

Universidad Central de Venezuela
Facultad de Ciencias
Postgrado en Física



Tesis Doctoral Titulada

**SUPERCONDUCTIVIDAD NO CONVENCIONAL
Y CRITICALIDAD CUÁNTICA EN FERMIONES
PESADOS NO CENTROSIMÉTRICOS**

Autor: M. Sc. Javier Landaeta

Tutor: Dr. Ismardo Bonalde

Caracas - Venezuela

Marzo 2017

Agradecimientos

Quiero agradecer al Dr. Ismardo Bonalde, por convertirse en un guía de alto valor y por transmitirme enseñanzas que me han permitido sortear el camino de la ciencia emprendido durante varios años en el laboratorio de temperaturas bajas del IVIC.

Gracias a Baudillio Quiroz, Freddy Borrego y Alexander Torres, cuya disposición y asesoría técnica fueron determinantes en el desarrollo de este trabajo. Gracias a Renate Oentrich y Jose Gregorio Santos por su gran colaboración en el desenvolvimiento de la dinámica del laboratorio.

Gracias a Sofía Taylor, que fue de gran ayuda y muy buena compañera de trabajo en los inicios del desarrollo de este proyecto. Gracias Diego Subero y Diego Catalá por su compañerismo y gran ayuda en las medidas realizadas. Gracias a Pabel Machado y Sabrina Palazzese por su apoyo y compañerismo en el laboratorio.

Quiero agradecer a amigos, familiares y personas cercanas que siempre me han brindado un gran apoyo y que incluso en la distancia lograron mantenerme animado. Quiero agradecer especialmente a mi padre Rodrigo Landaeta por ayudarme, guiarme y apoyarme de manera incondicional en toda mi carrera.

... a mi padre Rodrigo Landaeta

Resumen

La relación entre la superconductividad y el magnetismo es uno de los tópicos más importantes de la física de materia condensada. Siendo estos dos fenómenos mutuamente excluyentes, es sorprendente que la superconductividad se desarrolle alrededor de un punto crítico cuántico magnético en un amplio rango de sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. Entre estos sistemas se encuentran los óxidos de cobre (cupratos), los orgánicos, los “pnictides/chalcogenides” de hierro y los fermiones pesados. Se cree ampliamente que en estos compuestos la superconductividad es no convencional y está directamente influenciada por el punto crítico cuántico. Sin embargo, experimentalmente tanto la superconductividad no convencional como la influencia directa de algún mecanismo físico del punto crítico cuántico no ha sido firmemente establecida en la gran mayoría de los sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. En aras de profundizar en estas preguntas abiertas, se desarrolló un sistema de medida, primero en su tipo, para estudiar el parámetro de orden bajo presión mediante estudios de alta resolución de longitud de penetración magnética. En este trabajo se muestra un estudio sistemático en presión de la respuesta en temperatura de la longitud de penetración magnética en los fermiones pesados no centrosimétricos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 . En el estudio se muestra que: (a) El CeIrSi_3 presenta una transición de un comportamiento no convencional (líneas de nodos en la brecha de energía) a convencional (brecha de energía isotrópica) a una presión distintivamente menor al punto crítico cuántico. (b) En el CeRhSi_3 no existe un punto crítico cuántico inducido por presión y su comportamiento superconductor permanece no convencional (líneas de nodos) en todo el rango de presiones alcanzadas. Estos resultados proveen la primera evidencia que el comportamiento de superconductividad no convencional en el CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 está más asociado con la influencia del orden antiferromagnético que con algún mecanismo físico presente en el punto crítico cuántico. Los resultados de este trabajo pueden ayudar a comprender la conexión que existe entre la superconductividad y el magnetismo en otros sistemas electrónicos fuertemente correlacionados similares a los presentados en este trabajo.

Índice general

Introducción	1
1. Superconductividad en Fermiones Pesados	10
1.1. Teoría Microscópica de la Superconductividad	10
1.1.1. Simetría del Apareamiento en el Estado Superconductor	12
1.1.2. Superconductividad Convencional y no Convencional	15
1.2. Materiales no Centrosimétricos	18
1.3. Superconductividad en Fermiones Pesados	21
1.3.1. Superconductividad en las Cercanías de un Punto Crítico Cuántico	32
2. Longitud de Penetración Magnética y Parámetro de Orden	33
2.1. Efectos Macroscópicos de la Superconductividad	33
2.1.1. Longitud de Penetración Magnética	34

2.2. Longitud de Penetración Magnética y la Simetría de la Brecha de Energía	37
3. Parte Experimental	40
3.1. Medidas de Longitud de Penetración Magnética: Oscilador de Diodo Túnel	40
3.1.1. Principio Físico	40
3.1.2. Susceptibilidad Magnética y Longitud de Penetración Magnética .	44
3.1.3. Susceptibilidad Magnética y Efecto Piel	46
3.1.4. Longitud de Penetración Magnética en Muestras Magnéticas . . .	47
3.1.5. Sistema de Medida	48
3.2. Altas Presiones	53
3.2.1. Celda de Pistón de CuBe/NiCrAl	53
3.2.2. Medidas de Presión	57
3.3. Implementación del Sistema de Medida de Longitud de Penetración Magnética en el Régimen de Altas Presiones y Bajas Temperaturas	61
3.3.1. Prueba de Termometría y Presión a Bajas Temperaturas	62
3.4. Preparación de las Muestras de CeIrSi ₃ y CeRhSi ₃	64
4. Parámetro de Orden en CeIrSi₃ y CeRhSi₃	65
4.1. Estudios Previos en los compuestos CeIrSi ₃ y CeRhSi ₃	66

4.2. CeIrSi ₃	71
4.2.1. Propiedades Superconductoras del CeIrSi ₃	79
4.3. CeRhSi ₃	85
4.3.1. Propiedades sueperconductoras del CeRhSi ₃	89
4.4. Conclusiones	91
Publicaciones	94

Índice de figuras

1.	Temperatura crítica superconductor vs año de descubrimiento del superconductor. Los círculos verdes representan superconductores BCS, las estrellas verde claro fermiones pesados, los diamantes azules oxido de cobre, cuadrados naranja “pnictides/chalcogenides” de hierro y los triángulos rojos los orgánicos (imagen de Ref. [10])	2
2.	Diagrama de fase para diferentes familias de sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. Diagrama de fase del fermión pesado CeRhIn ₅ [12], cupratos [11] y Pnictides de hierro [13]. En todos se observa que la superconductividad se desarrolla en las cercanías de una fase AFM, donde el máximo T_c está ubicado en la vecindad de los posibles puntos críticos cuánticos.	4
3.	Diagrama de fase T vs P para fermiones pesados. Esquema general del diagrama de fase para fermiones pesado. El orden magnético es variado, puede encontrarse antiferromagnetismo estático, ondas de densidad de espín e incluso ferromagnetismo [18].	5

1.1. Brechas de energía isotrópicas. (a) Brecha de energía isotrópica sobre una superficie de Fermi cilíndrica. (b) Brecha isotrópica sobre una superficie de Fermi esférica	17
1.2. Brechas de energía anisotrópicas (a) Brecha de energía tipo onda d donde hay líneas de nodos en la superficie de Fermi. (b) Brecha de energía tipo onda- p , se observan puntos de nodos en los polos con la superficie de Fermi.	17
1.3. Estructura con centro de simetría de inversión (a) y sin centro de inversión (b)	18
1.4. Representación del desdoblamiento de la banda de energía debido al acople espín órbita antisimétrico. Los espines electrónicos se orientan de manera opuesta respecto al campo magnético en cada banda.	20
1.5. Atracción efectiva entre electrones mediada por fonones (vibración de la red cristalina)	22
1.6. Representación del apantallamiento de los momentos magnéticos en el efecto Kondo. Los momentos magnéticos se ven apantallados por los electrones de conducción por debajo de la temperatura de Kondo T_K (imagen tomada de Ref. [31])	25
1.7. Esquema general de la dispersión de Kondo y el singlete Kondo. a) Dispersión de entre electrones de conducción y momentos magnéticos locales (b) Representación del singlete Kondo.	26
1.8. Diagrama de fase de Doniac	27

1.9. Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados	28
1.10. Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados con ruptura del singlete Kondo	30
1.11. Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados en con punto crítico cuántico de ondas de densidad de espín	31
2.1. Comportamiento de un superconductor bajo la acción de campo magnético estático débil: a) Estado normal ($T > T_c$), no hay expulsión del flujo magnético. b) Para $T < T_c$, el material se encuentra en el estado superconductor y hay expulsión del flujo magnético de su interior.	34
2.2. Representación esquemática de la longitud de penetración magnética	36
3.1. Forma general de las muestras utilizadas en las medidas de longitud de penetración magnética.	44
3.2. Curva característica del diodo túnel DB3 a diferentes temperaturas.	49
3.3. Circuito oscilador LC de diodo túnel. El circuito esta constituido por los elementos $C_1 = 100 \text{ pF}$, $C_2 = 100 \text{ pf}$, $C_3 = 20 \text{ pF}$, $R_1 = 300 \Omega$, $R_2 = 300 \Omega$, $R_3 = 1200 \Omega$, $L_1 = 0,82 \mu\text{H}$ y $L_2 = 0,32 \mu\text{H}$	50
3.4. Diagrama de medida de Δf	51

3.5. Diagrama general de la celda de presión. (1) Cilindro exterior de CuBe de la celda de presión, (2) Tornillo superior de CuBe, (3) Tornillo inferior de CuBe, (4) Soporte del tapón de WC no magnético, (5) Soporte del pistón de presurización de WC no magnético, (6) Pistón de presurización de WC no magnético, (7) Tapón de NiCrAl, (8) Anillo de sello de presión inferior de CuBe, (9) Anillo de sello de presión superior de CuBe, (10) Cápsula de teflon, (11) Tapón cónico de soporte para el sellar el paso de conexiones en el tapón de NiCrAl, (12) Vara de empuje de NiCrAl	54
3.6. Montaje del sistema de longitud de penetración magnética en la celda de presión. (1) Tapón, (2) Bastón porta muestra, (3) Rubí, (4) Muestra, (5) Sello superior de la cápsula de teflón, (6) Cápsula de teflón, (7)Bobina principal, (8) Fibra óptica, (9) Sello de Epoxy , (10) Sello inferior de la cápsula de teflón.	55
3.7. Sistema óptico para medidas de presión.	57
3.8. Comportamiento de la línea R_1 del rubí en temperatura	58
3.9. Espectro de fluorescencia del rubí a presión atmosférica a 297 K y 4.2 K.	59
3.10. Medida de presión por fluorescencia del rubí a temperatura ambiente	60

