto de Heusler Pd₂MnSn apresentados nas figuras (4.4), (4.5) e (4.6), supõe-se que o comportamento de alto campo ($\mu_0 H > 2$ T) obedece à lei de potências

$$\Delta \rho \sim \beta H^\lambda \quad , \quad (5.1)$$

onde o parâmetro β é independente do campo.

Na figura (5.7) são apresentados exemplos representativos de gráficos logarítmicos de $\Delta \rho_\perp$ em função de H em diversas temperaturas. Estes gráficos permitem que os parâmetros λ e β sejam estimados em diferentes temperaturas.

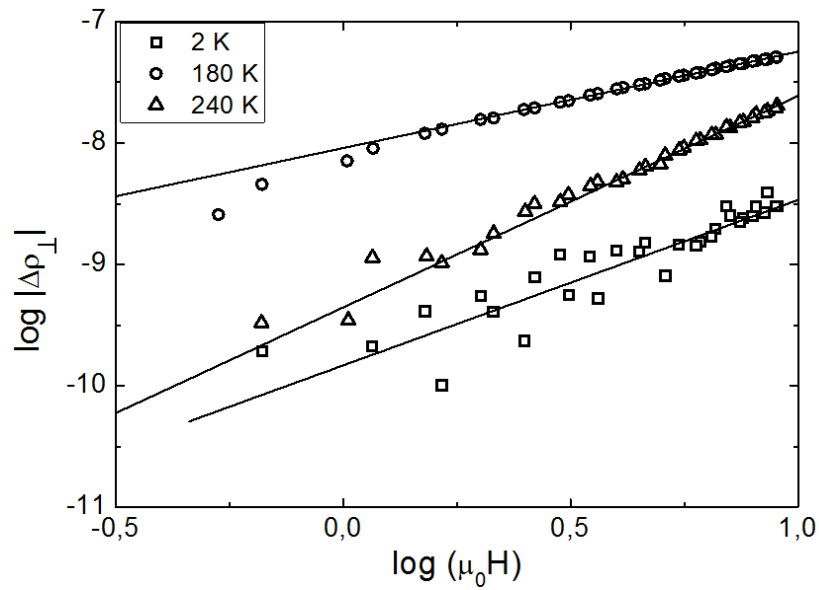


Figura 5.7: Comportamento do logaritmo do módulo $\Delta\rho_{\perp}$ do Pd₂MnSn em função do logaritmo do campo magnético aplicado nas temperaturas indicadas. As linhas contínuas são ajustes lineares feitos aos pontos experimentais com base na equação (5.1). Os ajustes consideram apenas o comportamento da MRT para altos campos magnéticos ($\mu_0 H > 2$ T).

Na figura (5.8.a) e (5.8.b) estão mostrados a amplitude β e o expoente efetivo λ , respectivamente, determinados para as várias temperaturas estudadas no intervalo entre 2 K e 300 K. Estas figuras sugerem que a análise dos resultados de MR pode ser dividida segundo três intervalos de temperatura, tal como no caso da discussão sobre a resistividade elétrica.

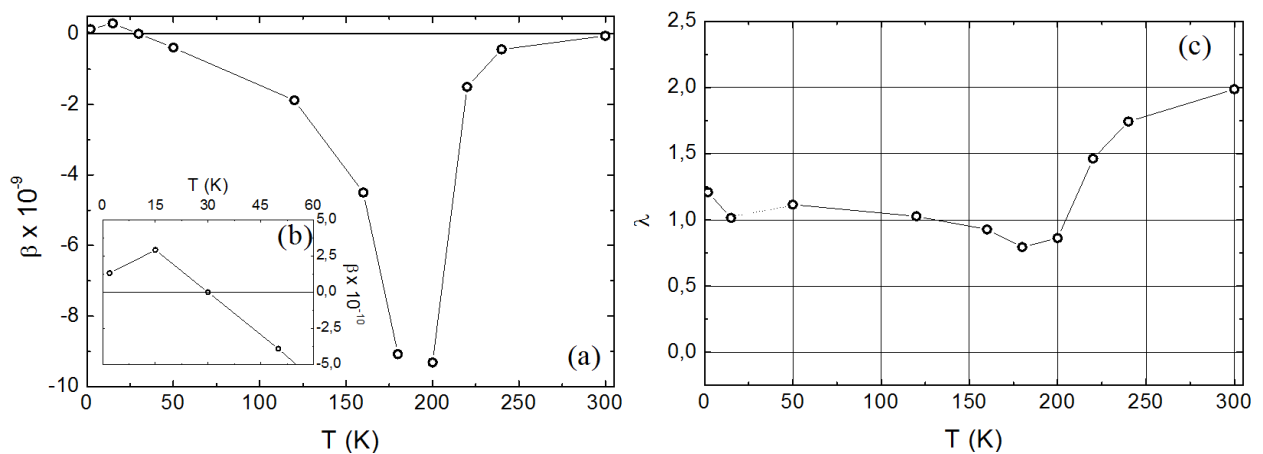


Figura 5.8: (a) Coeficiente β da MRT do Pd₂MnSn (ver equação (5.1)) em função da temperatura. (b) O inserto mostra em escala ampliada o comportamento de β em baixas temperaturas. (c) Expoente λ em função da temperatura.

No regime de baixas temperaturas ($T = 2$ K e $T = 15$ K) a MRT é positiva ($\beta > 0$) e o expoente λ é próximo a 1. Embora a magnitude da MR relativa nesta região seja comparável com os resultados em mais altas temperaturas (figura (4.4)), a MRT absoluta ($\Delta\rho = \rho(H) - \rho(0)$) é pequena se comparada às medidas efetuadas em temperaturas superiores a 50 K (figura (5.8)).

A isotropia da MR (a figura (4.6) mostra que a MRT e a MRL são praticamente idênticas em todo o intervalo de temperatura estudado) e o crescimento quase linear com H no regime de altos campos magnéticos sugerem que a contribuição positiva da MR em baixas temperaturas ($T < 30$ K) tem origem magnética.

O cálculo de estrutura eletrônica para o Pd₂MnSn [39] (figura (5.9)) mostra que a densidade de estados para spins minoritários é quase duas vezes maior que para os spins minoritários no nível de Fermi. Isto indica que a mobilidade para a sub-banda de elétrons majoritários é maior do que a mobilidade dos elétrons minoritários ($\mu_{\downarrow} < \mu_{\uparrow}$), desde que se considere válida a situação usual para condutores metálicos, onde $\frac{1}{\tau_{\sigma}} \sim D_{\sigma}(\epsilon_F)$ (sendo τ_{σ} o tempo de relaxação dos elétrons da sub-banda de spin σ , $D_{\sigma}(\epsilon_F)$ a densidade de estados por direção de spin no nível de Fermi para a sub-banda σ). Usando este resultado na expressão (2.24), que descreve a contribuição da condução por duas correntes proposta por Onose e col.[24], implicaria numa contribuição negativa à MR, a qual não é observada em baixas temperaturas.

O modelo de Onose e col., no entanto, não leva em conta o termo de mistura de spins proposto por I. A. Campbell e A. Fert [13], presente na expressão (2.5). No limite de baixas temperaturas, onde $\rho_{\uparrow\downarrow}$ é pequeno frente à ρ_{\uparrow} e ρ_{\downarrow} , a equação (2.5) pode ser aproximada como

$$\rho \simeq \frac{\rho_{\uparrow}\rho_{\downarrow}}{\rho_{\uparrow} + \rho_{\downarrow}} + \rho_{\uparrow\downarrow} . \quad (5.2)$$

O modelo de Onose e col. descreve os efeitos do campo magnético no primeiro termo da equação (5.2). A aplicação de um campo magnético tende a transferir elétrons da sub-banda minoritária para a majoritária por ação do efeito Zeeman (ver figura (5.9)). No Pd₂MnSn, os elétrons no nível de Fermi são de natureza **s** e **p**. Desta forma, espera-se que um campo externo polarize fracamente estes elétrons, como acontece em um paramagneto de

Pauli. Esta suposição é corroborada pelos resultados de magnetização em $T = 5$ K, mostrados na figura (4.3.a), onde o pequeno termo de Pauli, $\delta M = \chi_p \mu_0 H$ (χ_p é a susceptibilidade de Pauli), sequer pode ser distinguido se sobrepondo à magnetização saturada de alto campo. Por outro lado, a aplicação do campo magnético tende a reforçar a corrente não-dissipativa entre os elétrons das sub-bandas de spin \uparrow e spin \downarrow (esquematizado na figura (5.9)), a qual é controlada pela razão de relaxação $\frac{1}{\tau_{\uparrow\downarrow}}$. Este argumento sugere que $\rho_{\uparrow\downarrow}$ tende a aumentar linearmente com o campo externo. Portanto, este termo pode ser parcialmente responsável pela MR positiva observada no Pd₂MnSn em baixas temperaturas.

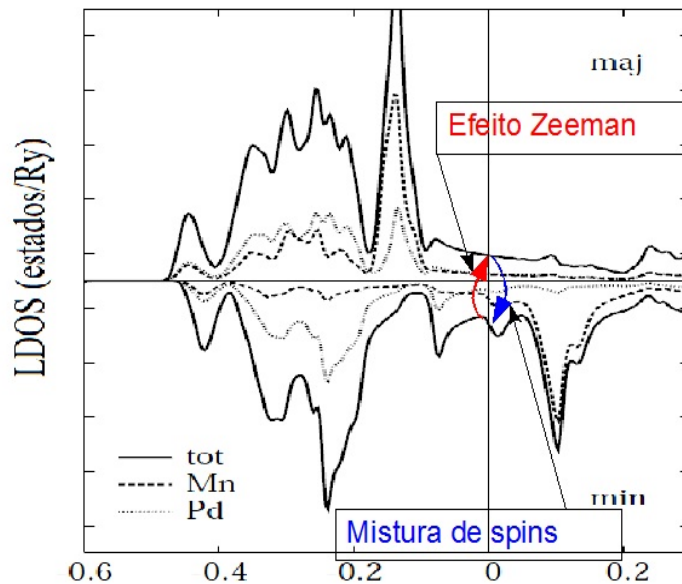


Figura 5.9: Densidade de estados total e contribuição do Pd e Mn para elétrons majoritários e minoritários no Pd₂MnSn [39]. Representação esquemática do efeito Zeeman e do processo de mistura de spins no Pd₂MnSn.

A hipótese de que o transporte eletrônico neste composto é dependente do termo de mistura de spins em baixas temperaturas é consistente com o comportamento da resistividade, que varia como $T^{2.7}$ nesta região. Previsões teóricas [40] e resultados em ligas de Ni [13] mostram que $\rho_{\uparrow\downarrow}$ pode aumentar em função da temperatura segundo leis de potências com expoente maiores que 2.

O termo resistivo dependente da desordem de spin tende a se tornar dominante à

medida que a temperatura aumenta, conforme discussão da seção 5.1.1. Em outras palavras, o aumento da temperatura produz um aumento nas razões de relaxação $\frac{1}{\tau_\sigma}$ ($\sigma = \uparrow, \downarrow$). A aplicação de um campo magnético externo restaura o ordenamento de spins e produz MR negativa, conforme discussão da seção 2.3.3.2. Por coincidência, a contribuição negativa devida à supressão da desordem de spin anula quase exatamente a pequena MR positiva originada pelo termo de mistura de spin em $T = 30$ K. Por esta razão, a MR medida nesta temperatura é aproximadamente nula, conforme mostra a figura (4.4). A competição entre os mecanismos magnetorresistivos relacionados ao termo de mistura de spin e à supressão da desordem de spin se traduz na mudança de sinal do coeficiente β em $T = 30$ K, conforme mostra a figura (5.8.a). Ressalta-se, no entanto, que as limitações do equipamento impedem que seja feita uma medida quantitativa do valor efetivo de λ nesta temperatura. Este fato é simbolizado pela reta tracejada ligando os valores de λ entre $T = 15$ K e $T = 50$ K na figura (5.8.c).

Para temperaturas superiores a 50 K, a aproximação de que o termo de mistura de spins é muito menor que as resistividades das sub-bandas não é mais válida e a equação (5.2) não pode ser aplicada. No entanto, pode-se utilizar a expressão (2.23) para a resistividade elétrica devido à desordem de spin (ρ_m) para analisar o comportamento da MR neste regime de temperatura. Na medida em que se aumenta a temperatura para valores superiores a 50 K, ρ_m passa a dominar a resistividade elétrica. Consequentemente, a supressão da desordem de spin pelo campo aplicado origina a magnetorresistência negativa que passa a ser dominante em $T \geq 50$ K. Este mecanismo justifica os valores negativos de β mostrados na figura (5.8.a) nesta faixa de temperatura. Este resultado é consistente com as medidas de resistividade elétrica em função de T onde se verifica que ρ_m representa a maior contribuição para a resistividade total em quase todo o intervalo de temperaturas estudado.

Um extremo (mínimo) no valor de β é observado nas vizinhanças de T_c , como esperado no mecanismo de supressão da desordem de spin. Como discutido na seção 2.3.3.2, quando a desordem de spin é forte, ρ_m varia de modo aproximadamente proporcional a M^2 . Consequentemente, a MR devido à supressão da desordem de spin também deve ser aproximadamente proporcional a M^2 . Este comportamento é observado nos resultados de MR mostrados na figura (4.4) na faixa de temperatura entre 50 K e 200 K. Verifica-se, a exemplo

do que ocorre com a magnetização, que a magnetorresistência não atinge a saturação dentro da faixa de campos estudada no intervalo de temperaturas intermediárias ($50 \text{ K} < T < 200 \text{ K}$).

Na fase paramagnética, na faixa de temperaturas entre $T = 220 \text{ K}$ e $T = 300 \text{ K}$, o expoente tende ao valor $\lambda = 2$, indicando que ρ_m domina fortemente a MR mesmo nesta região. No estado paramagnético, a magnetização é aproximadamente linear com o campo externo no regime em que $\mu_B B/k_B T$ é pequeno. Assim, espera-se que a MR varie proporcionalmente a H^2 , como é efetivamente observado.