3.11. Implementación de la celda de presión con el sistema de medida de longitud de penetración magnética en el refrigerador de dilución de $^3\text{He}/^4\text{He}$. a Se muestra el tapón de NiCrAl, la bobina principal, la muestra, la fibra óptica y el rubí. b Disposición de la camisa de termalización con la celda de presión, parte A del circuito <i>LC</i> y la cámara de mezcla. c Refrigerador de dilución y ubicación de la parte B del circuito <i>LC</i>	61
3.12. Medidas de longitud de penetración magnética expresado en frecuencia para Sn, Al, Zn y Cd a 1.64 GPa	63
4.1. Estructura cristalina del CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 . Estructura tetragonal del tipo BaNiSn_3 pertenecientes al grupo espacial $I4mm$ (Nro. 107). La esfera azul representa al Ce, la negra al Si y la amarilla al Ir y Rh según sea el caso. (imagen tomada de Ref. [47]).	66
4.2. Diagrama de fase temperatura-presión del CeIrSi_3 obtenido en estudios previos. (a) Datos obtenidos por medidas de resistividad eléctrica y capacidad calorífica (imagen tomada de Ref. [49]). (b) Mayor detalle en el diagrama de fase en la región donde coexiste la fase antiferromagnética con la superconductividad (imagen tomada de Ref. [50]).	67
4.3. Diagrama de fase temperatura-presión del CeRhSi_3 obtenido en estudios previos. Datos obtenidos con medidas de resistividad eléctrica (imagen tomada de Ref. [48]).	68

4.4. Difracción de neutrones a presión atmosférica para el CeIrSi₃ y CeRhSi₃. El orden magnético incommensurable refleja la naturaleza itinerante de electrones f [52, 53] (imagen tomada de Ref. [53]).	69
4.5. Estructura electrónica del CeIrSi₃ y el CeRhSi₃. Simulaciones de la superficie de Fermi basada en medidas de dHvA (imagen tomada de Ref. [55, 56])	70
4.6. Longitud de penetración magnética y efecto piel del CeIrSi₃ bajo presión hidrostática Dependencia de la frecuencia de oscilación (f) con la temperatura en diferentes presiones, donde; $f(T) \propto \lambda(T)$ para $T < T_c$ y $f(T) \propto \delta(T)$ para $T > T_c$. La marca T_c se refieren al comienzo de la transición superconductora y la marca T_N se asocia a una transición antiferromagnética. En el recuadro interno de (e) y (f) se muestra un incremento de la longitud de penetración magnética asociada con la presencia de antiferromagnetismo dentro del estado superconductor.	72
4.7. Penetración magnética y efecto piel expresados en Δf normalizada a la frecuencia en 3 K.	73
4.8. Penetración magnética en HoNi₂B₂C y ErNi₂B₂C. (a) Medidas de susceptibilidad magnética y penetración magnética del HoNi ₂ B ₂ C, donde se muestra el aumento en la penetración magnética (expresada en Δf) debido al orden antiferromagnético (imagen tomada de Ref. [67]). (b) Penetración magnética del ErNi ₂ B ₂ C en el recuadro interno se observa el efecto del orden magnético en la medida (imagen tomada de Ref. [68])	75

4.9. Diagrama de fase H (T) vs T(K) del CeIrSi ₃ para diferentes presiones. (imagen tomada de Ref. [60])	76
4.10. Antiferromagnetismo dentro del estado superconductor en el CeRhIn ₅ . (a) Medidas de C_p con campos magnéticos revelan la fase antiferromagnética dentro la fase superconductora. (b) Diagrama de fase T (K) vs P (GPa) donde se muestra el antiferromagnetismo dentro del estado superconductor (imagen tomada de Ref. [69]).	77
4.11. Diagrama de fase temperatura versus presión para el CeIrSi ₃ . Los triángulos representan las temperaturas de Néel T_N , y las esferas las temperaturas críticas superconductoras T_c . Hay tres regiones identificadas como AFM (antiferromagnetismo), AFM+SC (antiferromagnetismo + superconductividad) y SC (superconductividad), donde $p_c \approx$ es la presión en la cual $T_N = T_c$ y p_c^* es donde T_c es máxima. Alrededor de p_c^* , dentro del error experimental, se encuentra el punto crítico cuántico . . .	78
4.12. Longitud de penetración magnética del CeIrSi ₃ para diferentes presiones.	80
4.13. Región de bajas temperaturas de la longitud de penetración magnética del CeIrSi ₃ para presiones $p < p_c$	81
4.14. Región de bajas temperaturas de la longitud de penetración magnética del CeIrSi ₃ para presiones $p > p_c$	82

4.15. Comportamiento de la magnitud brinco de capacidad calorífica y campo crítico $H_{c2}(0)$ del CeIrSi_3 en presión. Las propiedades superconductoras del campo crítico y el brinco en la capacidad calorífica se hacen máximas en las cercanías de p_c^* (imagen tomada de Ref. [60]) . . .	83
4.16. Comportamiento del ancho de la transición superconductora en presión	84
4.17. Evolución del valor de la brecha de energía en presión. Valores $\Delta_0/k_B T_c$ obtenidos del ajuste exponencial para diferentes presiones	85
4.18. Longitud de penetración magnética y efecto piel del CeRhSi_3 para diferentes presiones. Medidas de efecto piel y penetración magnética representadas en cambio de frecuencia. Donde T_c marca el inicio de la transición superconductora y T_N esta asociado a la transición antiferromagnética Las medidas no muestran signos de antiferromagnetismo por debajo de T_c	86
4.19. Diagrama de fase T (K) vs P (GPa) para el CeRhSi_3. Los triángulos representan temperaturas de Néel T_N y las esferas temperaturas críticas superconductoras T_c . El antiferromagnetismo tiende asintóticamente a la fase superconductora, y se unen a una presión $p_c^* \approx 2,80$ GPa donde T_c se hace máxima.	87
4.20. Diagrama de fase temperatura- campo magnético del CeRhSi_3 a 2.61 GPa. Diagrama de fase T (K) vs H (T) a 2.61 GPa muestra que el antiferromagnetismo puede estar escondido dentro de la fase superconductora (imagen tomada de Ref. [74])	88

4.21. Logintud de penetración magnética para el CeRhSi_3 bajo efecto de presión hidrostática.	90
4.22. Comportamiento del ancho de la transición superconductora $T_c - T_{MA}$ del CeRhSi_3 en función de la presión.	90

Índice de cuadros

1.1. Operaciones de simetría sobre las funciones de onda del estado superconductor [19].	15
--	----

Introducción

El descubrimiento de la superconductividad en 1911 por Kamerlingh Onnes en Leiden [1] provocó un sinnúmero de acontecimientos científicos relevantes relacionados tanto con aplicaciones prácticas como con la comprensión fundamental del más intrigante estado macroscópico de coherencia de electrones. En el año 1957 aparece una teoría que logra explicar la superconductividad desde primeros principios, la cual supone el origen de la misma como producto de una interacción atractiva entre electrones en la vecindad del nivel de Fermi mediante de un intercambio de fonones (interacción electrón-fonón). La teoría fue concebida por Bardeen, Cooper y Schrieffer y es llamada teoría BCS por las iniciales de sus apellidos [2,3]. La teoría BCS logró explicar todos los resultados experimentales de todos los materiales y compuestos encontrados hasta esa fecha.

En el año 1979, se encuentra el primer compuesto cuya superconductividad no pudo ser explicada por la teoría BCS. Este compuesto fue el fermión pesado CeCu_2S [4]. Desde entonces, se ha encontrado una gran cantidad de nuevos superconductores que no pueden ser explicados ya sea parcialmente o totalmente por la teoría BCS. En la Figura 1 se tiene un gráfico de temperaturas críticas versus fecha de descubrimiento de superconductividad en varios materiales. En este gráfico, los círculos verdes representan

aquellos superconductores en los que la interacción electrón-fonón logra explicar el mecanismo de la superconductividad. En el resto de las familias superconductoras el origen de la superconductividad aún no es comprendido, ya que muchas de sus propiedades no logran ser explicadas por la interacción electrón-fonón (BCS). En este último grupo de familias se encuentran los óxidos de cobre (Cupratos) [5], los orgánicos [6], los “pnictides/chalcogenides” de hierro [7] y los fermiones pesados [8,9]. Estas familias forman parte de lo que se conoce como sistemas electrónicos fuertemente correlacionados.

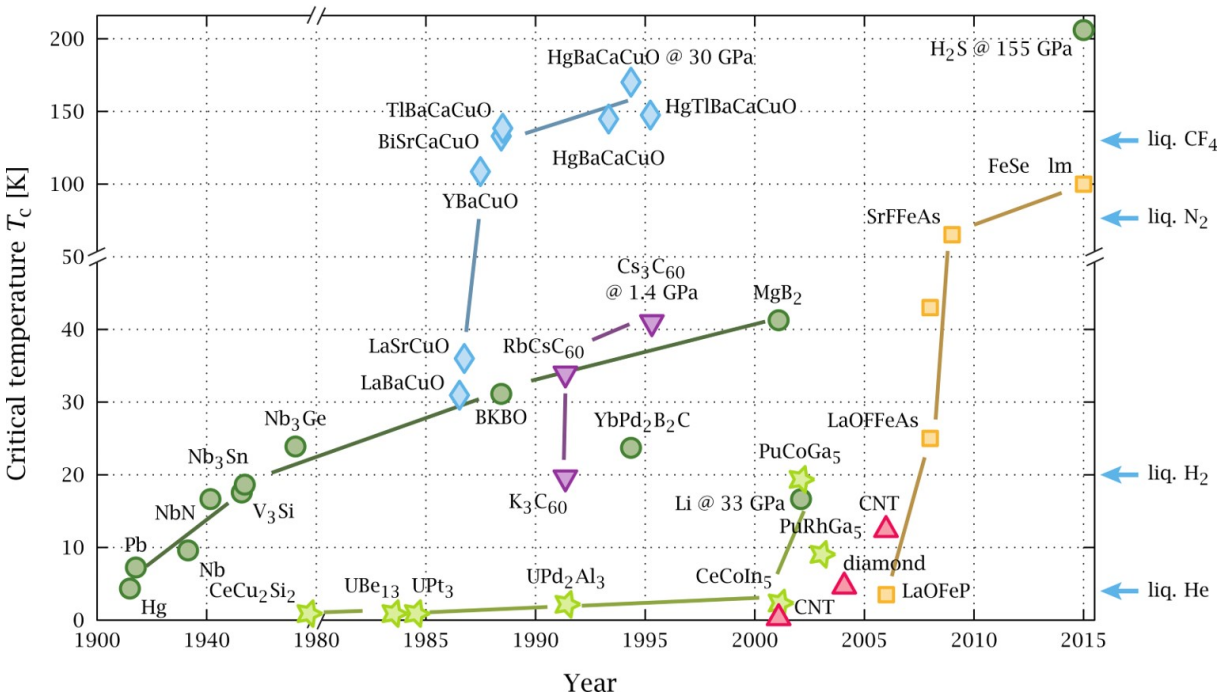


Figura 1: Temperatura crítica superconductora vs año de descubrimiento del superconductor. Los círculos verdes representan superconductores BCS, las estrellas verde claro fermiones pesados, los diamantes azules oxido de cobre, cuadrados naranja “pnictides/chalcogenides” de hierro y los triángulos rojos los orgánicos (imagen de Ref. [10])

Resulta sorprendente que en algunos sistemas electrónicos fuertemente correlacionados la superconductividad emerge en presencia e incluso coexistencia con una fase

magnética, siendo estos fenómenos (magnetismo y superconductividad) mutuamente excluyentes. En la mayoría de estos sistemas electrónicos fuertemente correlacionados, surge una fase antiferromagnética en la región de bajas temperaturas, y la aplicación de un parámetro externo de sintonización (usualmente presión, sustitución química o campo magnético) debilita el antiferromagnetismo y promueve la aparición de la superconductividad. El valor del parámetro en el cual la temperatura de la transición antiferromagnética (AFM) T_N se hace cero, define el punto crítico cuántico. En general, la superconductividad se desarrolla en una región tipo domo, donde la temperatura crítica superconductor T_c tiene un máximo. En algunos casos, como en los cupratos de huecos dopados o “hole-doped” [5,11], el antiferromagnetismo desaparece antes de que la superconductividad emerja (ver Figura 2). Sin embargo, en la mayoría de los casos, la superconductividad y el antiferromagnetismo coexisten en una zona donde T_N decrece mientras T_c se incrementa a medida que parámetro de sintonización aumenta. Este comportamiento lo presentan los fermiones pesados y los “pnictides/chalcogenides” de hierro, que tienen un diagrama de fase esquemático como el mostrado en la Figura 2. En estos casos, el punto crítico cuántico está ubicado cerca o en el valor del parámetro de sintonización para el cual T_c es máximo. Este último escenario ubica a los fermiones pesados en el clásico diagrama de fase de Doniach (Figura 3), el cual describe una dinámica entre dos interacciones: la RKKY, que propicia la formación de un orden antiferromagnético, y la interacción Kondo, que apantalla los momentos magnéticos locales con los electrones de conducción, llevando a la formación de un singlete entre los electrones de conducción y los momentos magnéticos locales (singlete Kondo) en la región de altos valores del parámetro de sintonización.

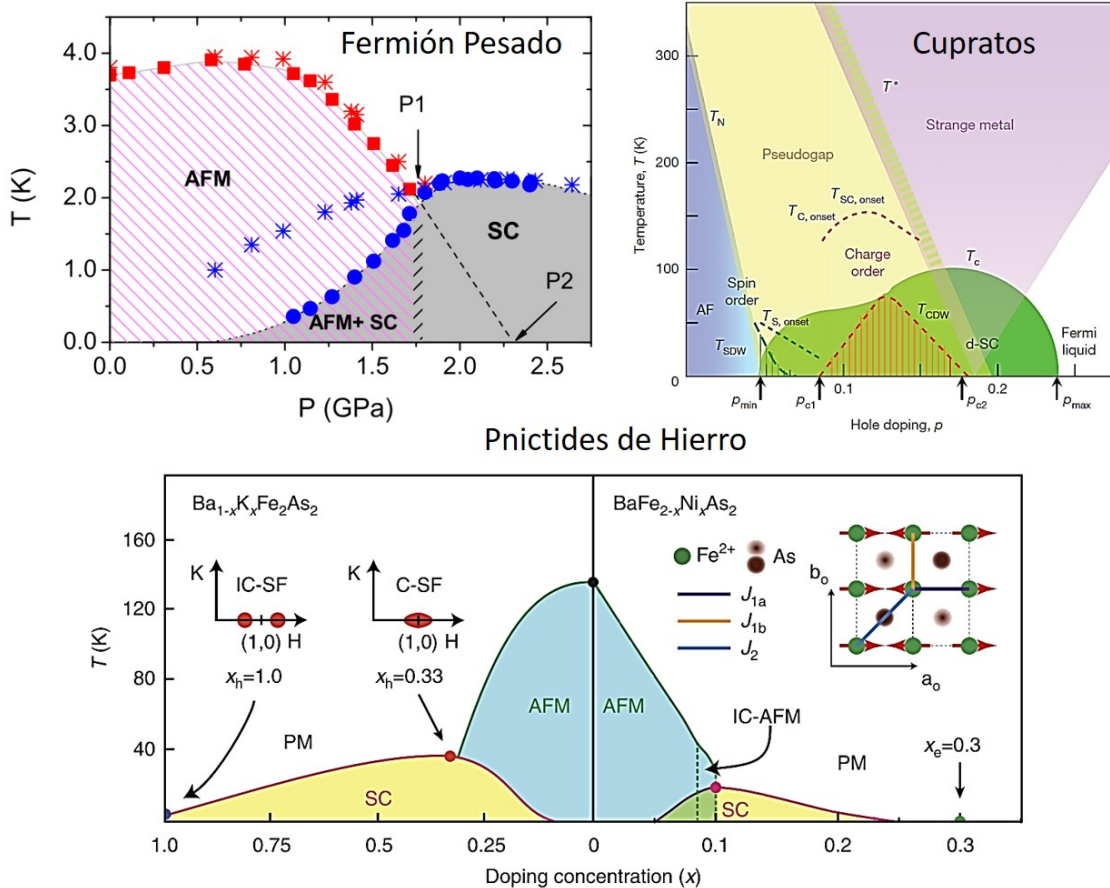


Figura 2: Diagrama de fase para diferentes familias de sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. Diagrama de fase del fermión pesado CeRhIn_5 [12], cupratos [11] y Pnictidos de hierro [13]. En todos se observa que la superconductividad se desarrolla en las cercanías de una fase AFM, donde el máximo T_c está ubicado en la vecindad de los posibles puntos críticos cuánticos.

El diagrama de fase descrito anteriormente (Figura 3) es el centro de la dinámica entre el magnetismo y la superconductividad en fermiones pesados. El mecanismo físico que conlleva a la coexistencia y posible competencia entre el antiferromagnetismo y la superconductividad es altamente intrigante y desconocido. Igualmente interesante, es el posible rol que tiene el orden antiferromagnético en las propiedades superconductoras. Para entender la transición de fase cuántica (transición de fase a $T = 0$) del magne-

tismo en fermiones pesados, se han propuesto dos escenarios según Steglich [14–17]. El primero es conocido como **criticalidad cuántica local**, que implica que el singlete Kondo se rompe como electrones f localizados y desacoplados de la banda de conducción. Esto conlleva a cambios significantes en la superficie de Fermi en el punto crítico cuántico y a la formación de un orden AFM de electrones localizados. El otro escenario es que el singlete Kondo no se rompe completamente y los electrones f siguen vinculados de alguna manera con los electrones de conducción, formando un orden magnético de tipo onda de densidad de espín. Este punto crítico cuántico se conoce como **punto crítico cuántico de onda de densidad de espín**. En este escenario las fluctuaciones cuánticas de espín del orden magnético son la única variable crítica alrededor del punto crítico cuántico, la cual supone que tiene influencia en el mecanismo de apareamiento de electrones.

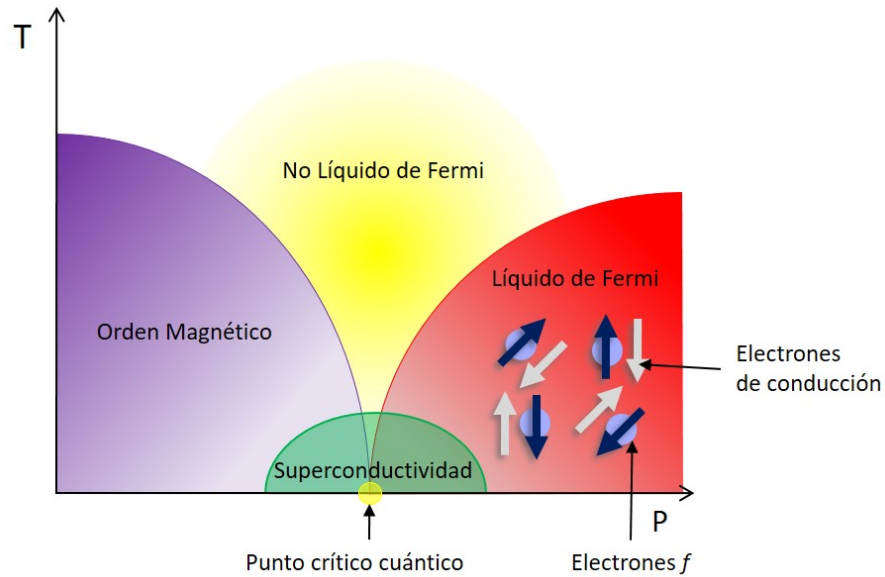


Figura 3: Diagrama de fase T vs P para fermiones pesados. Esquema general del diagrama de fase para fermiones pesado. El orden magnético es variado, puede encontrarse antiferromagnetismo estático, ondas de densidad de espín e incluso ferromagnetismo [18].

Los trabajos experimentales enfocados en resolver las interrogantes que existen entre la superconductividad y el magnetismo en los diagramas de fase mencionados son escasos. Esto se debe a que realizar estudios en la mayoría de los sistemas electrónicos fuertemente correlacionados representa un reto tecnológico, que involucra la sustitución química (dopamiento) en los compuestos o la implementación de medidas de propiedades magnéticas y/o termodinámicas en condiciones de altas presiones y bajas temperaturas. Entre las grandes incertidumbres que existen en estos sistemas superconductores, está el comprender la influencia que tiene tanto el punto crítico cuántico como la fase magnética en las propiedades superconductoras en todo el domo superconductor. Particularmente en la superconductividad, unos de los estudios fundamentales para su comprensión involucra la simetría del parámetro de orden o la estructura de la brecha de energía, la cual está directamente relacionada con el mecanismo responsable de la superconductividad [19]. Recientemente, análisis de este tipo han sido realizados en algunos sistemas electrónicos fuertemente correlacionados. En el compuesto CrAs, se observó una brecha isotrópica a presiones ubicadas en las cercanías del punto crítico cuántico [20]. Para el compuesto $\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x\text{Fe}_2\text{As}_2$, se estudió la estructura de la brecha de energía en todo el domo superconductor, utilizando la sustitución química (dopamiento) como parámetro de sintonización. Aquí se encontró una evolución de la brecha de energía que se inicia en la ausencia de nodos a la presencia de estos en $x = 0,6$, valor que está muy por encima tanto del punto crítico cuántico como del máximo del domo superconductor. Este cambio en la estructura de la brecha de energía fue atribuido a cambios en la superficie de Fermi (transición de Lifshitz) [21]. En estudios similares realizados en los compuestos $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ [22, 23] y $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$ [24] no se hizo énfasis en la dependencia de la estructura del brecha de energía; sin embargo, los resultados no muestran cambios aparentes en la brecha de energía a lo largo del domo

superconductor.