Para completar a discussão desta seção, deve-se mencionar que, segundo C. M. Hurd [15], a contribuição de Lorentz para a MR pode ser linear com H em amostras metálicas policristalinas em consequência de uma média de todos os possíveis comportamentos que podem ocorrer ao longo das diferentes orientações dos cristalitos que compõem a amostra. Dependendo da orientação relativa entre o campo magnético aplicado e os eixos cristalinos, a MR de Lorentz em monocristais pode ser independente de H ou depender quadraticamente de H . Com um modelo de superfície de Fermi aberta, Ziman [41] mostrou que a MR de Lorenz, mediada em todas as orientações relativas entre o campo e os eixos cristalinos, cresce linearmente com H . Esta predição foi confirmada experimentalmente por Gaidukov [15], que estudou o comportamento da MRT num monocristal de Au em que o campo foi aplicado em diferentes direções com relação aos eixos cristalinos da amostra. Porém, tais argumentos não podem ser aplicados ao Pd₂MnSn, uma vez que este composto apresenta superfícies de Fermi fechadas [42] em quase todas as zonas de Brillouin. Outro aspecto importante está associado ao fato de que o modelo de Ziman não considera efeitos da ordem magnética na resistividade elétrica que, como visto anteriormente, dominam fortemente a resistividade do Pd₂MnSn nos intervalos de temperaturas e campos estudados.

5.1.3 – Efeito Hall

5.1.3.1 – Efeito do Campo Desmagnetizante e Determinação dos Coeficientes de Hall Ordinário e Anômalo

Esta seção inicia com uma breve discussão descrevendo a obtenção das contribuições ao efeito Hall devido à magnetização e à força de Lorentz. A análise das medidas de efeito Hall nos sistemas estudados nesta dissertação está intimamente relacionada às medidas de magnetização. Para analisar o comportamento da magnetização nas medidas de efeito Hall do Pd₂MnSn, deve-se levar em conta os efeitos do campo desmagnetizante sobre a amostra. Tanto a forma da amostra quanto a orientação do campo magnético em relação aos seus eixos geométricos podem alterar consideravelmente o valor do campo magnético real por ela sentido. A relação entre o campo magnético aplicado (H_A), o campo magnético real (H) e o campo desmagnetizante (H_D) pode ser expressa como [43]

$$H = H_A + H_D \quad (5.3)$$

onde $H_D = -\eta M$, M é a magnetização e η é o fator desmagnetizante.

Para se determinar o valor da resposta magnética efetiva χ^* , que contém os efeitos do campo desmagnetizante, usa-se as definições

$$\chi = \frac{M}{H} \quad (5.4)$$

e

$$\chi_M = \frac{M_M}{H_A}, \quad (5.5)$$

onde χ é a susceptibilidade magnética do material, M_M é a magnetização medida e χ_M é a susceptibilidade magnética obtida experimentalmente com o magnetômetro de SQUID. Estas propriedades estão relacionadas através da relação

$$\chi_M = \frac{\chi}{(1 + \eta\chi)}. \quad (5.6)$$

Nas medidas de magnetização, o efeito do campo desmagnetizante é desprezado

($\eta \approx 0$) devido à forma cilíndrica e alongada das amostras, tornando a susceptibilidade magnética medida igual a susceptibilidade magnética real, ou seja, $\chi_M = \chi$. Por outro lado, pode-se escrever a susceptibilidade efetiva para as medidas de efeito Hall, em que o fator desmagnetizante é máximo ($\eta = 1$), em função da susceptibilidade real como

$$\chi^* = \frac{\chi}{1 + \chi} \quad , \quad (5.7)$$

ou seja,

$$\chi^* = \frac{M}{H + M} \quad . \quad (5.8)$$

Os resultados de χ^* em função do campo magnético para as várias temperaturas fixas estão mostrados na figura (5.10). Na medida em que o campo magnético é aumentado, na fase ferromagnética (figura (5.10.a)), χ^* decresce rapidamente do valor unitário para valores próximos à 0,1 em $\mu_0 H_A \cong 5$ T. Na fase paramagnética (figura (5.10.b)), χ^* decresce com H ainda mais rapidamente, e, nas temperaturas mais elevadas torna-se aproximadamente constante no intervalo $\mu_0 H_A \geq 1$ T.

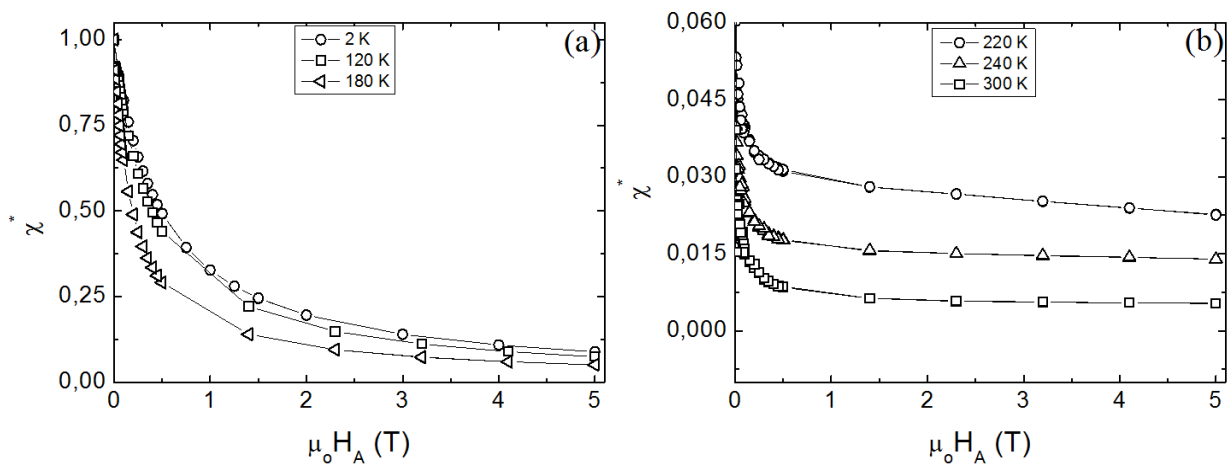


Figura 5.10: Comportamento da susceptibilidade magnética corrigida pelo campo desmagnetizante χ^* para a amostra de Pd₂MnSn em função do campo magnético aplicado ($\mu_0 H_A$) em algumas temperaturas na fase ferromagnética (a) e na fase paramagnética (b).

Como já dito no capítulo 2, a resistividade de Hall é definida fenomenologicamente como

$$\rho_{Hall} = R_0 B + R_S \mu_0 M \quad , \quad (2.19)$$

onde R_0 é o coeficiente de Hall ordinário, devido à força de Lorentz, e R_S é o coeficiente de Hall anômalo.

Para explicitar os efeitos do campo desmagnetizante faz-se necessário reescrever a equação acima em termos dos campos H e M , ou seja

$$\rho_{Hall} = \mu_0 R_0 (H + M) + R_S \mu_0 M \quad . \quad (5.9)$$

Substituindo a definição (5.3) em (5.9) obtém-se

$$\rho_{Hall} = \mu_0 R_0 [H_A + M(1 - \eta)] + R_S \mu_0 M \quad . \quad (5.10)$$

Dividindo-se (5.10) por $\mu_0 H_A$ resulta em

$$\frac{\rho_{Hall}}{\mu_0 H_A} = R_0 \left(1 + \frac{M(1 - \eta)}{(H + \eta M)} \right) + \frac{R_S M}{(H + \eta M)} \quad . \quad (5.11)$$

Experimentalmente, obtém-se uma resistividade de Hall medida, ρ_{Hall} , em função do campo magnético aplicado que pode ser escrita como

$$\rho_{Hall} = R_H \mu_0 H_A \quad , \quad (5.12)$$

onde R_H é um coeficiente que depende da magnetização, de R_0 e de R_S . Substituindo-se a relação (5.12) em (5.11), obtém-se

$$R_H = R_0 \left(1 + \frac{M(1 - \eta)}{(H + \eta M)} \right) + \frac{R_S M}{(H + \eta M)} \quad . \quad (5.13)$$

Para as medidas de efeito Hall discutida nesta dissertação, considera-se que o efeito do campo desmagnetizante é máximo ($\eta \approx 1$). Portanto, a equação (5.13) torna-se

$$R_H = R_0 + R_S \chi^* \quad , \quad (5.14)$$

onde χ^* foi definido nas equações (5.7) ou (5.8) como a resposta magnética efetiva do sistema no caso das medidas de efeito Hall.

5.1.3.2 – Análise dos Resultados

Para se determinar o coeficiente R_H em função da temperatura, dividiu-se a resistividade de Hall (figura (4.6)) pelo campo magnético aplicado, obtendo-se o coeficiente R_H em diferentes valores de H . Os resultados para $\mu_0 H = 1$ T, 3 T e 5 T estão mostrados na figura (5.11.a). A análise destes resultados é feita com o uso da quantidade χ^* definida na seção anterior. Na figura (5.11.b) são mostrados os resultados de χ^* em função de T para os mesmos campos aplicados.

O comportamento de χ^* em função da temperatura (figura (5.11.b)) reflete o comportamento da magnetização medida em campo aplicado fixo. O coeficiente R_H (figura (5.11.a)) apresenta um mínimo local em torno de 50 K e um máximo em T_c . Para temperaturas acima de T_c , R_H tende para valores pequenos. Isto se deve ao fato de que χ^* tende a zero em altas temperaturas, quando o sistema se encontra na fase paramagnética.

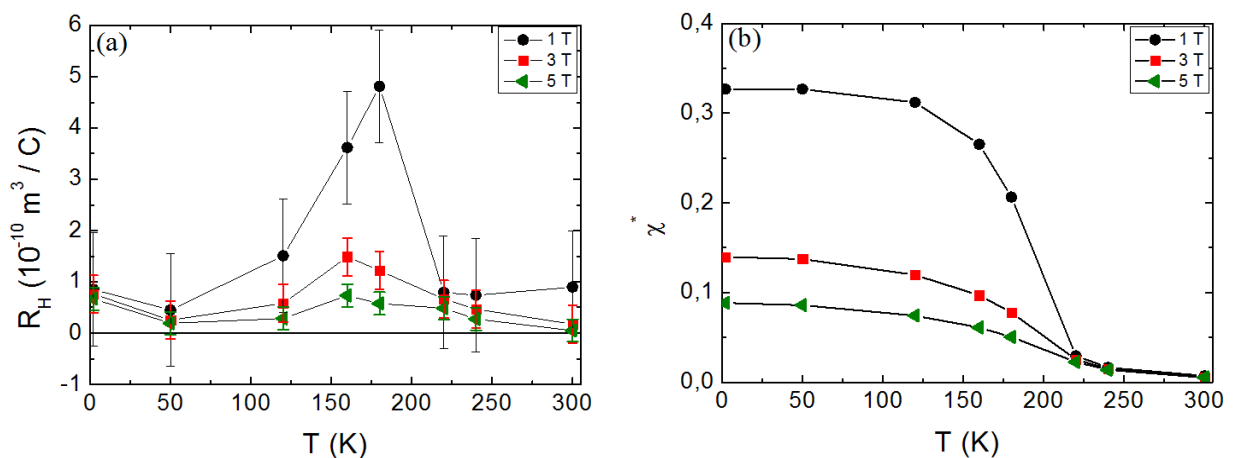


Figura 5.11: (a) Comportamento do coeficiente R_H em função da temperatura para os campos magnéticos $\mu_0 H = 1$ T, 3 T e 5 T. (b) Comportamento magnético da amostra de Pd₂MnSn representado como χ^* versus a temperatura nos mesmos valores de campo magnético.

Assim, a constante de Hall ordinária R_0 pode ser estimada a partir dos resultados de altas temperaturas, onde a contribuição do termo anômalo deve seguir o comportamento esperado para um sistema paramagnético, onde tanto R_0 quanto R_s devem ser constantes em função de T . Então segundo prevê a equação (5.14), um gráfico de R_H em função de χ^* resulta em uma reta cuja extrapolação para $\chi^* = 0$ fornece o valor de R_0 . A figura (5.12) mostra este

gráfico para as medidas de R_H e χ^* obtidas em $\mu_0 H = 5$ T nas temperaturas $T = 220$ K, 240 K e 300 K. Efetivamente, conforme se observa, os pontos se alinham segundo uma reta cuja intersecção com o eixo vertical fornece $R_0 = -8,5 (\pm 0,5) \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{C}$.

Supondo-se que na fase paramagnética a condução eletrônica é assegurada por uma única banda, a constante de Hall ordinária permite a determinação da densidade de portadores, tal como definido na seção 2.3.2 ($R_0 = 1 / ne$, com $e = 1,6 \times 10^{-19} \text{ C}$). Então, estima-se $n = 7,4 (\pm 0,5) \times 10^{29}$ elétrons/ m^3 no Pd₂MnSn.