En los sistemas de fermiones pesados, la simetría del parámetro de orden no ha sido examinada a lo largo del domo superconductor, solo se ha trabajado en características generales del diagrama de fase en algunos compuestos. En los fermiones pesados sintonizados por presión CeCu_2Si_2 y CePd_2Si_2 se ha reportado electrones f itinerantes a presión atmosférica y se cree que las fluctuaciones de espín en el punto crítico cuántico de ondas densidad de espín son las responsables de la superconductividad no convencional [25, 26]. Por otro lado, el CeRhIn_5 , muestra un cambio significativo en la superficie de Fermi en el punto crítico cuántico, pero hasta ahora no se ha podido verificar que la superconductividad no convencional está directamente relacionada con el punto crítico cuántico de ruptura del singlete Kondo (criticalidad cuántica local). En cualquier caso, no se espera que el mecanismo de apareamiento de electrones mediado por fonones ocurra en superconductores de fermiones pesados.

La característica de ser sintonizados por presión es una ventaja comparado con la complejidad que conlleva sintonizar por sustitución química, tal y como es el caso de los óxidos de cobre de alta temperatura crítica o los “pnictides/chalcogenides” de hierro. Dopar un material puede introducir desorden y los efectos intrínsecos originados en la transición de fase cuántica pueden resultar enmascarados debido a fluctuaciones sensibles al desorden dentro del material.

El presente trabajo intenta responder interrogantes existentes del diagrama de fase de los fermiones pesados, estudiando por primera vez la estructura de la brecha de energía de los fermiones pesados no centrosimétricos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 a lo largo de todo el domo superconductor.

En los compuestos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 la superconductividad es inducida por presión y se desarrolla en presencia de un orden antiferromagnético. Ambos compuestos presentan las características generales de un diagrama de fase tipo Doniach, lo que los convierte en excelentes candidatos para estudiar la influencia que tienen tanto el orden magnético como los posibles puntos críticos cuánticos en la superconductividad. Además, el CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 poseen estructuras cristalinas sin centro de simetría de inversión, dando origen a un acoplamiento espín-órbita antisimétrico y a la ausencia de paridad en el sistema, esto último abre la posibilidad de que tengan estructuras de apareamiento de electrones mixtas (singlete y triplete).

En este trabajo se realizó un estudio sistemático de la dependencia en temperatura de la longitud de penetración magnética $\lambda(T)$ bajo presión hidrostática para los compuestos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 . La longitud de penetración magnética es ampliamente considerada una de las propiedades físicas más poderosas para estudiar la estructura de la brecha de energía, ya que está directamente relacionada con la densidad de electrones superconductores [19]. Para realizar este estudio, se tuvo que desarrollar completamente todo el aparato experimental involucrado en la medida de la longitud de penetración magnética en condiciones de altas presiones y bajas temperaturas.

El primer capítulo de este trabajo refiere las bases teóricas necesarias para comprender la física involucrada en la superconductividad no convencional en fermiones pesados no centrosimétricos.

En el segundo capítulo se va a tratar la longitud de penetración magnética tanto a nivel macroscópico como microscópico, donde se muestra la relación que existe entre la longitud de penetración magnética y la estructura de la brecha de energía.

En el tercer capítulo se muestran los detalles experimentales en la implementación del sistema de medidas de longitud de penetración magnética en condiciones de bajas temperaturas y altas presiones.

En el capítulo cuatro, se encuentran los análisis y resultados de medidas de alta resolución de $\lambda(T)$ en monocristales de CeIrSi₃ y CeRhSi₃, que fueron realizadas hasta una temperatura de 200 mK y una presión de 2.81 GPa. Los resultados muestran una evolución de una brecha energía con nodos a una brecha isotrópica para el CeIrSi₃, mientras que en el CeRhSi₃ la brecha de energía permanece con nodos en todo el rango de presiones estudiadas. A la luz de estos resultados, se plantea la relevancia que tiene el orden antiferromagnético, el acoplamiento espín órbita antisimétrico y el punto crítico cuántico en las propiedades superconductoras de estos y otros sistemas de fermiones pesados no centrosimétricos con diagramas de fase similares.

Capítulo 1

Superconductividad en Fermiones Pesados

1.1. Teoría Microscópica de la Superconductividad

La interacción electrón-fonón no puede explicar la superconductividad en muchas familias de sistemas electrónicos fuertemente correlacionados (cupratos [5], “pnictides/chalcogenides” de hierro [7] y fermiones pesados [8, 9]). Por esta razón, se han hecho esfuerzos en tratar de describir la superconductividad de manera general, dejando el espacio abierto a otras propuestas de mecanismos y simetrías que puedan explicar superconductividad en estos sistemas [19].

El Hamiltoniano mostrado en la ecuación 1.1 es una generalización de la formulación BCS, que no supone ningún mecanismo de apareamiento y ninguna simetría especial del material en particular (para mayor detalles ver el artículo *Phenomenologi-*

cal theory of unconventional superconductivity de M. Sigrist. de la Ref. [19]). Bajo estas consideraciones, la descripción del estado superconductor es el siguiente:

$$\mathcal{H} = \sum_{\vec{k},s} \xi(\vec{k}) a_{\vec{k}s}^\dagger a_{\vec{k}s} + \frac{1}{2} \sum_{\vec{k},\vec{k}',\alpha,\beta,\gamma,\nu} V_{s,\beta,\gamma,\nu}(\vec{k},\vec{k}') a_{-\vec{k}\alpha}^\dagger a_{\vec{k}\beta}^\dagger a_{\vec{k}'\gamma} a_{-\vec{k}'\nu}. \quad (1.1)$$

El primer término corresponde a energía cinética de las cuasipartículas, donde $\xi(\vec{k}) = \hbar k^2/2m^* - E_F$ es la energía de los electrones medida desde el nivel de Fermi, E_F es la energía del nivel de Fermi, k y m^* son el momento y la masa efectiva del electrón respectivamente. Los operadores $a_{\vec{k}s}^\dagger$ ($a_{\vec{k}s}$) son los operadores de creación (destrucción) y espín s . El segundo término del Hamiltoniano describe la interacción atractiva electrón-electrón, donde $V_{\alpha,\beta,\gamma,\nu}(\vec{k},\vec{k}')$ es el potencial responsable del apareamiento (desconocido). Utilizando la aproximación de campo medio (detalles en Ref. [19, 27]), este Hamiltoniano conduce al siguiente espectro de energías:

$$E_k = \sqrt{\xi_k^2 + |\Delta_k|^2}. \quad (1.2)$$

Aquí, Δ_k es la brecha de energía que separa el estado excitado del estado condensado. A $T = 0$, todos los electrones están apareados formando pares de Cooper. Los estados excitados ($T \neq 0$) están poblados por cuasipartículas, y se necesita una energía térmica $K_B T$ de al menos $2\Delta_k(T)$ para desaparecer térmicamente un par de Cooper en dos cuasipartículas.

La brecha de energía Δ_k está relacionada con el potencial de apareamiento de la siguiente manera:

$$\Delta_{\vec{k},\alpha\beta} = - \sum_{\vec{k}',\gamma\nu} V_{\beta,\alpha,\gamma,\nu}(\vec{k},\vec{k}') \langle a_{\vec{k}'\gamma} a_{-\vec{k}'\nu} \rangle, \quad (1.3)$$

donde $F_{\vec{k},\gamma\nu} = \langle a_{\vec{k}'\gamma} a_{-\vec{k}'\nu} \rangle$ es la función de onda del par de Cooper o parámetro de orden.

La expresión de la brecha 1.3 que establece la relación entre la variable medible (brecha de energía) y el potencial de apareamiento.

1.1.1. Simetría del Apareamiento en el Estado Superconductor

La simetría de la brecha de energía depende del estado de ligadura o estructura de apareamiento del par de Cooper [19, 27].

La función de onda del par de Cooper $F_{\vec{k},\gamma\nu}$, con espines $\gamma\nu$ descritos de manera general, se representa como el producto de dos funciones: la función de onda orbital $\phi(\vec{k})$ y la función de onda de espín $\chi_{\gamma\nu}$

$$F_{\vec{k},ss'} = \phi(\vec{k})\chi_{\gamma\nu}. \quad (1.4)$$

La función de onda total de un sistema de fermiones debe tener paridad antisimétrica, permitiendo sólo dos tipos de configuraciones:

- **Singlete:** función de onda orbital par con $\phi(\vec{k}) = \phi(-\vec{k})$ y función de onda de espín impar con $\chi_{\gamma\nu} = -\chi_{\nu\gamma}$, con espín total $S = 0$.

$$\phi(\vec{k}) = (-1)^l \phi(-\vec{k}) \quad \text{con } l = 0, 2, 4, \dots \quad \chi_{\gamma\nu} = \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle - |\downarrow\uparrow\rangle) \quad (1.5)$$

- **Triplete:** función de onda orbital impar con $\phi(\vec{k}) = -\phi(-\vec{k})$ y función de onda de

espín par con $\chi_{\gamma\nu} = \chi_{\nu\gamma}$, con espín total $S = 1$.

$$\phi(\vec{k}) = (-1)^l \phi(-\vec{k}) \quad \text{con } l = 1, 3, 5, \dots \quad \chi_{\gamma\nu} = \begin{cases} |\uparrow\uparrow\rangle \\ \frac{1}{\sqrt{2}}(|\uparrow\downarrow\rangle + |\downarrow\uparrow\rangle) \\ |\downarrow\downarrow\rangle \end{cases} \quad (1.6)$$

En consecuencia, la función de la brecha de energía $\Delta_{\vec{k},\gamma\nu}$ cumple las siguientes reglas de simetría [28]:

$$\Delta_{\vec{k},\gamma\nu} = \Delta_{-\vec{k},\nu\gamma} = \begin{cases} \Delta_{-\vec{k},\gamma\nu} = -\Delta_{\vec{k},\nu\gamma} & \text{par} \\ -\Delta_{-\vec{k},\gamma\nu} = \Delta_{\vec{k},\nu\gamma} & \text{impar} \end{cases} \quad (1.7)$$

Basado en esto, se puede parametrizar la función de la brecha de energía $\Delta_{\vec{k},ss'}$ en una matriz 2x2 [19]:

$$\hat{\Delta}_{\vec{k}} = \begin{pmatrix} \Delta_{\vec{k},\uparrow\uparrow} & \Delta_{\vec{k},\uparrow\downarrow} \\ \Delta_{\vec{k},\downarrow\uparrow} & \Delta_{\vec{k},\downarrow\downarrow} \end{pmatrix} \quad (1.8)$$

Para el estado singlete, solo es necesaria una función escalar $\psi(\vec{k})$ para satisfacer las condiciones de paridad, entonces la brecha queda expresada como:

$$\hat{\Delta}_{\vec{k}} = \begin{pmatrix} 0 & \psi(\vec{k}) \\ -\psi(\vec{k}) & 0 \end{pmatrix} = i\psi(\vec{k})\hat{\sigma}_y, \quad (1.9)$$

que satisface que $\psi(\vec{k}) = \psi(-\vec{k})$, donde $\hat{\sigma}_y$ es la matriz y de Pauli. Para el caso impar o

tripleto, hay que introducir un vector $\vec{d}(\vec{k})$ de la siguiente manera:

$$\hat{\Delta}_{\vec{k}} = \begin{pmatrix} -d_x(\vec{k}) + id_y(\vec{k}) & d_z(\vec{k}) \\ d_z(\vec{k}) & d_x(\vec{k}) + id_y(\vec{k}) \end{pmatrix} = i(\vec{d}(\vec{k}) \cdot \vec{\sigma})\hat{\sigma}_y, \quad (1.10)$$

donde se satisface que $\vec{d}(\vec{k}) = -\vec{d}(-\vec{k})$ y $\vec{\sigma} = (\hat{\sigma}_x, \hat{\sigma}_y, \hat{\sigma}_z)$ es el vector de las matrices de Pauli.

Para estudios de simetría resulta útil representar la brecha de energía (ecuaciones 1.9 y 1.10) en función de los armónicos esféricos [19]:

$$\hat{\Delta}_{\vec{k}} = \begin{cases} \sum_m c_m Y_{lm}(\hat{k}) i\hat{\sigma}_y & \text{singlete con } l = 0, 2, 4, \dots \\ \sum_{m, \hat{n}=\hat{x}, \hat{y}, \hat{z}} c_{m\hat{n}} Y_{lm}(\hat{k}) i(\vec{\sigma} \cdot \hat{n})\hat{\sigma}_y & \text{tripleto con } l = 1, 3, 5, \dots \end{cases}. \quad (1.11)$$

En la representación de armónicos esféricos, bajo la nomenclatura nuclear los valores de $l = 0, 1, 2, 3, 4, \dots$ son comúnmente llamados ondas s, p, d, f, g, \dots , por la similitud con los orbitales atómicos.

El valor de $|\Delta_{\vec{k}}|^2$ que se utiliza en el espectro de energía (ecuación 1.2) es dado por:

$$|\Delta_{\vec{k}}|^2 = \frac{1}{2} \text{tr}(\hat{\Delta}_{\vec{k}}^\dagger \hat{\Delta}_{\vec{k}}) \longrightarrow \begin{cases} \hat{\Delta}_{\vec{k}}^\dagger \hat{\Delta}_{\vec{k}} = |\psi(\vec{k})|^2 \hat{\sigma}_0 & \text{singlete} \\ \hat{\Delta}_{\vec{k}}^\dagger \hat{\Delta}_{\vec{k}} = |\vec{d}(\vec{k})|^2 \hat{\sigma}_0 + i\vec{d}(\vec{k}) \times \vec{d}(\vec{k})^* \cdot \vec{\sigma} & \text{tripleto} \end{cases} \quad (1.12)$$

donde $\hat{\sigma}_0$ es la matriz identidad.

Las representaciones de la brecha de energía utilizada en las ecuaciones 1.9, 1.10, 1.11,

son convenientes para estudiar el efecto de operaciones de simetría sobre las funciones orbitales de la brecha de energía. Un resumen de las operaciones de simetría y sus efectos en las funciones $\psi(\vec{k})$ y $\vec{d}(\vec{k})$ se muestra en la siguiente cuadro:

Operación de simetría	Singlete	Triplete
Intercambio de fermiones o paridad	$\psi(\vec{k}) = \psi(-\vec{k})$	$\vec{d}(\vec{k}) = -\vec{d}(-\vec{k})$
Grupo puntual	$g\psi(\vec{k}) = \psi(\hat{D}_{(G)}^{(-)}(g)\vec{k})$	$g\vec{d}(\vec{k}) = \vec{d}(\hat{D}_{(G)}^{(-)}(g)\vec{k})$
Rotación de espín	$g\psi(\vec{k}) = \psi(\vec{k})$	$g\vec{d}(\vec{k}) = \hat{D}_{(G)}^{(+)}\vec{d}(\vec{k})$
Inversión temporal	$\hat{K}\psi(\vec{k}) = \psi^*(-\vec{k})$	$-\vec{d}^*(-\vec{k})$
$U(1)$ -calibre	$\hat{\Phi}\psi(\vec{k}) = e^{i\phi}\psi(\vec{k})$	$\hat{\Phi}\vec{d}(\vec{k}) = e^{i\phi}\vec{d}(\vec{k})$

Cuadro 1.1: Operaciones de simetría sobre las funciones de onda del estado superconductor [19].

1.1.2. Superconductividad Convencional y no Convencional

La brecha de energía depende de las funciones orbitales tal y como se muestra en las ecuaciones 1.9, 1.10 y 1.11, donde la forma de la brecha es determinada por el tipo de apareamiento y el tipo de onda que representa la brecha. Por lo tanto, el estudio de la función que representa la brecha de energía conlleva a la clasificación de su comportamiento bajo transformaciones de operaciones simetría. El grupo \mathcal{G} representa el grupo de simetría del estado normal y bajo consideraciones de un acoplamiento espín órbita fuerte, este grupo se representa como:

$$\mathcal{G} = G \times K \times U(1) \quad (1.13)$$

donde G es el grupo de simetría espacial, $U(1)$ es la simetría de calibre, K el grupo de simetría de inversión temporal. De acuerdo con la teoría BCS, todo superconductor

rompe la simetría de calibre $U(1)$. Si el superconductor sólo rompe esa simetría, se dice que es un superconductor *convencional*. Si se rompe alguna otra simetría además de la de calibre, se clasifica como un superconductor *no convencional*.

En general, los superconductores con interacción electrón-fonón sólo rompen la simetría de calibre $U(1)$ y su estructura de apareamiento de electrones, es la configuración más sencilla de un estado singlete llamado onda- s ($l = 0$). La onda- s tiene una forma isotrópica alrededor de la superficie de Fermi tal y como es mostrado en la Figura 1.1. En la superconductividad no convencional, se rompe al menos otra simetría adicional a la de calibre, y tiene como consecuencia que el superconductor pueda tener estructuras de apareamiento más complejas que una onda- s . La Figura 1.2 muestra dos ejemplos de simetrías de brechas cuya estructura de apareamiento no es onda- s . La primera corresponde a un apareamiento singlete con $l = 2$ llamado onda- d (Figura 1.2(a)), que presenta líneas de nodos en la superficie de Fermi. La segunda es un apareamiento triplete con $l = 1$ llamado onda- p (Figura 1.2(b)), que presenta puntos de nodos en los polos de la superficie de Fermi.

Estas características de la simetría de la brecha de energía están relacionadas directamente con la simetría del potencial de apareamiento (ecuación 1.3) por lo tanto, con el mecanismo responsable de la superconductividad. Por ejemplo, al estudiar cristales superconductores, la brecha de energía y el parámetro de orden se expresan en términos de las funciones base de las representaciones irreducibles del grupo puntual G . Para el caso de superconductor convencional (solo rompe la simetría $U(1)$), la función de la brecha de energía se transforma en la representación irreducible más simétrica. Esto significa que en la ecuación 1.9, $\psi(\vec{k}) = \psi$ es una constante y es un estado base de la representación irreducible A_{1g} del grupo puntual G . Aquí, la brecha de energía no tiene

dependencia con \vec{k} y la simetría es de tipo onda- s (Figura 1.1(b)). Esta es la base en términos de simetría de la teoría BCS y, por tanto, la simetría en los superconductores convencionales. Otros mecanismos de apareamiento pueden imponer una ruptura de simetría adicional (la cual depende el caso específico en estudio), y entrarían en la clasificación de superconductividad no convencional.

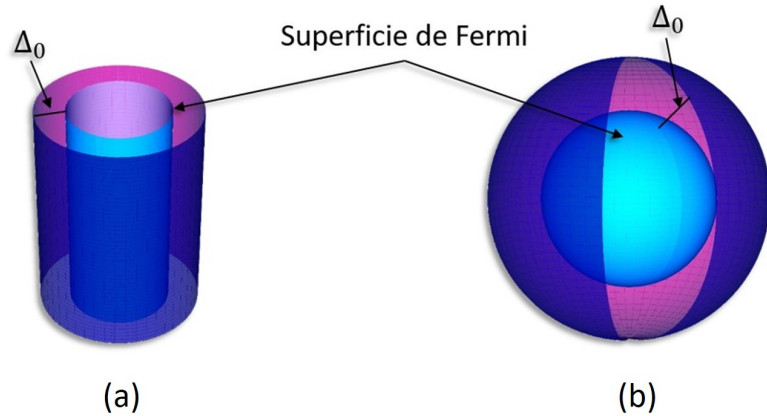


Figura 1.1: Brechas de energía isotrópicas. (a) Brecha de energía isotrópica sobre una superficie de Fermi cilíndrica. (b) Brecha isotrópica sobre una superficie de Fermi esférica

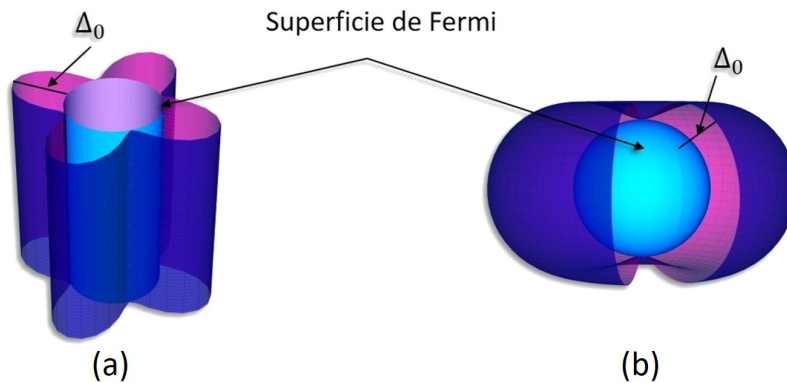


Figura 1.2: Brechas de energía anisotrópicas (a) Brecha de energía tipo onda- d donde hay líneas de nodos en la superficie de Fermi. (b) Brecha de energía tipo onda- p , se observan puntos de nodos en los polos con la superficie de Fermi.

1.2. Materiales no Centrosimétricos

En la sección 1.1.1 se mostró que las estructuras de la brecha de energía pueden clasificarse según su paridad, en donde se distinguen estados puros singlete y triplete. Esto es posible en materiales que cumplen con la simetría de inversión espacial.

Los materiales sin centro de simetría de inversión o no centrosimétricos (NCS) son aquellos cuya estructura cristalina no es invariante al aplicar una operación de inversión espacial \hat{I} . La Figura 1.3 muestra un ejemplo de una estructura cristalina con simetría de inversión espacial (Figura 1.3(a)) y sin simetría de inversión espacial (Figura 1.3(b)). En la Figura (a) la aplicación de \hat{I} sobre la estructura cristalina resulta invariante, mientras en la Figura (b) no es invariante.