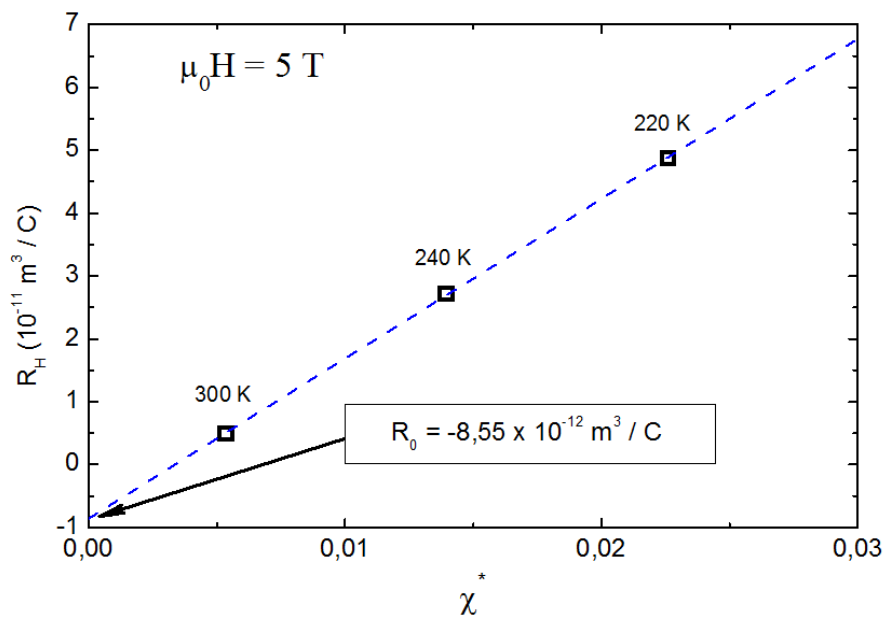


Figura 5.12: Os pontos mostram o comportamento de R_H em função de χ^* para campo magnético aplicado $\mu_0 H = 5$ T. A linha tracejada é a reta de ajuste aos pontos experimentais.

O coeficiente de Hall anômalo na faixa de temperaturas entre 220 K e 300 K é dado pela inclinação da reta na figura (5.12). Nesta região, o valor correspondente é $R_S = 2,5 (\pm 0,03) \times 10^{-9} \text{ m}^3/\text{C}$.

Fazendo-se a suposição de que o valor de R_0 permanece inalterado na fase ordenada, o coeficiente de Hall anômalo pode ser estimado nesta região através da equação (5.14), que pode ser reescrita como

$$R_S = \frac{R_0 + R_H}{\chi^*} \quad (5.15)$$

Na figura (5.13) mostra-se R_S em função de T em todo o intervalo de temperaturas

estudado para o maior valor de campo magnético aplicado, $\mu_0 H = 5$ T. No inserto desta figura mostra-se resultados de R_S obtidos nos campos de $\mu_0 H = 3$ T, 4 T e 5 T na região de temperaturas correspondente à fase ordenada. Estes resultados mostram que R_S , é fracamente dependente de H .

Conforme discutido no capítulo 2, a teoria que descreve a contribuição da fase de Berry ao efeito Hall anômalo em sistemas ferromagnéticos prevê que R_S deve ser proporcional a ρ_m^{-2} [20]. Na figura (5.14) está representado (R_S / ρ_m) em função de ρ_m em toda a faixa de temperaturas estudada. Verifica-se que para $T \geq 120$ K os dados correlacionam-se de modo aproximadamente linear, indicando que o mecanismo relacionado aos efeitos da fase de Berry é, possivelmente, o principal responsável pelo efeito Hall anômalo no Pd₂MnSn.

A linha na figura (5.14) é o melhor ajuste de uma reta aos pontos experimentais, e a intersecção da reta com a origem indica que a contribuição do mecanismo de skew scattering ao efeito Hall anômalo é praticamente nula no Pd₂MnSn.

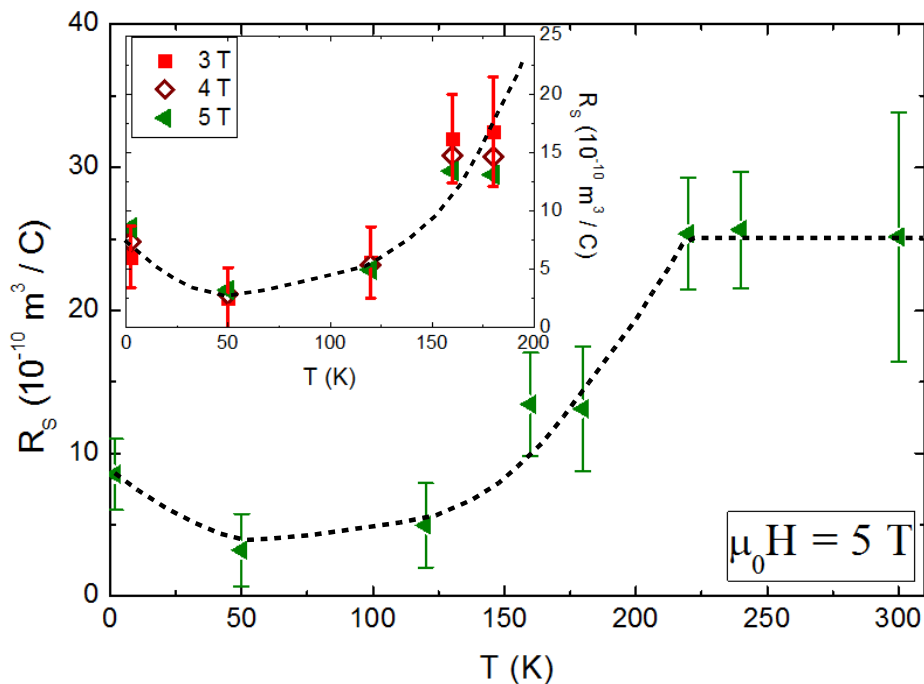


Figura 5.13: Comportamento do coeficiente Hall extraordinário em função da temperatura para campo magnético aplicado de $\mu_0 H = 5$ T. A inserção mostra o comportamento de R_S para temperaturas inferiores à 200 K em três campos magnéticos ($\mu_0 H = 3$ T, 4 T e 5 T). As barras de erro se referem aos campos magnéticos de mais baixa intensidade. As linhas tracejadas são guias para os olhos.

O forte desvio do valor de R_S em $T \leq 50$ K com relação à expectativa teórica pode estar correlacionado à condução por duas correntes polarizadas em spin. Nestas circunstâncias, a equação (5.15) não se aplica e uma análise mais detalhada dos resultados é necessária. Em particular, as constantes de Hall ordinárias para as duas sub-bandas de spin, tornam-se distintas em razão da polarização ferromagnética. A polarização de spin também afeta o efeito Hall anômalo. Além disso, é provável que o termo de mistura de spins, que tem um papel importante na magnetorresistência no limite de baixas temperaturas, também influencie o efeito Hall nesta região.

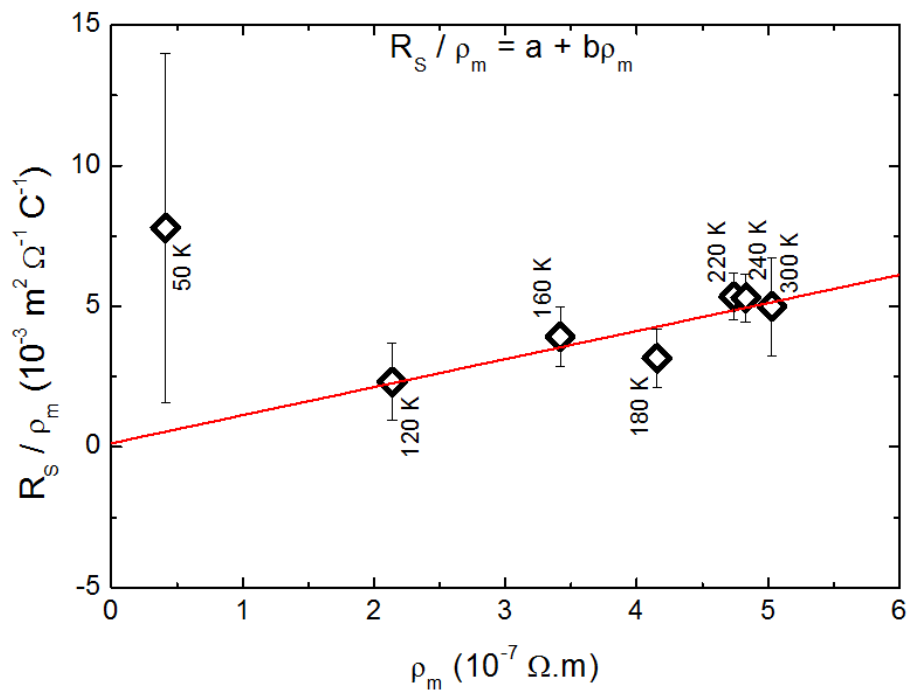


Figura 5.14: Gráfico de R_S / ρ_m versus ρ_m para o Pd₂MnSn, onde R_S é a constante de Hall anômala e ρ_m é a resistividade de desordem de spin.

5.2 – Ligas de Co-Fe

5.2.1 – Resistividade Elétrica e Magnetização DC

Uma análise qualitativa do comportamento da resistividade elétrica das ligas de Co-Fe em função da temperatura é feita assumindo-se que a resistividade ideal, $\rho_i(T)$, obedece uma lei de potências do tipo

$$\rho_i(T) \simeq cT^n \quad . \quad (5.16)$$

Tal como mostra a figura (5.15), a resistividade ideal de todas as ligas de Co-Fe apresenta duas regiões que podem ser descritas aproximadamente pela equação (5.16) com expoentes distintos. A mudança no expoente n ocorre em torno de $T = 85$ K para todas as concentrações de Fe. Em temperaturas inferiores à 85 K se observa um regime caracterizado por $n \approx 3$, que pode estar associado à combinação dos processos de espalhamento elétron-magnon, elétron-elétron e elétron-fônon [25]. Alternativamente, a resistividade nesta região pode ser dominada pelo termo de mistura de spins [1], tal como ocorre no Pd_2MnSn . Estudos dos desvios à regra de Matthiessen também indicam que a contribuição do termo de mistura de spins é importante na região de baixas temperaturas no sistema Co-Fe [34]. Em temperaturas superiores à 85 K, onde se observa $n \approx 1,5$, a resistividade é dominada pelos efeitos da desordem de spin.

Como visto na seção 5.1, a resistividade do composto Pd_2MnSn , na fase ferromagnética, apresenta valores para expoente n muito próximos aos encontrados nas ligas de Co-Fe. Esta semelhança é um indicativo de que os efeitos do termo de mistura de spins desempenham um importante papel nas propriedades de transporte elétrico da liga de Co-Fe no regime de baixas temperaturas ($0 < T < 100$ K).

Em todas as ligas estudadas, a magnetização de saturação não apresenta variações significativas na faixa de temperaturas entre $T = 5$ K e $T = 300$ K, como mostra a figura (5.16). Este resultado é esperado para o sistema Co-Fe, cuja temperatura de Curie ocorre em torno de 1400 K [33]. Verifica-se também que a magnetização das amostras com $x = 4$ e $x = 6$ atinge a saturação em campos aplicados da ordem de 2 T, ao passo que a amostra com $x = 2$

não atinge a saturação mesmo em altos campos aplicados (figura (4.10)). Esta diferença se deve, provavelmente, à diferença de estrutura cristalina. A fase hcp é predominante na amostra com $x = 2$, como visto no capítulo 3 (ver figura (3.4(a))), enquanto a simetria cfc caracteriza as ligas com $x = 4$ e $x = 6$.

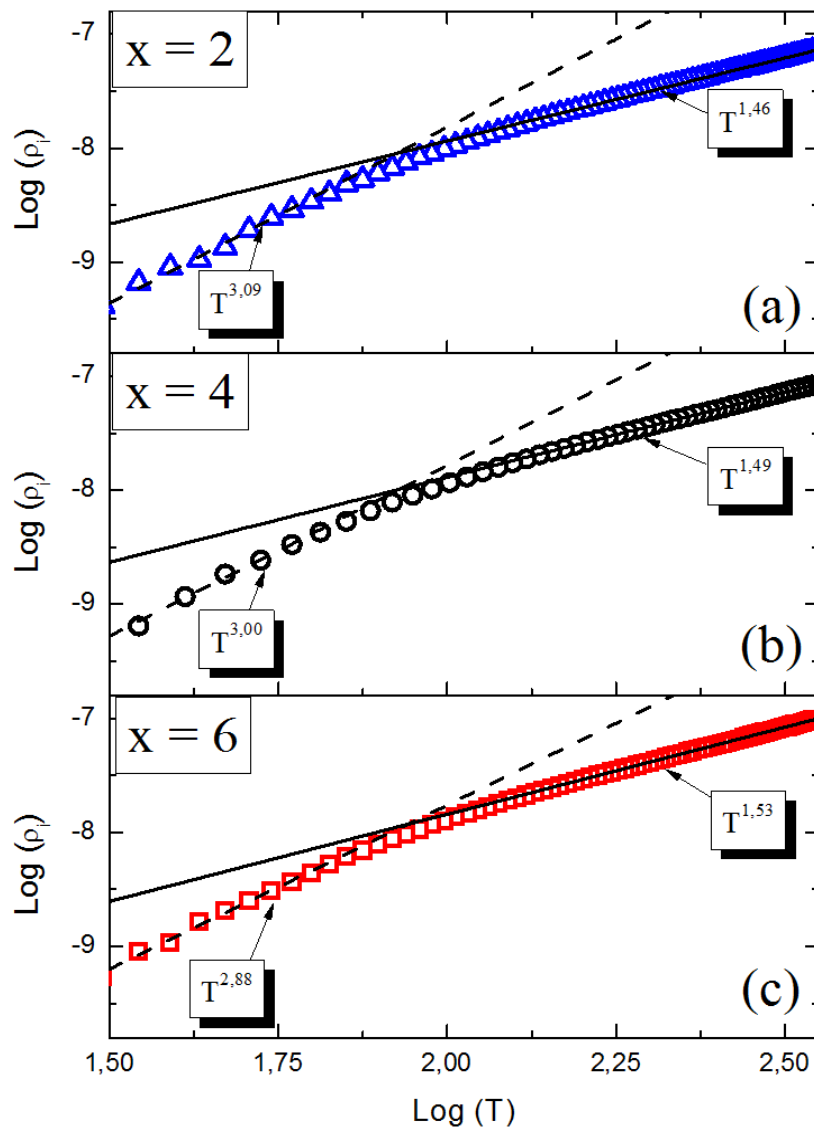


Figura 5.15: Gráfico log-log da resistividade elétrica ideal ($\rho_i(T)$) em função da temperatura e os regimes de lei de potências para as amostras de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 . As concentrações e os expoentes das leis de potência estão indicados.

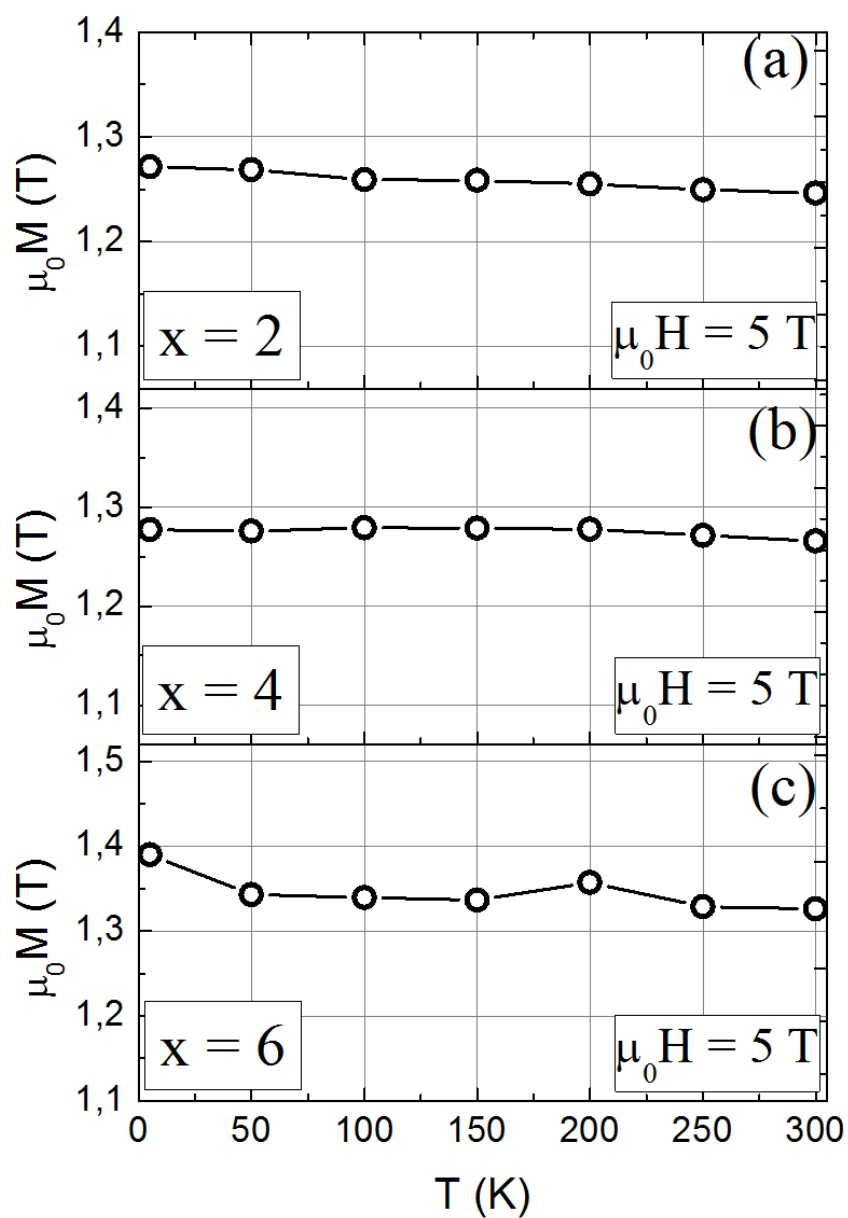


Figura 5.16: Magnetização versus temperatura em campo magnético de $\mu_0 H = 5 \text{ T}$ para as ligas de Co-Fe $x \text{ at } \%$, com $x = 2, 4$ e 6 .

5.1.2 – Magnetorresistência

Usou-se a regra de Kohler para interpretar os resultados de MR em altos campos nas ligas de Co-Fe. Esta regra pode ser expressa como [9]

$$\frac{\rho(B) - \rho(0)}{\rho(0)} = f\left(\frac{B}{\rho(0)}\right) \quad (5.17)$$

onde $\rho(B)$ é a resistividade elétrica na presença de campo e $\rho(0)$ é a resistividade elétrica em campo nulo. A resistividade elétrica na ausência de B não pode ser medida diretamente em uma amostra com magnetização espontânea. Nestes casos, deve-se extrapolar o comportamento da resistividade elétrica no regime de altos campos aplicados para $B = 0$. Este procedimento é mostrado na figura (5.17) para a amostra de Co-Fe 6 at % em duas temperaturas. Para construir as figuras (5.17), utilizou-se a expressão (5.3), que leva em conta os efeitos do campo desmagnetizante na expressão para B ,

$$B = \mu_0 (H_A - \eta M + M) \quad (5.18)$$

onde H_A é o campo aplicado. No caso MRT ($\eta \approx 1$), o ponto $B = 0$ coincide com $H_A = 0$. Porém, para MRL, $B = 0$ quando $H_A = -M$.

Também se assume que o efeito do campo desmagnetizante é mínimo em MRL ($\eta \approx 0$) e máximo em MRT ($\eta \approx 1$). Os valores de M foram extraídos das medidas de magnetização, nas quais o efeito do campo desmagnetizante pode ser ignorado.

A expressão (5.17) pode ser escrita como

$$\rho(B) = \rho(0) \left[1 + f\left(\frac{B}{\rho(0)}\right) \right] \quad (5.19)$$

Assumindo que a função dependente de B e de $\rho(0)$ obedece uma lei de potências na forma,

$$f\left(\frac{B}{\rho(0)}\right) = A B^\nu \quad (5.20)$$

Pode-se determinar $\rho(0)$, ν e a constante A , tal como exemplificado nas figuras (5.17). O objetivo principal da utilização da regra de Kohler nesta seção é verificar como MR varia com o campo nas diversas temperaturas medidas, utilizando-se os parâmetros ν e A , além de

se determinar $\rho(0)$ por extrapolação para analisar o comportamento da MR no regime de baixos campos. É importante ressaltar que os parâmetros $\rho(0)$, ν e A serão distintos para MRT e MRL, conforme se observa nas figuras (5.17).

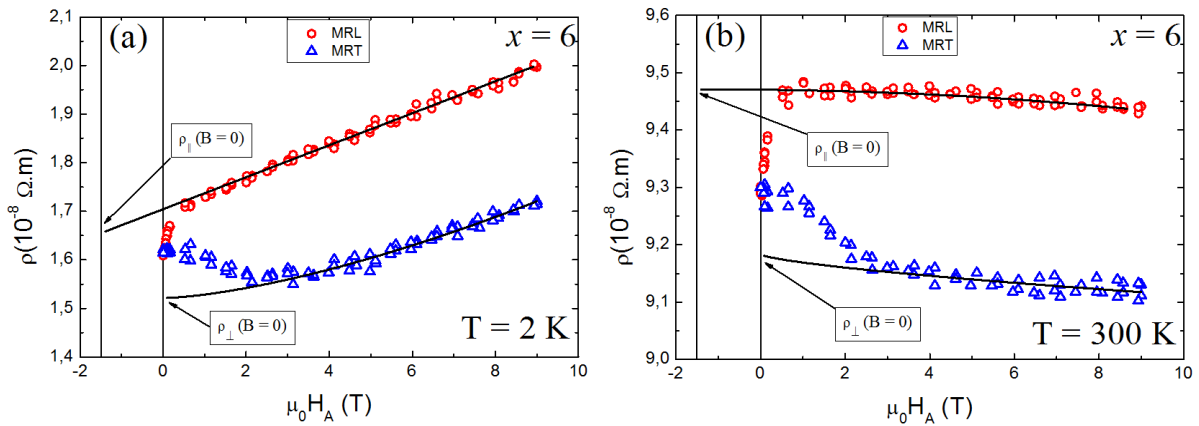


Figura 5.17: Representação do método de extrapolação para determinar o valor da resistividade elétrica na ausência de B nas medidas de MRT e MRL na amostra de $\underline{\text{Co-Fe}}$ 6 at % nas temperaturas de $T = 2 \text{ K}$ (a) e $T = 300 \text{ K}$ (b). As figuras mostram MRL e MRT em função de H .

No regime de baixos campos, o processo magnetorresistivo é dominado pela anisotropia espontânea da resistividade (AER). Num material ferromagnético, em que há interação spin-órbita, a resistividade residual e a resistividade ideal dependem da orientação relativa entre a corrente elétrica e a direção da magnetização. Na ausência de campo magnético, os domínios orientam-se aleatoriamente e não se pode observar a AER. Porém, se o campo aplicado alcançar o valor correspondente à saturação técnica da magnetização, um monodomínio será estabilizado em toda a amostra e a AER será revelada. Assim, no caso das ligas de $\underline{\text{Co-Fe}}$, a resistividade residual (medida em $T = 2 \text{ K}$) é maior quando a magnetização está orientada paralelamente à direção da corrente (MRL nas figuras (5.17)) do que na geometria em que M_S é perpendicular à corrente (MRT nas figuras (5.17)). Desta forma, a bifurcação observada entre a MRL e a MRT nestas figuras, acompanha o processo de saturação da magnetização e se completa em torno de $\mu_0 H = 3 \text{ T}$.

Em campos maiores que $\mu_0 H \sim 3 - 4 \text{ T}$, a magnetorresistência pode ser analisada segundo as expressões (5.19) e (5.20). Neste regime se deve verificar a relevância dos efeitos originados pela força de Lorentz e pelas contribuições relacionadas ao caráter ferromagnético do sistema $\underline{\text{Co-Fe}}$.

5.1.2.1 Regime de Baixos Campos – Anisotropia Espontânea da Resistividade

A anisotropia espontânea da resistividade (AER) se refere ao estado em que $B = 0$. Portanto, sua determinação implica na extrapolação dos resultados medidos em altos campos para a situação de indução magnética nula. Neste processo, deve-se levar em conta os efeitos do campo desmagnetizante, como mostram as figuras (5.17), (5.18) e (5.19). A figuras (5.18) e (5.19) mostram a determinação da AER em diversas temperaturas para as amostra com $x = 4$ e $x = 6$, respectivamente.

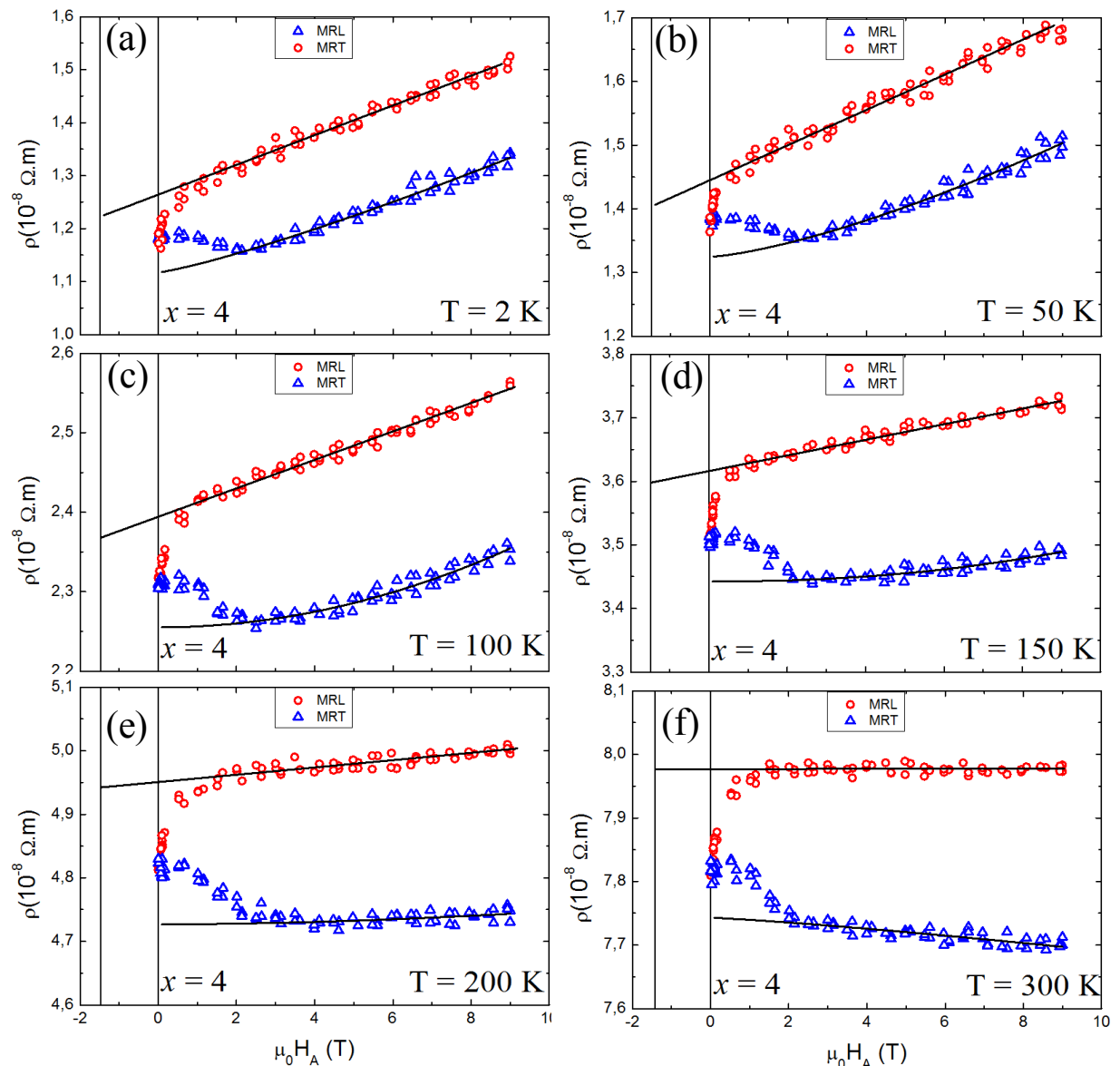


Figura 5.18: Representação do método de extrapolação para determinar o valor da resistividade elétrica na ausência de B nas medidas de MRT e MRL na amostra de Co-Fe 4 at % nas temperaturas indicadas.