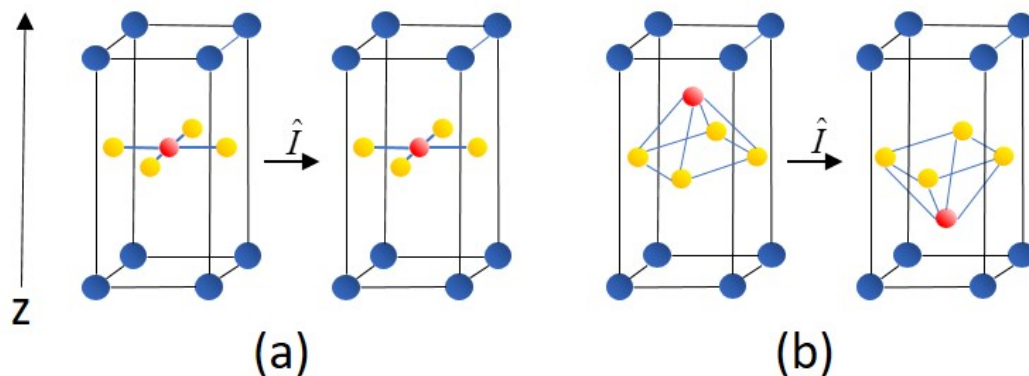


Figura 1.3: Estructura con centro de simetría de inversión (a) y sin centro de inversión (b)

La ausencia de un centro de simetría en la estructura cristalina, trae como consecuencia la pérdida de paridad del sistema. La ubicación antisimétrica de los átomos en la red cristalina de un material NCS, genera un gradiente de potencial o un campo

eléctrico local. Este campo eléctrico interno da lugar a un acoplamiento espín-órbita antisimétrico.

Supongamos una estructura cristalina como la que se muestra en la Figura 1.3(b). Aquí se pierde la simetría de reflexión en z . Si nos ubicamos en el marco de referencia de un electrón que se mueve a través del campo eléctrico interno generado por la no centrosimetría, aparecerá un campo magnético dado por

$$\vec{B} = -\frac{\vec{v}_{\vec{k}}}{c^2} \times \vec{E} = -\frac{\hbar E_z}{m_e c^2} \vec{k} \times \hat{z} = \frac{\hbar E}{m_e c^2} \hat{z} \times \vec{k}. \quad (1.14)$$

El momento magnético del electrón viene dado por:

$$\vec{M}_s = \frac{e}{m_e} \vec{s}, \quad (1.15)$$

de la interacción del campo magnético con el momento magnético del electrón se obtiene la expresión del acoplamiento espín órbita antisimétrico [29]

$$\alpha \vec{g}_{\vec{k}} = \frac{\hbar e E_z}{m_e^2 c^2} (\hat{z} \times \vec{k}) \cdot \vec{s} = \alpha (\hat{z} \times \vec{k}) \cdot \vec{s} \quad (1.16)$$

aquí $\alpha \vec{g}_{\vec{k}}$ corresponde al acoplamiento espín órbita antisimétrico tipo Rashba que cumple con $\vec{g}_{\vec{k}} = -\vec{g}_{-\vec{k}}$. La forma de $\vec{g}_{\vec{k}}$ depende de la estructura cristalina y es un vector adimensional paralelo al parámetro de orden del acoplamiento de espín triplete $\vec{d}(\vec{k})$.

Como resultado de la ausencia de simetría de inversión espacial se levanta la degeneración de espín induciendo a dos bandas de energía con estructuras de espín diferentes,

tal y como se ve en la Figura 1.4, el espectro de energía viene dado entonces por

$$E_{\vec{k}\pm} = E_{\vec{k}} \pm |\alpha\vec{g}_{\vec{k}}| \quad (1.17)$$

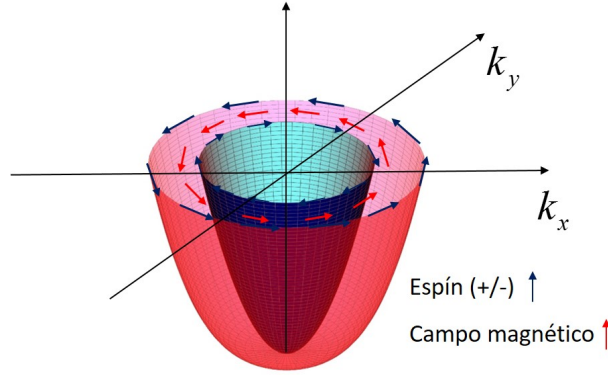


Figura 1.4: Representación del desdoblamiento de la banda de energía debido al acople espín órbita antisimétrico. Los espines electrónicos se orientan de manera opuesta respecto al campo magnético en cada banda.

Dado que en los superconductores NCS la paridad no es una simetría del sistema, no podemos clasificar al superconductor por su paridad (singlete o triplete). Un modelo para definir el parámetro de orden en los superconductores utiliza una mezcla de estados singlete y triplete

$$\hat{\Delta}_{\vec{k}} = (\Delta_1\psi(\vec{k}) + \Delta_2\vec{d}(\vec{k}) \cdot \vec{\sigma})\hat{\sigma}_y. \quad (1.18)$$

Debido a que se tienen ahora dos superficies de Fermi por el desdoblamiento, tam-

bién se tienen dos brechas de energía superconductoras:

$$|\Delta_{\vec{k}_{\pm}}| = |\Delta_1|\psi(\vec{k})| \pm \Delta_2|\vec{d}(\vec{k})|. \quad (1.19)$$

En ambos casos Δ_+ o Δ_- la forma resultante de la brecha de energía va a depender de cual componente de espín sea dominante.

Esta mezcla de estados singlete y tripletes pueden ocasionar los llamados nodos accidentales. Un ejemplo se encuentra en una de las interpretaciones del parámetro de orden en el CePtSi_3 , que es un fermión pesado NCS y cuya brecha de energía presenta líneas de nodos en la superficie de Fermí producto de mezcla de estados singlete y triplete [18].

1.3. Superconductividad en Fermiones Pesados

La teoría BCS describe que el origen del potencial atractivo entre electrones es consecuencia de la interacción de los electrones con la red cristalina. La Figura 1.5 es una representación de esta interacción, donde un primer electrón atrae los iones de la red cristalina causando una pequeña deformación que viene acompañada de vibraciones en la red cristalina (fonones). Ésta deformación trae como consecuencia una región con mayor densidad de cargas positivas (polarización de la red cristalina), que es la causante de la atracción efectiva entre electrones, traducándose en que los electrones interactúan de forma atractiva mediante vibraciones de la red cristalina (fonones). No obstante, en este proceso no deja de existir la repulsión Coulombiana entre los electro-

nes, pero al igual que interacción electrón-fonón, es de corto alcance y básicamente es efectiva cuando las partículas están suficientemente cerca. Dado que los iones de la red cristalina se mueven más lentos que los electrones, el tiempo que dura la polarización debido a la deformación de la red cristalina es mayor que el tiempo en que los electrones interactúan entre ellos de manera repulsiva (que es casi instantáneo). De esta manera la repulsión Coulombiana se ve apantallada. Esto se conoce como el efecto de retardo o “retardation effect”.

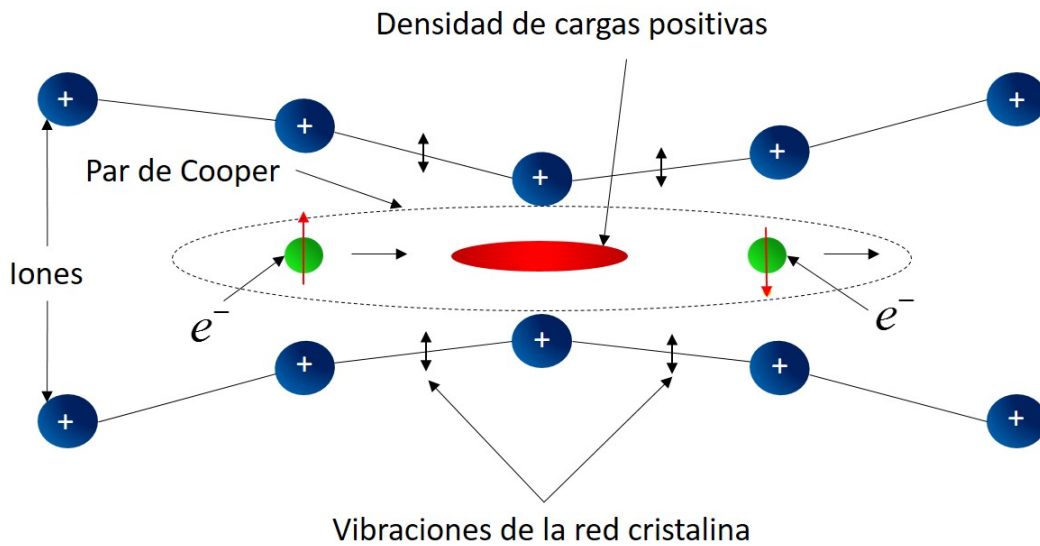


Figura 1.5: Atracción efectiva entre electrones mediada por fonones (vibración de la red cristalina)

En metales sencillos (Al,Cd,Zn, entre otros) es bastante fácil para la interacción electrón-fonón superar la repulsión Coulombiana a través del efecto de retardo, ya que los electrones de conducción son mucho más rápidos que los iones y se mueven básicamente como partículas libres. Sin embargo, en sistemas electrónicos fuertemente correlacionados, los electrones por lo general están estrechamente relacionados con los

orbitales atómicos manteniendo un carácter localizado, tal y como sucede en los óxidos de metales de transición o en las aleaciones intermetálicas de tierras raras comúnmente conocido como sistemas de fermiones pesados. En estos electrones de carácter parcialmente localizado, su movimiento es considerablemente lento, de tal manera que las interacciones Coulombianas son comparables con su energía cinética e incluso pueden ser mayores. En los materiales fermiones pesados la escala de energía característica asociada a los portadores de carga a nivel de la energía de Fermi es incluso más pequeña que la energía de Debye. En tales condiciones, el efecto de retardo no proporciona suficiente ayuda y la interacción repulsiva de Coulomb domina sobre el acoplamiento atractivo de electrón-fonón.

En la superconductividad en los sistemas electrónicos fuertemente correlacionados, como los fermiones pesados, la interacción electrón-fonón no puede explicar el origen del apareamiento de electrones. Entre las propuestas alternativas a la interacción electrón fonón se incluyen fluctuaciones magnéticas, oscilaciones del plasma de electrones (plasmones). Las teorías de fluctuaciones magnéticas gozan de bastante aceptación, ya que en la mayoría de los superconductores no convencionales la superconductividad aparece cuando se ve debilitada una fase magnética y en algunos casos la superconductividad y magnetismo incluso coexisten.

Los fermiones pesados son unos de los sistemas en donde la superconductividad se desarrolla en las cercanías de una fase magnética y es ampliamente creído que las fluctuaciones de espín dan origen al apareamiento de electrones [28]. El término fermión pesado fue acuñado por Steglich [4] a finales de los setenta para describir las excitaciones electrónicas de una nueva clase de compuestos intermetálicos con una densidad de estados de hasta mil veces mayor que el cobre. Desde el descubrimiento del primer fer-

mi3n pesado CeAl_3 [30], se han descubierto una diversidad de compuestos de fermiones pesados incluyendo antiferromagnetos, aislantes y superconductores. Las propiedades de los compuestos de fermiones pesados tienen su origen en que orbitales f parcialmente llenos, provenientes de los iones de tierras raras o de act3nidos, se comportan en buena parte como momentos magn3ticos localizados.

Gran parte de la f3sica involucrada en los fermiones pesados resulta de la inmersi3n de los momentos magn3ticos locales en un mar cu3ntico (interactuante) de electrones de conducci3n. En la mayor3a de los metales de tierras raras, los momentos locales tienden a ordenarse antiferromagn3ticamente, pero en los metales de fermiones pesados, las interacciones entre los momentos magn3ticos locales y los electrones de conducci3n son suficientemente fuertes para desaparecer el orden magn3tico. El mecanismo por el cual esto ocurre es conocido como efecto Kondo.

El efecto Kondo describe el proceso mediante el cual un ion magn3tico libre (impureza magn3tica), con una susceptibilidad magn3tica de Curie a altas temperaturas, se ve apantallado por los espines de los electrones de conducci3n a medida que baja la temperatura y se tengan bajos campos magn3ticos, en los que finalmente los momentos magn3ticos locales forman un estado singlete con los electrones de conducci3n, vi3ndose el momento magn3tico local totalmente apantallado. En el efecto Kondo el apantallamiento es un proceso continuo y tiene lugar una vez que el campo magn3tico y la temperatura son menores que la escala de energ3a caracter3stica conocida como temperatura de Kondo T_K , este proceso esta representado en la Figura 1.6.

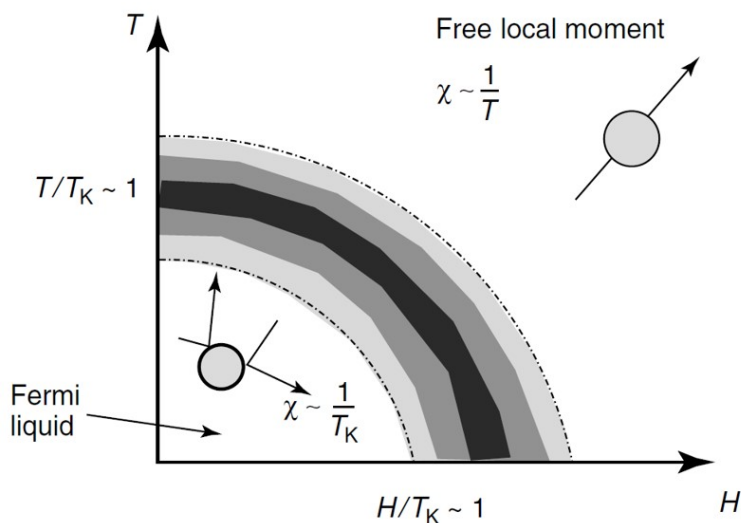


Figura 1.6: Representación del apantallamiento de los momentos magnéticos en el efecto Kondo. Los momentos magnéticos se ven apantallados por los electrones de conducción por debajo de la temperatura de Kondo T_K (imagen tomada de Ref. [31])

En más detalle, el efecto Kondo describe un aumento en las dispersiones elásticas en un metal que contiene impurezas magnéticas a medida que baja la temperatura. Esto tiene su origen en una dispersión de intercambio de espín entre los electrones de conducción y los momentos magnéticos localizados. Esta dispersión involucra un cambio en la dirección del espín o “spin-flip”, en donde el espín total dispersado de los electrones de conducción y de los momentos magnéticos localizados es conservado. La dispersión de intercambio de espín es representado en la Figura 1.7(a), donde las esferas representan los electrones con su espín y las flechas grandes los momentos localizados. A temperaturas por encima de T_K , el parámetro de acople J (conocido como constante de intercambio) es muy pequeño (pero finito y $J > 0$) y los espines locales se encuentran libres, mientras que al bajar la temperatura de T_K , J se ve fuertemente incrementado. Como consecuencia se tiene que los espines localizados están totalmente apantallados

por los electrones de conducción y en el límite de $T = 0$, se forma el singlete Kondo (Figura 1.7(b)).

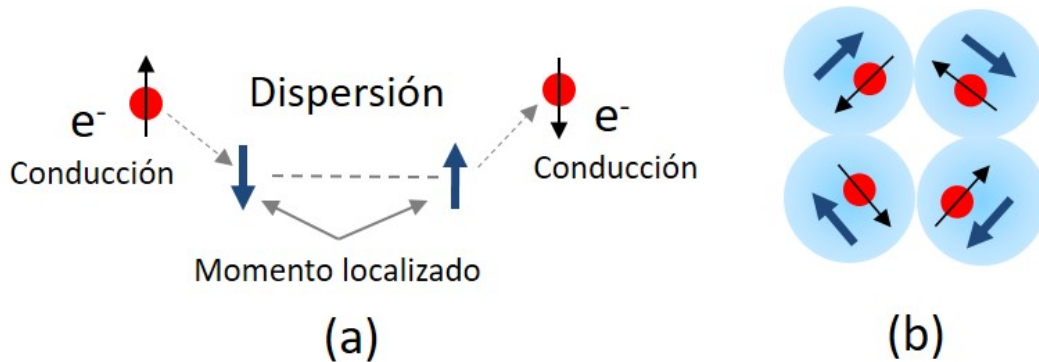


Figura 1.7: Esquema general de la dispersión de Kondo y el singlete Kondo. **a)** Dispersión de entre electrones de conducción y momentos magnéticos locales **(b)** Representación del singlete Kondo.

Por otro lado, para los fermiones pesados en un entorno metálico, la interacción magnética dominante entre las capas electrónicas f ocurre por un acoplamiento de intercambio indirecto entre los espines localizados, el cual es mediado a través de una polarización de los electrones de conducción. Esta interacción es conocida como Ruderman-Kittel-Kasuya-Yosida (RKKY). La interacción RKKY puede dar lugar a un orden magnético de largo alcance, que en la mayoría de los metales de fermiones pesados como el CeAl_2 es de naturaleza antiferromagnética por debajo de una temperatura de Néel T_N . En ciertas condiciones, existe una competencia entre el efecto desmagnetizador (apantallamiento del magnetismo de los momentos locales) Kondo y la interacción magnética RKKY (interacción entre los momentos magnéticos). Estas dos interacciones tienen una dependencia diferente del parámetro de acoplamiento efectivo J que actúa entre los espines de los electrones de conducción y los espines de las capas f localizadas, como se señaló por primera vez por Doniach [32]. En la Figura 1.8 se muestra la depen-

dencia con J que tienen las escalas de energía de la interacción RKKY y Kondo. Mientras que la interacción RKKY propicia la formación de un orden antiferromagnético cuando su parámetro J hace que sea la interacción dominante, la interacción Kondo trata de extinguir o apantallar el orden magnético. En el punto J_c (Figura 1.8), ninguna interacción domina y el orden magnético es suprimido. Este punto es llamado punto crítico cuántico, y representa una transición de fase a $T = 0$, en donde la presencia de fluctuaciones cuánticas de espín, causadas por la competencia entre estas dos interacciones, puede dominar la física de fases presentes.

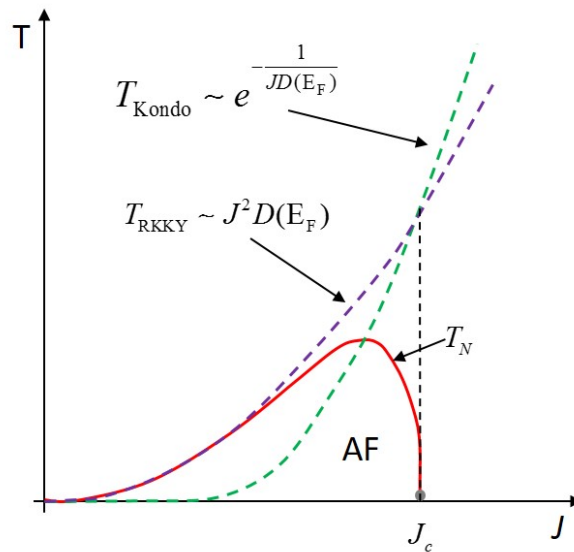


Figura 1.8: Diagrama de fase de Doniac

La competencia entre el efecto Kondo y la interacción RKKY determina muchas propiedades del estado base en los fermiones pesado. Entre ellas se incluyen diferentes formas de ordenes magnéticos, líquidos de Fermi, no líquidos de Fermi y superconductividad.

La Figura 1.9 muestra el diagrama de fase de un superconductor de fermiones pesados, en el cual la superconductividad emerge dentro de una fase antiferromagnética que está envuelta en la dinámica que existe entre la interacción de Kondo y la RKKY. En este diagrama de fase, el parámetro de sintonización es la presión a la que está sometido el material. Este parámetro tiene influencia en la densidad de estados electrónicos que inciden indirectamente en el comportamiento de J . A medida que la presión aumenta, se debilita la fase antiferromagnética por la dinámica entre RKKY y Kondo y emerge la superconductividad, cuya temperatura crítica en general es máxima cuando se suprime la fase antiferromagnética en el punto crítico cuántico. A presiones mayores del punto crítico cuántico, la superconductividad se va debilitando dando paso a un estado de singlete Kondo, cuyas propiedades son las de un líquido de Fermi.

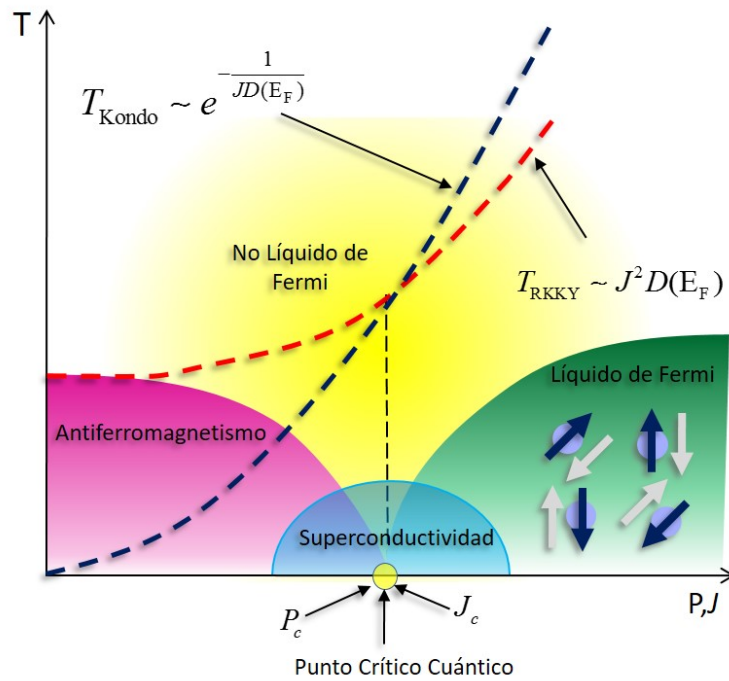


Figura 1.9: Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados

El hecho que la superconductividad se desarrolla bajo la presencia de un orden magnético en la vecindad de un punto crítico cuántico, donde las fluctuaciones de espín están presentes por la dinámica entre dos interacciones que determinan el estado magnético del material, ha llevado a pensar que la superconductividad en estos sistemas puede estar mediada por fluctuaciones de espín. Dependiendo de la manera que se manifiesten las interacciones RKKY y Kondo, se pueden clasificar el punto crítico cuántico en dos escenarios según Steglich [14–17]:

- Ruptura del estado singlete Kondo o criticalidad cuántica local.
- Punto crítico cuántico de onda de densidad de espín.