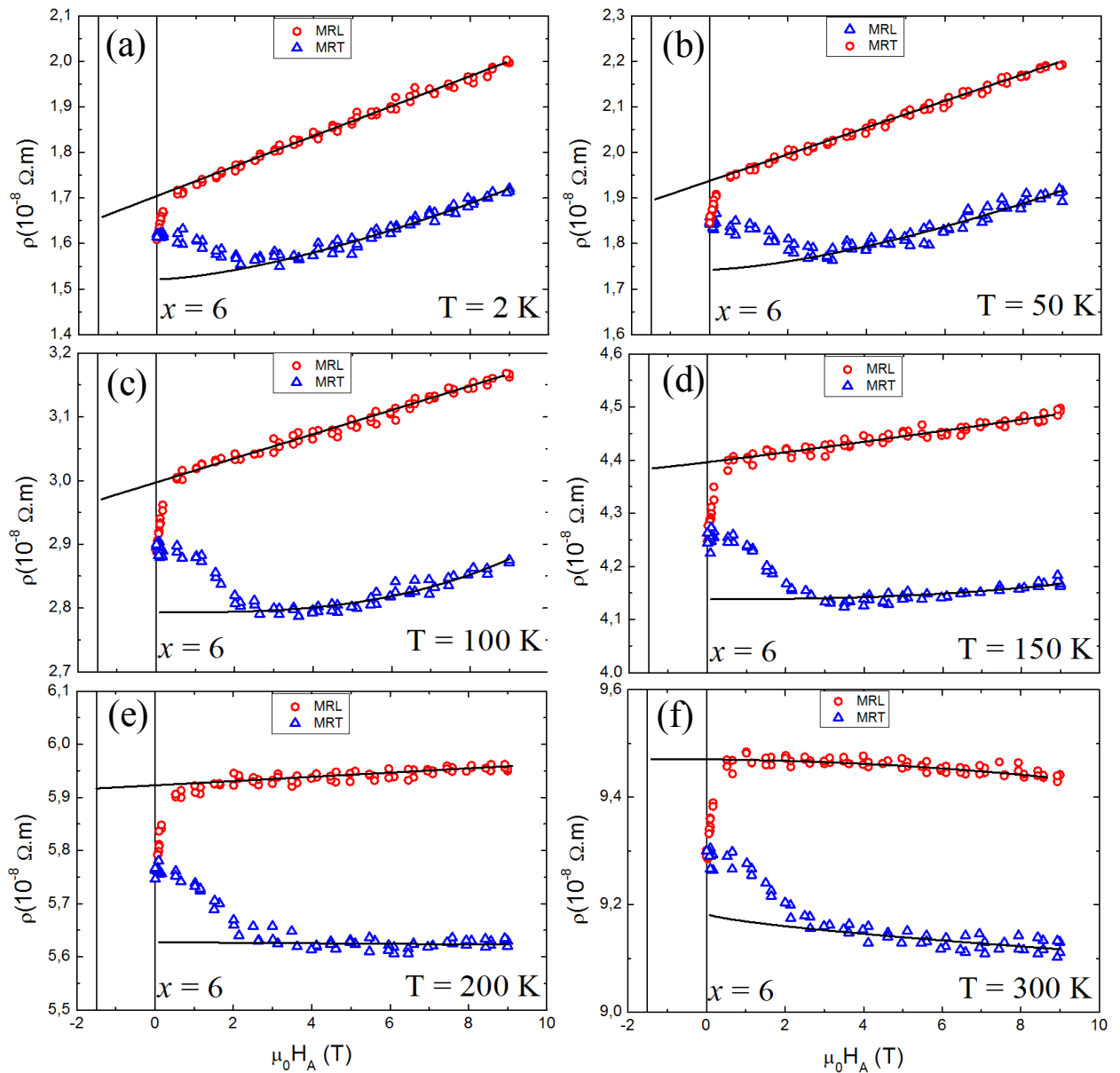


Figura 5.19: Representação do método de extrapolação para determinar o valor da resistividade elétrica na ausência de B nas medidas de MRT e MRL na amostra de $\underline{\text{Co-Fe}}$ 6 at % nas temperaturas indicadas.

A AER é representada como $(\rho_{\parallel} - \rho_{\perp}) / \bar{\rho}$ ou $(\Delta \rho / \bar{\rho})_{AER}$, onde ρ_{\parallel} e ρ_{\perp} são as MRL e MRT, respectivamente, extrapoladas para $B = 0$. A resistividade média, em $B = 0$, é dada por $\bar{\rho} = \frac{1}{3}\rho_{\parallel} + \frac{2}{3}\rho_{\perp}$, conforme discutido na seção 2.3.3.3. Segundo a teoria de Campbell e Fert, também sumarizado na seção 2.3.3.3, a AER permite a determinação da razão α entre as resistividades residuais dependentes de spin, em temperaturas próximas à

T = 0 K, ou seja,

$$\frac{(\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})}{\bar{\rho}} = \gamma(\alpha - 1) \quad , \quad (2.28)$$

onde $\gamma \approx 0,01$ foi estimado teoricamente por Campbell e col. [44] e $\alpha = \frac{\rho_{0\downarrow}}{\rho_{0\uparrow}}$, tal como definido na seção 2.3.3.3.

Aplicando-se a expressão acima para as amostras estudadas, obtém-se os dados da tabela (5.1). Os valores de α para as amostras com $x \geq 4$ encontrados na tabela (5.1) estão de acordo com os valores encontrados na literatura [10][1].

Co-Fe x at %	ρ_0 ($10^{-8} \Omega . m$)	$\alpha = \frac{\rho_{0\downarrow}}{\rho_{0\uparrow}}$	$\rho_{0\uparrow}$ ($10^{-8} \Omega . m$)	$\rho_{0\downarrow}$ ($10^{-7} \Omega . m$)
x = 4	1,17 ($\pm 0,005$)	10,2	1,28	1,31
x = 6	1,61 ($\pm 0,005$)	9,7	1,77	1,71
x = 2	0,68 ($\pm 0,005$)	5,65	0,8	0,45

Tabela 5.1: Tabela com os valores de ρ_0 , α , $\rho_{0\uparrow}$ e $\rho_{0\downarrow}$ determinados a partir das medidas de resistividade elétrica e da figura 5.21 para as amostras da liga de Co-Fe x at % com $x = 2$, $x = 4$ e $x = 6$.

Verifica-se que α é independente da concentração de Fe para as amostras com $x = 4$ e 6. Este fato é consistente com a expectativa, em termos teóricos, de que, para um dado metal hospedeiro, a razão α é uma característica da impureza, mas deve ser independente da concentração de impurezas. O valor de α é distinto para a liga com $x = 2$, pois neste caso a estrutura cristalina da amostra é hcp.

O valor $\alpha \approx 10$ para as amostras com $x = 4$ e $x = 6$ mostra que a corrente é fortemente polarizada em spin nestes sistemas na região de baixas temperaturas.

A figura (5.17.b)) mostra que a AER é significativa mesmo em T = 300 K no sistema Co-Fe. No regime de altas temperaturas, no qual o termo de mistura de spins é não nulo e $\rho_{i\sigma} \gg \rho_{0\sigma}$, a expressão (2.28) não é válida. Utiliza-se neste regime a expressão mais geral determinada por Campbell e col. [44], que é uma função das resistividades dependentes de

spin, do parâmetro γ separe do termo de mistura de spins dada por

$$\frac{(\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})}{\bar{\rho}} = \frac{\gamma(\xi - 1)}{\rho_{i\uparrow}(T)\rho_{i\downarrow}(T) + \rho_{\uparrow\downarrow}(T)(\rho_{i\uparrow}(T) + \rho_{i\downarrow}(T))} \quad (5.21)$$

A expressão acima pode ser escrita como

$$\frac{(\rho_{\parallel} - \rho_{\perp})}{\bar{\rho}} = \frac{\gamma(\xi - 1)}{1 + \rho_{\uparrow\downarrow}(T)/\rho_i(T)} \quad (5.22)$$

onde $\xi = \frac{\rho_{i\downarrow}(T)}{\rho_{i\uparrow}(T)}$ e $\rho_i(T) = \frac{\rho_{i\uparrow}(T)\rho_{i\downarrow}(T)}{\rho_{i\uparrow}(T) + \rho_{i\downarrow}(T)}$, estão definidos nas expressões (2.11) e (2.12), respectivamente.

O comportamento da AER em função da temperatura pode ser visto na figura (5.20) para as três amostras estudadas. A AER não é facilmente interpretável em temperaturas intermediárias, pois além da anisotropia da resistividade residual, ela dependerá da resistividade ideal e do termo de mistura de spin.

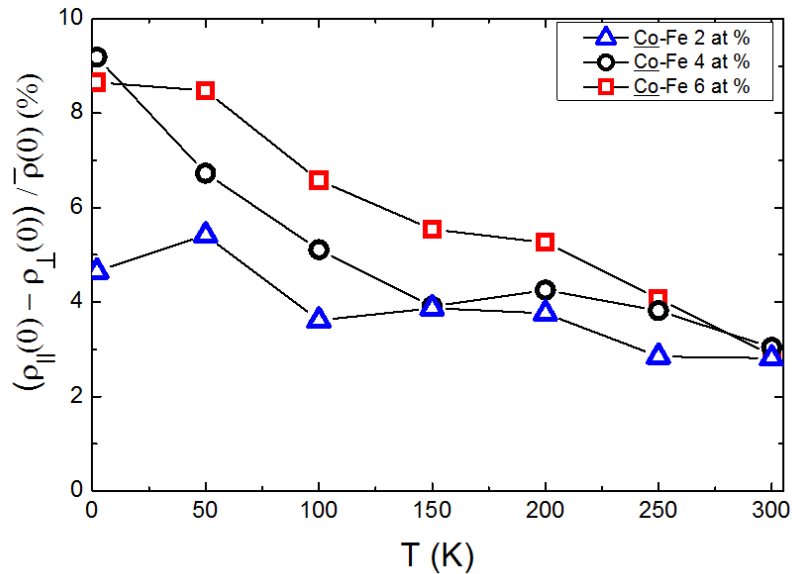


Figura 5.20: Anisotropia espontânea da resistividade elétrica em função da temperatura para as amostras de Co-Fe x at % com $x = 2, 4$ e 6 .

Em altas temperaturas, conforme mostra a equação (5.22), a AER depende apenas das propriedades intrínsecas do metal hospedeiro.

Na figura (5.20) se observa que a AER se torna independente da concentração de impurezas, e até da estrutura cristalina do metal hospedeiro (Co), em $T \approx 300$ K. Este resultado mostra que, neste limite, a equação (5.22) é aplicável. Substituindo-se nela o valor $\xi \cong 4$ para o Co[10], e o valor experimental para $(\Delta\rho/\bar{\rho})_{AER}$, obtém-se $\rho_{\uparrow\downarrow}/\rho_i \simeq 0,04$, o que mostra que a contribuição do termo de mistura de spins para a resistividade total do Co em $T = 300$ K é pequena frente a ρ_i .

5.1.2.2 Regime de Altos Campos

O comportamento dos parâmetros ν e A para as amostras de Co-Fe x at %, no regime de altos campos aplicados, é mostrado na figura (5.21) como função da temperatura. Nesta figura se nota a dependência linear da MRL com B , na região $B > 3$ T, em uma larga faixa de temperaturas e em todas as amostras estudadas. Na MRT o expoente ν é, em média maior do que a unidade em baixas temperaturas, aumenta para $\nu \approx 2$ em torno de 150 K e decai para valor próximo ao unitário em $T \geq 250$ K.

O modelo de Onose e col. supõe que a MR varia linearmente com o campo aplicado. Este modelo se aplica tanto para a MRL quanto para a MRT e prevê que a MR é negativa se a mobilidade μ_{\uparrow} de sub-banda majoritária for maior que μ_{\downarrow} . Assim como no caso do Pd₂MnSn, este parece ser o caso para o Co, se for considerado que o tempo de relaxação é inversamente proporcional à densidade de estados no nível de Fermi para cada uma das sub-bandas. A densidades de estados dependentes de spin para o Co cfc podem ser vistas na figura (5.22). Observa-se que, no nível de Fermi, $D_{\uparrow}(\epsilon_F) \gg D_{\downarrow}(\epsilon_F)$, tornando $\mu_{\uparrow} \gg \mu_{\downarrow}$.

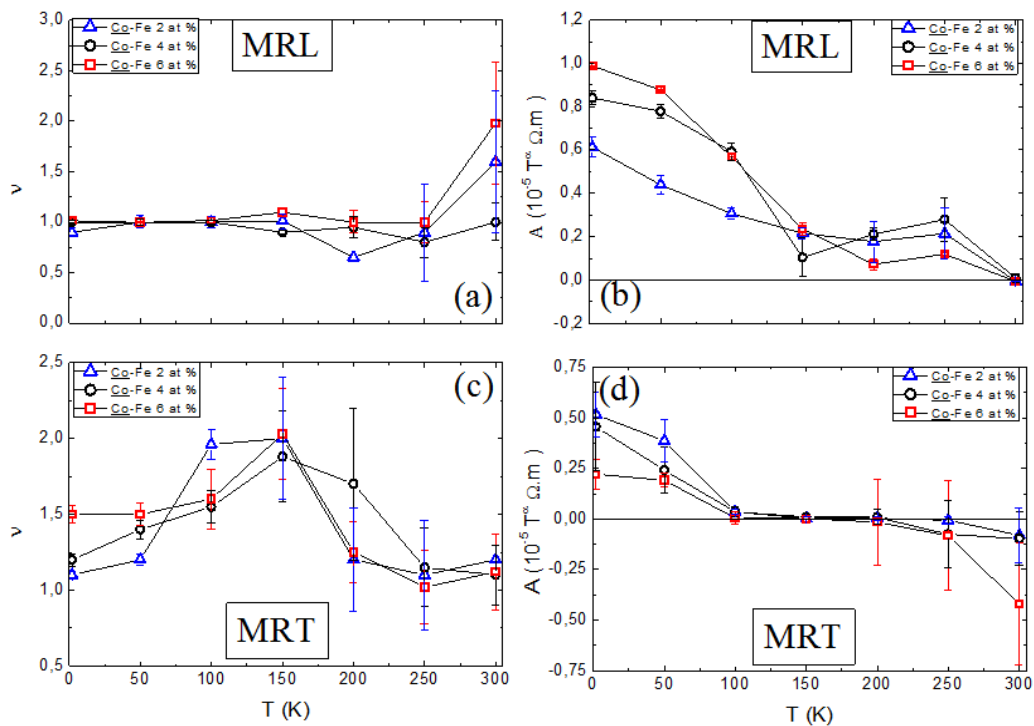


Figura 5.21: Parâmetros ν da expressão (5.20) nas amostras de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 , da MRL (a) e da MRT (c) em função da temperatura para o regime de altos campos aplicados. Nas figuras (b) e (d) estão representados o parâmetros A da MRL e da MRT, respectivamente, em função da temperatura.

No entanto, tal como no caso do Pd_2MnS , a MR positiva e linear com o campo pode ser interpretada com o modelo de duas correntes de Campbell e Fert[1], com transferência de momentum entre as sub-bandas dependentes de spin. Na presença de colisões que envolvam processos de spin-flip, o termo de mistura de spins pode contribuir significativamente para a resistividade elétrica. Este processo é ativado pelo efeito Zeeman que, no caso do sistema Co-Fe, transfere elétrons de natureza **d** com spin \downarrow para estados **s** com spin \uparrow . O tempo de relaxação $\tau_{\uparrow\downarrow}$ então depende basicamente de processos de espalhamento de elétrons de estados **s** com spin \uparrow para estados **d** com spin \downarrow , via colisões com ondas de spin. Esta suposição está de acordo com a teoria de Campbell e Fert, que supõe os processos **s-d** são dominantes na resistividade de ferromagnetos de bandas. Ademais, o espalhamento **s-d** faz com que a resistividade de mistura de spins seja anisotrópica. A análise das medidas de resistividade elétrica (ver figura (5.15)) mostra um expoente $n \approx 3$, resultado que corrobora para que o processo de colisão por ondas de spin seja dominante em temperaturas inferiores à 150 K.

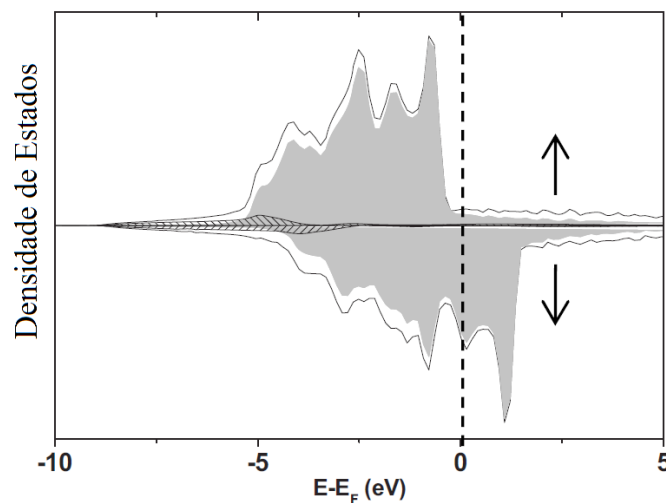


Figura 5.22: Densidade de estados para elétrons majoritários e minoritários no Co cfc [45].

O parâmetro A da MRL (figura (5.21.b)) decresce conforme aumenta a temperatura e se torna muito pequeno em $T = 300$ K. Possivelmente, nas vizinhanças desta temperatura, o sinal do coeficiente A é invertido. Essa inversão também pode ser vista, para a amostra com $x = 6$, na figura (5.19.f) como uma leve inclinação negativa na região de altos campos ($\mu_0 H > 3$ T).

A partir do comportamento do expoente ν da MRL, não se pode separar as

contribuições dos termos de desordem de spin e mistura de spins. No entanto, o parâmetro $A > 0$ da MRL sugere que nas temperaturas estudadas, o termo de mistura de spins domina a magnetorresistência, uma vez que o termo de desordem de spin origina MR negativa. Na faixa intermediária de temperatura ($150 \text{ K} < T < 250 \text{ K}$), o parâmetro A parece se manter constante. Este resultado está de acordo com o comportamento de $\rho_{\uparrow\downarrow}$, o qual assume valor constante para $T > 200 \text{ K}$ [10]. Na medida em que se aumenta a temperatura, a resistividade devido à desordem de spin aumenta e em $T = 300 \text{ K}$, a magnetorresistência positiva devida ao termo de mistura de spin é quase exatamente compensada pela magnetorresistência negativa originada pela desordem de spin.

Percebe-se, ainda, na figura (5.21.c)) que o expoente ν da MRT cresce e atinge o valor máximo em torno de $T = 150 \text{ K}$. No entanto, o parâmetro A (figura (5.21.d)) tende a valores muito próximos de zero, mas ainda positivos, em torno de $T = 150 \text{ K}$. Esse resultado pode ser o indicativo de que a MR positiva devido à força de Lorentz pode estar contribuindo de forma significativa nesta faixa de temperaturas e no regime de altos campos aplicados, fazendo com que ν tenda a um valor próximo de 2. O fato do parâmetro A tender a valores pequenos está de acordo com a magnitude da contribuição ordinária à MRT.

Os efeitos da desordem de spin à MRT, no regime de altos campos, são percebidos mais facilmente no parâmetro A na figura (5.21.d), que mostra uma clara inversão do sinal da MRT em todas as amostras quando $\mu_0 H > 3 \text{ T}$ e $T \geq 150 \text{ K}$. No intervalo intermediário de temperaturas ($150 \text{ K} < T < 250 \text{ K}$), o valor do expoente ν decresce em razão da competição entre os termos de desordem de spin e da força de Lorentz.

5.3.3 – Efeito Hall

As medidas de resistividade de Hall nas amostras da liga de Co-Fe foram realizadas somente na região ferromagnética. Desta forma, a separação das contribuições ordinária e anômala à resistividade de Hall torna-se mais complicada, uma vez que não se atinge a região paramagnética onde o coeficiente anômalo R_S tende a um valor constante. Contudo, mediante algumas suposições, pode-se estimar o valor de R_0 e a variação de R_S com a temperatura no caso das amostras de Co-Fe. Em particular, assume-se que a contribuição anômala tende a zero em temperatura nula e que tanto R_S quanto R_0 são fracamente dependente do campo magnético.

A figura (5.23) mostra que, em todas as amostras, o coeficiente R_H permanece constante em $T = 2$ K na região de campos aplicados ($\mu_0 H \geq 3$ T), enquanto que χ^* (figura (5.24)) decresce fortemente com o aumento do campo na mesma região. Usando este resultado na expressão (5.14) infere-se que R_S deve ser aproximadamente igual a zero em $T = 2$ K.

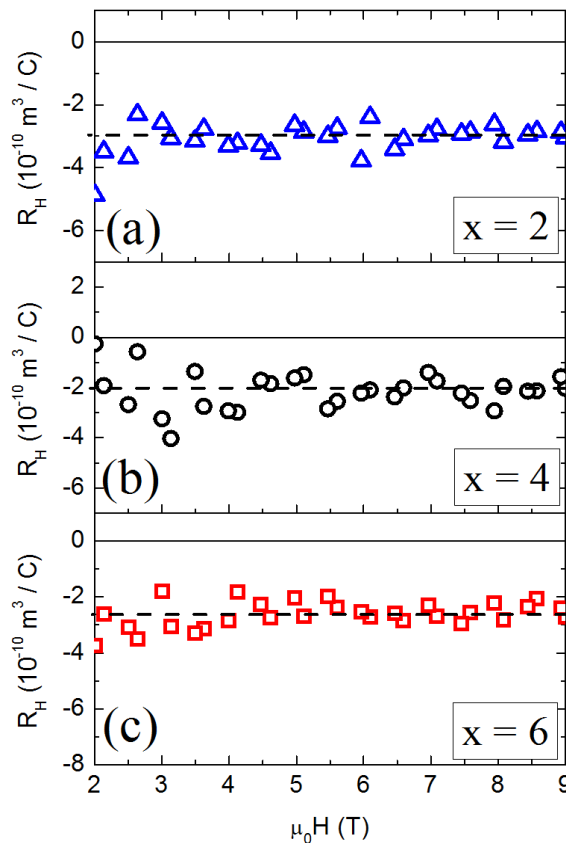


Figura 5.23: Coeficiente de Hall versus campo aplicado em $T = 2$ K nas ligas de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 . As retas tracejadas são guias para os olhos.

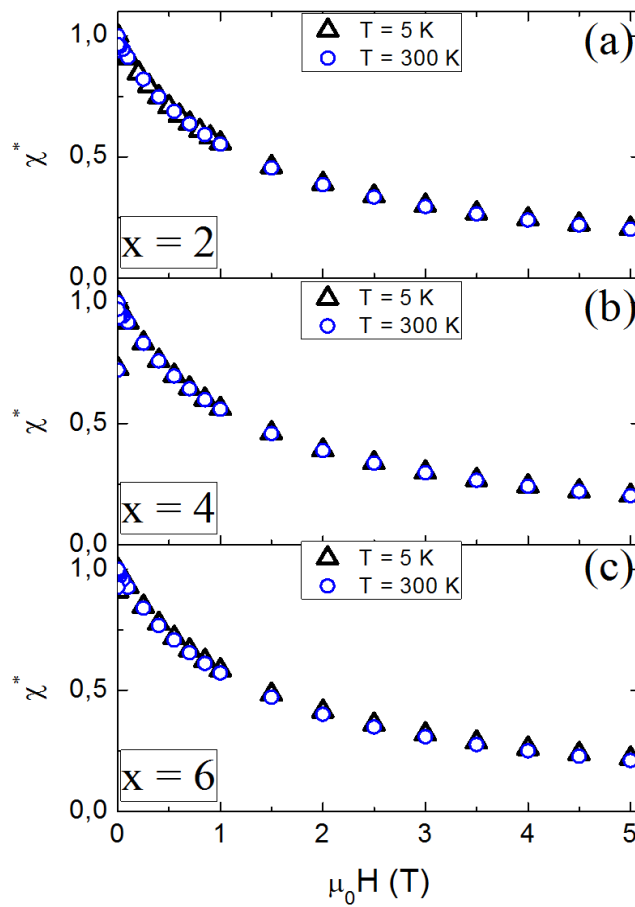


Figura 5.24: Comportamento da susceptibilidade magnética corrigida pelo fator desmagnetizante χ^* para as ligas de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 .

Desta forma, R_0 pode ser estimado a partir das medidas de resistividade de Hall em $T = 2$ K, pois nesta temperatura, $R_0 = R_H$. Os valores do coeficiente de Hall ordinário assim determinados para as ligas de Co-Fe estão mostrados na tabela (5.2).

<u>Co-Fe</u> x at %	$R_0(10^{-10} \text{ m}^3 / \text{C})$
$x = 2$	-2,1 ($\pm 0,2$)
$x = 4$	-2,1 ($\pm 0,2$)
$x = 6$	-2,2 ($\pm 0,2$)

Tabela 5.2: Tabela com os valores de R_0 determinados a partir das medidas de resistividade de Hall em $T = 2$ K para as ligas de Co-Fe estudadas.

A suposição de R_S seja nulo em temperaturas próximas a zero é um comportamento esperado para sistemas ferromagnéticos. Entretanto, como visto anteriormente no Pd₂MnSn, nem sempre este comportamento é observado.

Supondo-se que R_0 permanece constante em todo o intervalo de temperaturas estudado, o coeficiente de Hall anômalo pode ser estimado a partir da expressão (5.15), tal como feito no Pd₂MnSn. Nota-se na figura (5.24) que χ^* , em um dado campo fixo, mantém-se constante ao longo de toda a faixa de temperatura. Este resultado é esperado, já que a magnetização em altos campos atinge a saturação e não apresenta uma dependência significativa com temperatura. Sendo assim, o coeficiente de Hall medido, R_H , reproduz diretamente a variação em temperatura do coeficiente de Hall anômalo, R_S . O comportamento de R_H em função da temperatura para as ligas de Co-Fe em $\mu_0 H = 5$ T é mostrado na figura (5.25). Nesta figura, percebe-se um crescimento quase linear do parâmetro R_H com a temperatura.

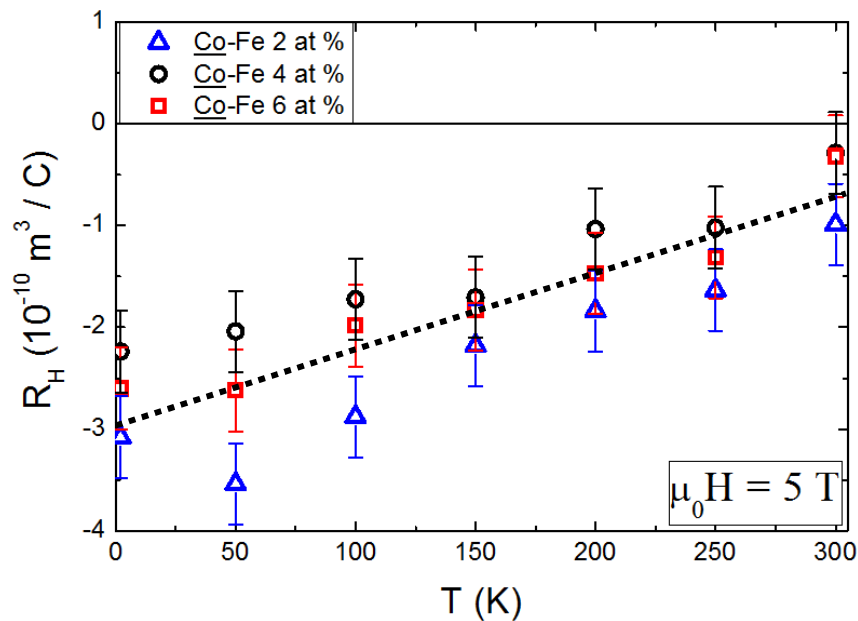


Figura 5.25: Comportamento de R_H versus T em campo de $\mu_0 H = 5$ T das amostras de Co-Fe x at % com $x = 2, 4$ e 6 . A linha tracejada é um guia para os olhos.

O coeficiente de Hall anômalo das ligas de Co-Fe, determinado a partir da expressão (5.15) para o campo $\mu_0 H = 5$ T é apresentado na figura (5.26) em função da temperatura. O coeficiente R_S depende linearmente de T em toda a faixa de temperaturas estudadas.

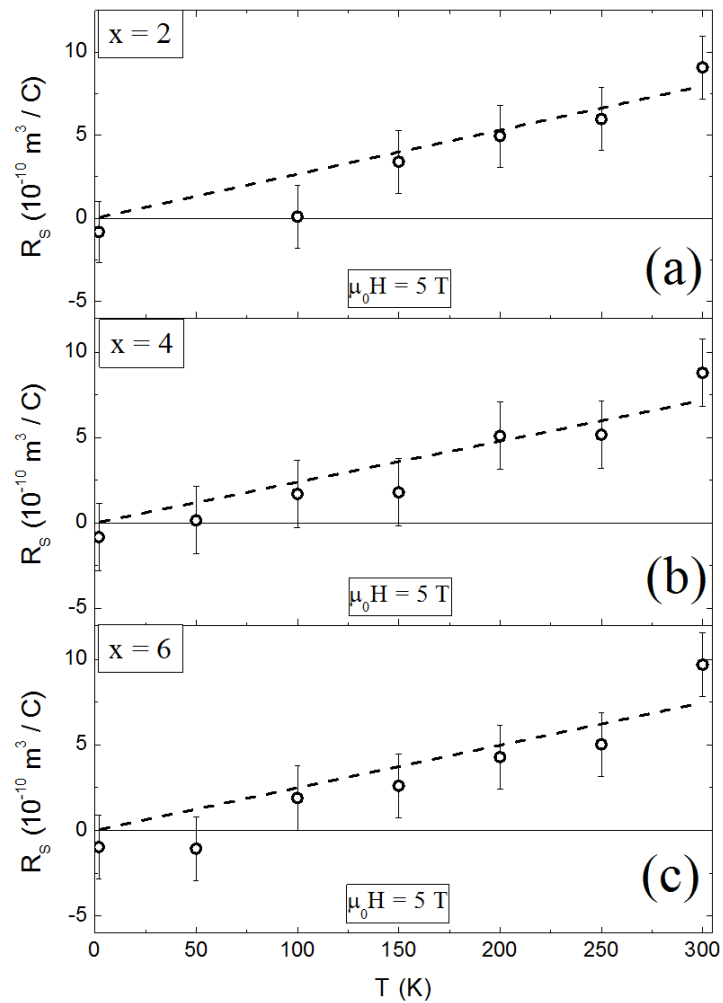


Figura 5.26: Comportamento do coeficiente de Hall anômalo em função da temperatura para as ligas de Co-Fe x at %, com $x = 2, 4$ e 6 em campo aplicado de $\mu_0 H = 5 \text{ T}$. As linhas tracejadas são retas ajustadas aos pontos experimentais.

As figuras (5.27) mostram a dependência de R_S com a resistividade elétrica em campo nulo. Dentro da precisão das medidas, nota-se que R_S cresce de forma quase linear com a resistividade elétrica em campo nulo.

Como visto antes, tanto a análise da resistividade elétrica quanto a análise das medidas de magnetorresistência indicam que em temperaturas em torno de 150 K ocorra uma mudança significativa nas propriedades de transporte. No entanto, esta mudança não aparece de forma explícita nas medidas de resistividade de Hall.

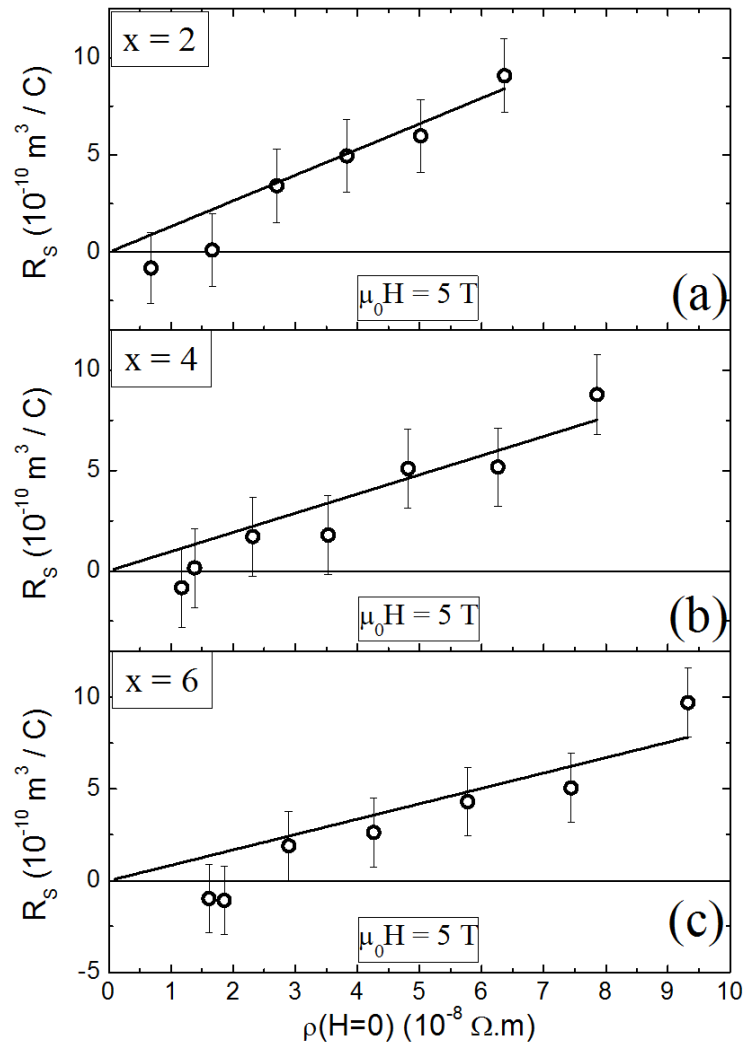


Figura 5.27: Comportamento do coeficiente de Hall anômalo em função da resistividade elétrica em campo nulo das ligas de Co-Fe x at % com $x = 2, 4$ e 6 para $\mu_0 H = 5$ T. As linhas contínuas são retas ajustadas aos pontos experimentais, mantendo a suposição de que R_S seja nulo em temperaturas próximas a zero.

Em temperaturas inferiores a 150 K, o efeito do termo de mistura de spin pode desempenhar um importante papel na resistividade de Hall. No entanto, devido a grande incerteza das medidas não é possível determinar o comportamento de R_S nesta região de temperaturas.

Percebe-se, na figura (5.27), que o coeficiente R_S apresenta uma dependência linear com $\rho(H = 0)$ que pode estar associada a efeitos de espalhamento assimétrico (skew-scattering)

Assim como acontece no Pd_2MnSn , os resultados das medidas de transporte elétrico

realizadas nas ligas de Co-Fe apresentam um forte indício de que o termo de mistura de spins seja responsável pelos efeitos observados em baixas temperaturas. É importante ressaltar, contudo, que a suposição de R_0 seja constante em toda a faixa de temperaturas e campos aplicados talvez não seja válida. Isto pode acontecer pelo fato de R_0 ser uma função das resistividades das sub-bandas de spins [1]. Sendo assim, o comportamento do coeficiente de Hall anômalo determinado neste trabalho pode conter variações que tem origem no coeficiente de Hall ordinário. Além disso, o próprio R_S pode depender de modo não trivial das resistividades dependentes de spins.

6 – Considerações Finais

Nesta dissertação, realizou-se um estudo experimental das propriedades de magneto-transporte de dois sistemas ferromagnéticos com diferentes características: o composto de Heusler Pd₂MnSn e ligas diluídas de Co-Fe. O Pd₂MnSn é um sistema de momentos magnéticos localizados, com pequena anisotropia magnética. As ligas de Co-Fe são exemplos representativos de ferromagnetos de bandas. Nestes sistemas a anisotropia é pronunciada em razão da presença de uma banda-3d semi-preenchida no nível de Fermi. Um dos interesses deste trabalho é o estudo dos efeitos da anisotropia magnética nas propriedades de magneto-transporte em ambos os sistemas. Portanto, no caso das ligas, a adição de pequenas quantidades de Fe é importante para estabilizar a fase cúbica do Co e assim eliminar a anisotropia cristalina. Foram realizadas medidas de resistividade elétrica em função da temperatura, magnetorresistência com campo aplicado paralela e perpendicularmente à corrente e de efeito Hall, com especial atenção à contribuição anômala. Medidas de magnetização também foram realizadas para auxiliar na interpretação dos resultados de magneto-transporte. A interpretação dos resultados de magnetorresistência foi feita com base no modelo de duas correntes de Campbell e Fert[1]. A discussão dos resultados de efeito Hall anômalo no Pd₂MnSn foi feita com base nos efeitos da fase de Berry. No caso das ligas de Co-Fe evidenciou-se a presença do mecanismo de espalhamento assimétrico pelas impurezas (skew scattering).

1 – Composto de Heusler Pd₂MnSn

Em baixas temperaturas, a resistividade elétrica ideal do Pd₂MnSn mostra uma dependência aproximadamente cúbica com a temperatura ($\rho \sim T^{2.7}$). Este resultado sugere que, neste regime, o termo de mistura de spins, $\rho_{\uparrow\downarrow}(T)$, domina o comportamento resistivo. Em temperaturas superiores a 50 K, a desordem de spin clássica torna-se o mecanismo resistivo mais importante quantitativamente. Em temperaturas bem acima da temperatura de Curie ($T_c = 189$ K no Pd₂MnSn), a desordem de spin dá origem a uma contribuição resistiva constante e o mecanismo de espalhamento por fônons se torna responsável pela observada variação linear da resistividade em função da temperatura.

No estudo da magnetorresistência, tal como era esperado, o Pd₂MnSn apresenta isotropia magnética, que foi verificada diretamente das medidas realizadas em campos aplicados paralela e perpendicularmente à corrente em todas as temperaturas estudadas.

Em baixas temperaturas, a magnetorresistência do Pd₂MnSn é positiva e linear com o campo aplicado. Este resultado inédito é atribuído ao termo de mistura de spins. Em temperaturas superiores a 50 K, a magnetorresistência do composto torna-se negativa. Nesta região, o mecanismo magnetorresistivo dominante é a supressão da desordem de spin causada pelo campo aplicado. Como esperado, este mecanismo apresenta amplitude máxima nas vizinhanças de T_c. Porém, mesmo em temperaturas bem acima de T_c, na fase paramagnética, a magnetorresistência causada pela desordem de spin ainda é dominante.

Assim como para as medidas de magnetorresistência, as experiências de efeito Hall foram realizadas na faixa de temperaturas entre 2 K e 300 K. As medidas de alta temperatura (T > T_c) permitiram a separação das contribuições ordinária e anômala ao efeito Hall. A constante de Hall ordinária obtida é $R_0 = -8,55 \times 10^{-12} \text{ m}^3/\text{C}$, que corresponde a uma densidade eletrônica $n = 7,4 (\pm 0,5) \times 10^{29} \text{ elétrons}/\text{m}^3$ para o Pd₂MnSn na fase paramagnética.

Supondo-se que R_0 permanece constante com a temperatura e considerando os efeitos do campo desmagnetizante, a constante de Hall anômala, R_S , foi obtida na região de temperaturas inferiores a T_c. Mostrou-se que para T > 50 K, R_S é proporcional ao quadrado da contribuição da desordem de spin para a resistividade. Este resultado sugere que o efeito Hall anômalo no Pd₂MnSn é devido a efeitos da fase de Berry. Como este composto de Heusler é um sistema de momentos localizados, é possível que tanto os efeitos de curvatura de Berry no espaço recíproco, quanto a quiralidade no espaço real [46] contribuam aditivamente ao efeito Hall anômalo. A quiralidade, no entanto, exige que o alinhamento de spins vizinhos seja não colinear. Isto enfraquece a hipótese de que tais efeitos sejam relevantes no Pd₂MnSn. O forte desvio do comportamento $R_S \sim \rho_m^2$ observado em T < 50 K pode ser indicativo de condução por duas correntes.

Em conclusão, no caso do Pd₂MnSn verificou-se em todas as medidas de magneto-transporte a existência de um comportamento que não pode ser explicado simplesmente pelas contribuições da força de Lorentz e do ordenamento causado pela presença do campo magnético. Sugere-se que este comportamento resulte do mecanismo de mistura de spins proposto por Campbell e Fert [1]. A origem desse termo está relacionado ao espalhamento por magnons e à interação spin-órbita que permite a transferência de elétrons de uma sub-banda

de spins para outra.

II – Ligas de Co-Fe

As medidas de resistividade elétrica e magneto-transporte realizadas nas ligas de Co-Fe x at % ($x = 2, 4$ e 6) sugerem que o termo de mistura de spins domina as propriedades de magneto-transporte no regime de baixas temperaturas ($T < 85$ K). Nesta região, a resistividade ideal varia com o cubo da temperatura, assim como no Pd_2MnSn . Por outro lado, o termo de desordem de spin torna-se mais importante no regime de altas temperaturas ($T > 250$ K).

No estudo da anisotropia espontânea da resistividade (AER), foi possível confirmar a presença de bandas de condução dependentes de spin fortemente polarizadas. Verificou-se também, em baixas temperaturas, que a polarização das bandas revelada pela resistividade residual é independente da concentração de impurezas para as ligas com estrutura cristalina fcc. Para o caso da liga com $x = 2$, a presença da anisotropia cristalina se manifesta na AER em baixas temperaturas. No entanto, em altas temperaturas, encontrou-se que a polarização das bandas das ligas de Co-Fe converge para o valor do metal hospedeiro e é independente do campo cristalino.

No regime de altos campos e baixas temperaturas, identificou-se a presença dominante do termo de mistura de spins na magnetorresistência. Este mecanismo produz magnetorresistência positiva e linear com o campo aplicado. Em altas temperaturas, a magnetorresistência negativa originada pela supressão da desordem de spin pode ser percebida.

A contribuição extraordinária ao efeito Hall foi separada do termo de Lorentz em baixas temperaturas. Em campos superiores ao valor que produz a saturação técnica da magnetização, a contribuição ordinária é identificável através da variação linear da resistividade de Hall com o campo aplicado. A constante de Hall anômala, R_s , é linearmente proporcional à resistividade longitudinal em campo nulo em todo o intervalo de temperaturas estudado. Este resultado sugere que o efeito Hall extraordinário nas ligas de Co-Fe se deve ao espalhamento assimétrico (skew scattering) pelas impurezas de Fe.

Algumas questões que não foram respondidas nesta dissertação podem motivar novas investigações. Por exemplo, o estudo do efeito de Hall anômalo do composto de Heusler

Pd_2MnSn em temperaturas inferiores a 50 K, onde esse sistema apresenta um mínimo em $\rho_H(T)$, deve ser aprofundado. Como visto, nessa região se deve levar em conta o efeito do termo de mistura de spins tanto no coeficiente de Hall ordinário quanto no coeficiente de Hall anômalo. No entanto, não existe teoria que leve em conta os efeitos do termo de mistura de spins nos coeficientes de Hall.

Outro aspecto a ser levado em conta é a presença de fortes indícios de que o termo de mistura de spins domine o regime de baixas temperaturas nas medidas de resistividade elétrica e magnetorresistência nos dois sistemas estudados. Porém, os efeitos deste termo não são evidentes na resistividade de Hall das ligas de Co-Fe. Deve-se, contudo, notar que a polarização de spin no sistema Co-Fe é muito mais forte e perdura até a temperatura ambiente e acima. Assim, é possível que os efeitos do termo de mistura de spins se estendam até temperaturas altas e sua extinção não seja tão perceptível como no caso do Pd_2MnSn .

De maneira geral, é necessário entender o papel do termo de mistura de spins em materiais ferromagnéticos, tanto nos sistemas de momentos localizados, como o Pd_2MnSn , quanto em ferromagnetos de banda. Assim, a presente investigação deve ser estendida a outros sistemas com polarização de spin. Outro aspecto que merece generalização e sistematização é o estudo da anisotropia espontânea da resistividade em ligas de cobalto. Os sistemas Co-Ni e Co-Cu são possíveis candidatos, pois nestas ligas é possível estabilizar a fase cúbica do cobalto em concentrações relativamente pequenas de dopante.

Referências

- [1] CAMPBELL, I. A.; FERT, A. **Transport Properties of Ferromagnets**, Holland: North - Holland Publishing Company, 1982.
- [2] COLEMAN, R. V.; MORRIS, R. C.; SELLMYER, D. J. *Magnetoresistance in Iron and Cobalt to 150KOe* , **Physical Review B**, New York , v.8, n.1, p.317 - 331, July 1973.
- [3] TAYLOR, G. R.; ISIN, A.; COLEMAN, R. V. *Resistivity of Iron as a Function of Temperature and Magnetization* , **Physical Review**, New York , v.165, n.2, p.621 - 631, Jan. 1968.
- [4] LANAY, J.; DOLECEK, R. L.; WEBBER, R. T. *Magnetoresistance of Copper* , **Journal of Physics Chemistry Solids**, Netherlands , v.11, n.1, p.37 - 42, Sept 1959.
- [5] BAIBICH, M.N.; BROTO, J.M.; FERT, A.; NGUYEN, V. D.; PETROFF, F.; ETIENNE, P.; CREUZET, G.; FRIEDERICH, A.; CHAZELAS, J. *Giant magnetoresistance of (001)Fe/(001)Cr magnetic superlattices* , **Physical Review Letters**, New York , v.61, n.21, p.2472 - 2475, Nov. 1988.
- [6] HIRSCH, J. E. *Spin Hall Effect* , **Physical Review Letters**, New York , v.83, n.9, p.1834 - 1837, Aug. 1999.
- [7] MOTT, N. F. *A discussion of the transition metals on the basis of quantum mechanics* , **Proceeding of Physical Society**, London , v.47, n.4, p.571 - 588, July 1935.
- [8] MOTT, N. F. *Electrons in disordered structures* , **Advances in Physics**, London , v.16, n.61, p.49 - 144, Jan. 1967.
- [9] ZIMAN, J. M. **Principles of the Theory of Solids**, U.K: Cambridge University Press, 1972.
- [10] PUREUR, P., **Estudo da resistividade elétrica de ligas de CoFe**. 1978.Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1978.
- [11] SONDHEIMER, E. H. ; WILSON, B. A.; WILSON, A. H. *The theory of the magnetoresistance effects in metals* , **Proceedings The Royal of Society A**, London , v.190, n.9, p.435 - 455, Sept. 1947.
- [12] GENNES, P.G.; FRIEDEL, J. *Anomalies de résistivité dans certains métaux magnétiques* , **Journal of Physics and Chemistry of Solids**, London , v.4, n.1-2, p.71 - 77, May 1958.
- [13] FERT, A.; CAMPBELL, I. A. *Electrical resistivity of ferromagnetic nickel and iron based alloys* , **Journal Physic F: Metal** , Grain Britain , v.6, n.5, p.849 - 871, May 1976.

- [14] JAOU, O.; CAMPBELL, I. A.; FERT, A. *Spontaneous resistivity anisotropy in Ni alloys*, **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, Amsterdam, v.5, n.1, p.23 - 34, March 1977.
- [15] HURD, C. M. **The Hall effect in metals and alloys**, New York: Plenum Press, 1972.
- [16] KITTEL, C. **Introduction to solid state physics**, New York: John Wiley & Sons, Inc., 1976.
- [17] PUGH, E. M. *Hall Effect and the magnetic properties of some ferromagnetic materials*, **Physical Review**, New York, v.36, n.1, p.1503 - 1511, Nov. 1930.
- [18] PUGH, E. M.; LIPPERT, T. W. *Hall e.m.f. and intensity of magnetization*, **Physical Review Letters**, New York, v.42, n.5, p.709 - 713, Dec. 1932.
- [19] KARPLUS, R.; LUTTINGER, J. M. *Hall Effect in ferromagnetics*, **Physical Review**, New York, v.95, n.5, p.1154 - 1160, Sept. 1954.
- [20] NAGAOSA, N. *Anomalous Hall effect*, **Reviews of Modern Physics**, v.82, n.2, p.1539 - 1592, April - June 2010.
- [21] SMIT, J. *The spontaneous Hall effect in ferromagnetics I*, **Physica**, Amsterdam, v.21, n.6, p.877 - 887, Aug. 1955.
- [22] SMIT, J. *The spontaneous Hall Effect in ferromagnetics II*, **Physica**, Amsterdam, v.24, n.39, p., 1958.
- [23] ROSSITER, P. L. **The electrical resistivity of metals and alloys**, Cambridge: Cambridge University Press, 1986.
- [24] ONOSE, Y.; TAKESHITA, N.; TERAOKA, C.; TAKAGI, H.; TOKURA, Y. *Doping dependence of transport properties in $Fe_{1-x}Co_xSi$* , **Physical Review B**, New York, v.72, n.224431, p.1 - 12, 2005.
- [25] HURD, C. M.; SHIOZAKI, I.; MCALISTER, P. *Electrical and magnetic properties of Pd_2MnIn , Pd_2MnSn , Cu_2MnAl , and Cu_2NiSn Heusler alloys*, **Physical Review B**, New York, v.26, n.2, p.701 - 709, July 1982.
- [26] HAMZIC, A.; ASOMOZA, R.; CAMPBELL, I. A. *The transport properties of Heusler alloys: 'ideal' local moments ferromagnets*, **Journal of the Physics F: Metal Physics**, Great Britain, v.11, n.7, p.1441 - 1447, Febr. 1981.
- [27] KÜBLER, J.; WILLIAMS, A. R.; SOMMERS, C. B. *Formation and coupling of magnetic moments in Heusler alloys*, **Physical Review B**, New York, v.28, n.4, p.1745 - 1755, Aug. 1983.
- [28] HOFER, L. J.; PEEBLES, W. C. *Preparation and X-ray diffraction studies of a new*

- cobalt carbide* , **Journal of the American Chemical Society**, New York , v.69, n.4, p.893–899, Apr. 1947.
- [29] HOWARD, F. M.; MARLENE, C. M.; ELOISE, H. E.; BORIS, P.; JOHAN, H. G.;CAMDEN, C. H.; SIMON, J. C., **Standard X-ray diffraction powder pattern**. 1966.Dissertação (Monografia) - Institute for Materials ResearchNational Bureau of Standards, Institute for Materials ResearchNational Bureau of Standards, Washington, B.C., Natl. Bur. Stand. (U.S.) Monogr. 25, 4, 10, 1966.
- [30] JOSSO, E. *Iron - cobalt - vanadium alloys: a critical study of the phase diagrams in relation to magnetic properties* , **IEEE Transactions on Magnetics** , v.10, n.2, p.161 - 165, June 1974.
- [31] HUANG, J. Y.; WU, Y. K.; YE, H. Q. *Phase transformation of cobalt induced by ball milling* , **Applied Physics Letter**, New York , v.66, n.3, p.308 - 310, Jan. 1995.
- [32] CARDELLINI, F.; MAZZONE, G. *Thermal and structural study of the h.c.p. to f.c.c. transformation in cobalt* , **Philosophical Magazine A**, London , v.67, n.6, p.1289 - 1300, 1993.
- [33] VEGA, A.; NOLTING, W. *Finite-temperature ferromagnetism of f.c.c. cobalt* , **Physic State Solid (b)** , v.193, n.1, p.177 - 187, Feb. 1996.
- [34] PUREUR, P.; FRAGA, G. L.; KUNZLER, J. V.; SCHREINER, W. H.; BRANDÃO, D. E.; HURD, C. M. *Critical resistivity and low field magnetoresistance in Pd₂MnSn* , **Journal de Physique** , v.49, n.12, p.179 - 180, Dec. 1988.
- [35] CAMPBELL, C. C. M. *Hyperfine field systematics in Heusler alloys this* , **Journal of Physics F: Metal Physics** , v.5, n.10, p.1931 - 1945, Oct. 1975.
- [36] FISHER, M. E.; LANGER, J. S. *Resistive anomalies at magnetic critical points* , **Physical Review Letters**, New York , v.20, n.13, p.665 - 668, Mar. 1968.
- [37] SCHREINER, W. H.; PUREUR, P.; BRANDÃO, D.E. *Electrical resistivity measurements on the Cu₂MnAl Heusler alloy* , **Journal of Physics and Chemistry of Solids** , v.40, n.6, p.427-429, Apr. 1979.
- [38] MCALISTER, S. P.; SHIOZAKI, I.; HURD, C. M.; STAGER, C. V. *Galvanomagnetic effects in the Ni₂MnSn Heusler alloy* , **Journal of Physics F: Metal Physics**, Great Britain , v.11, n.10, p.2129 - 2138, Apr. 1981.
- [39] BOSE, S. K.; KUDRNOVSKY, J.; DRCHAL, V.; TUREK, I. *Magnetism of mixed quaternary Heusler alloys: (Ni,T)₂MnSn (T=Cu,Pd) as a case study* , **Condensed Matter**, New York , v.1, n.1, p.1 - 10, Aug. 2010.

- [40] FERT, A. *Two-current conduction in ferromagnetic metals and spin wave-electron collisions*, **IOPscience Login Create account Athens/Institutional login** **Journal of Physics C: Solid State Physics**, Great Britain, v.2, n.10, p.1784 - 1788, Oct. 1969.
- [41] ZIMAN, J. M. *Galvanomagnetic properties of cylindrical Fermi surfaces*, **Philosophical Magazine**, v.3, n.34, p.1117 - 1127, Oct. 1958.
- [42] ISHIDA, S.; ASATO, H.; IWASHIMA, E.; KUBO, Y.; ISHIDA, J. *Fermi surfaces of Cu, MnAl, Pd₂MnSn and Ni₂MnSn*, **Journal of the Physics F: Metal Physics**, Great Britain, v.11, n.5, p.1035 - 1046, May 1981.
- [43] CULLITY, B. D. **Introduction to magnetic materials**, Massachusetts: Addison-Wesley Publishing Company, 1972.
- [44] CAMPBELL, I. A.; FERT, A.; JAOU, O. *The spontaneous anisotropy in Ni-based alloys*, **Journal Physic C: Solid State Physics**, Great Britain, v.3, n.1, p., 1970.
- [45] O'SHEA, V. A. P.; MOREIRA, I. P. R.; ROLDÁN, A.; ILLAS, F. *Electronic and magnetic structure of bulk cobalt: The α , β , and ε -phases from density functional theory calculations*, **The Journal of Chemical Physics**, v.133, n.024701, p., July 2010.
- [46] 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 - 2616, 2002.