Criticalidad cuántica local

Si definimos P_c como la presión donde está ubicado el punto crítico cuántico, podemos establecer características generales para ambos escenarios. El diagrama de fase de la criticalidad cuántica local está representado en la Figura 1.10 y sus características son las siguientes:

Para $P < P_c$ El material presenta un orden antiferromagnético estático.

- La interacción RKKY domina sobre la interacción Kondo.
- El comportamiento de los electrones f es de electrones localizados.
- El orden magnético es conmensurado.

Para $P > P_c$ El material está en el estado de un singlete Kondo y se comporta como un líquido de Fermi.

- La interacción Kondo domina sobre el RKKY.
- Existe un aumento drástico de volumen en la superficie de Fermi a presiones mayores a P_c .

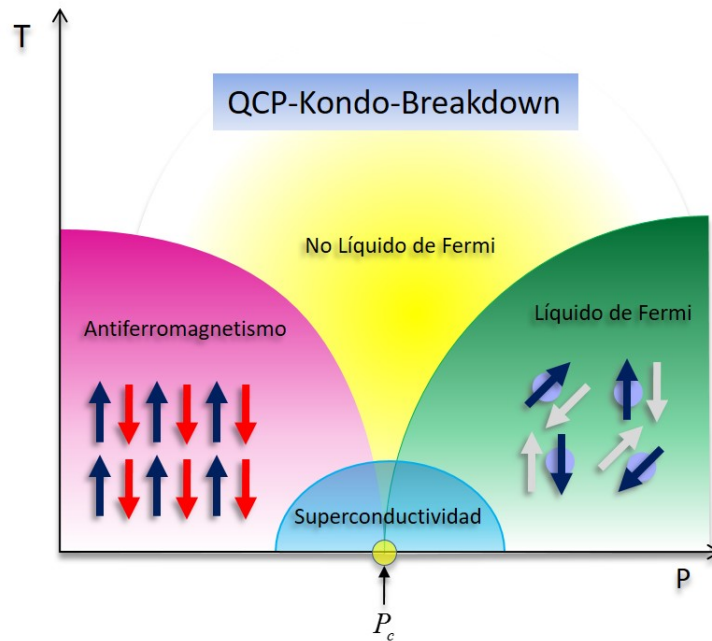


Figura 1.10: Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados con ruptura del singlete Kondo

Punto crítico cuántico de ondas de densidad de espín

Las características de este escenario representado en la Figura 1.11 son:

Para $P < P_c$ El material presenta un orden antiferromagnético de tipo onda de densidad de espín

- La interacción RKKY domina sobre la interacción Kondo pero no completa-

mente. La interacción Kondo tiene un contribución significativa. Este estado es llamado Kondo dinámico.

- El comportamiento de los electrones f es itinerante.
- El orden magnético es incommensurado.

Para $P > P_c$ El material esta en el estado de un singlete Kondo y se comporta como un liquido de Fermi.

- La interacción Kondo domina sobre el RKKY.
- No hay cambios en la superficie de Fermi en todo el diagrama de fase.

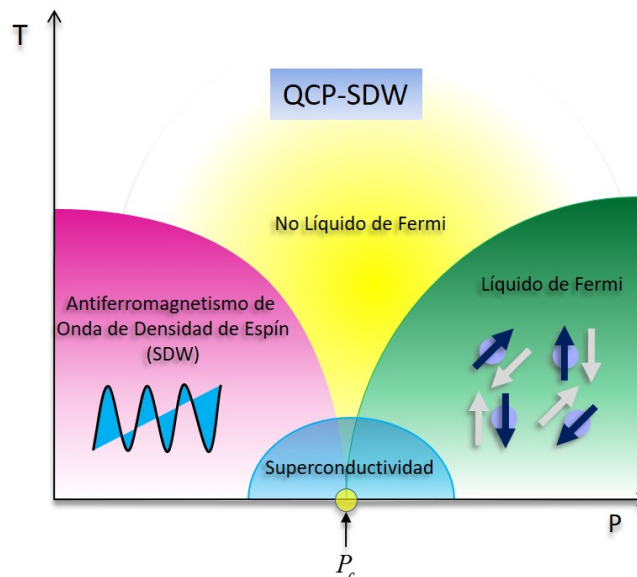


Figura 1.11: Diagrama de fase de Doniac para superconductores de fermiones pesados en con punto crítico cuántico de ondas de densidad de espín

En ambos escenarios están presentes las fluctuaciones cuánticas de espín, pero en el punto cuántico de ondas de densidad de espín tienen mayor presencia y se cree que la superconductividad esta mediada por estas fluctuaciones.

1.3.1. Superconductividad en las Cercanías de un Punto Crítico Cuántico

Gran parte de los fermiones pesados que presentan superconductividad poseen un diagrama de fase que cumple con las características mostradas en la sección anterior [8]. Hasta ahora, nadie ha podido verificar experimentalmente como es la simetría de la brecha de energía en todo el domo superconductor, así como la influencia del punto crítico cuántico y la fase antiferromagnética en el tipo de superconductividad (convencional o no convencional). Este trabajo de investigación tiene por objetivo estudiar la simetría de la brecha de energía a lo largo de todo el domo superconductor en los fermiones pesados no centrosimétricos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 . Ambos materiales presentan superconductividad en presión bajo la presencia de un orden antiferromagnético y poseen características de los diagramas de fase explicados en la sección anterior (detalles en la sección 4.1). Estos compuestos presentan propiedades físicas muy similares (estructura cristalina, magnética y electrónica), pero en el CeIrSi_3 se sospecha la existencia de un punto crítico cuántico mientras que en el CeRhSi_3 no. El estudio de la simetría de la brecha de energía en estos compuestos es de carácter fundamental para entender la influencia del orden antiferromagnético, del punto crítico cuántico y del acoplamiento espín órbita antisimétrico en las propiedades no convencionales de la superconductividad.

Capítulo 2

Longitud de Penetración Magnética y Parámetro de Orden

2.1. Efectos Macroscópicos de la Superconductividad

Una de las propiedades macroscópicas más fundamentales del fenómeno de superconductividad, es el efecto Meissner-Ochsenfeld. Descubierta en 1933 por W. Meissner y R. Ochsenfeld en Berlín, quienes encontraron que el flujo magnético es expulsado del interior de una muestra superconductora, si ésta es enfriada por debajo de su temperatura crítica cuando es sometida a un campo magnético externo DC débil (Figura [2.1](#))

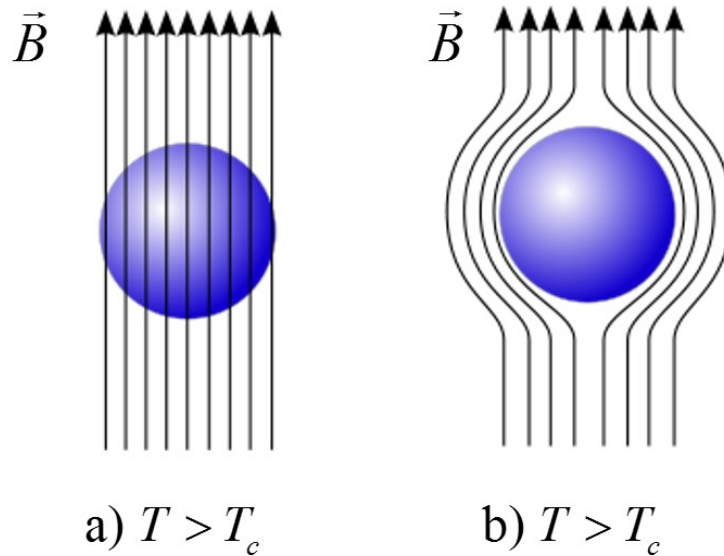


Figura 2.1: Comportamiento de un superconductor bajo la acción de campo magnético estático débil: a) Estado normal ($T > T_c$), no hay expulsión del flujo magnético. b) Para $T < T_c$, el material se encuentra en el estado superconductor y hay expulsión del flujo magnético de su interior.

2.1.1. Longitud de Penetración Magnética

La expulsión del campo magnético en un superconductor es debida a la existencia de una corriente eléctrica inducida cerca de la superficie. Esta corriente genera un campo magnético opuesto al campo magnético externo aplicado. Sin embargo, cerca de la superficie a una distancia que puede estar en el orden de los Angstroms, el campo magnético no es cancelado en su totalidad a $T = 0$, esta distancia es llamada *longitud de penetración magnética*.

En el año 1935, los hermanos London lograron describir los efectos macroscópicos de la superconductividad (resistividad cero y el efecto Meissner) a través de dos ecuacio-

nes que describen macroscópicamente la electrodinámica en el estado superconductor a $T = 0$:

$$\frac{\partial}{\partial t}(\vec{J}_s) = \frac{n_s e^2}{m_e} \vec{E}, \quad (2.1)$$

$$\nabla \times \vec{J}_s = -\frac{n_s e^2}{m_e} \vec{B}. \quad (2.2)$$

La ecuación 2.1 describe la conductividad perfecta, la ecuación 2.2 se refiere a la densidad de flujo magnético local (efecto Meissner), donde m_e y e son la masa y carga del electrón respectivamente, n_s es la densidad de electrones superconductores y J_s es la corriente responsable de la expulsión del campo magnético.

Manipulando las ecuaciones de London y utilizando las ecuaciones de Maxwell se obtiene que:

$$\nabla^2 \vec{B} = \frac{\vec{B}}{\lambda^2} \quad \text{donde} \quad \lambda = \sqrt{\frac{m_e}{\mu_0 n_s e^2}}. \quad (2.3)$$

La ecuación 2.3 representa el efecto Meissner a $T = 0$. Para ver como el campo magnético penetra un material superconductor, consideremos un plano superconductor semi infinito como se muestra en la Figura 2.1, en donde un campo magnético débil y constante es aplicado en el eje x del plano superconductor. Teniendo en cuenta la simetría del problema y la condiciones de frontera ($B_x(0) = 0, B_x(\infty) = 0$) para la ecuación 2.3, el comportamiento del campo magnético en el plano superconductor es

$$B_x(z) = B_0 e^{-z/\lambda}. \quad (2.4)$$

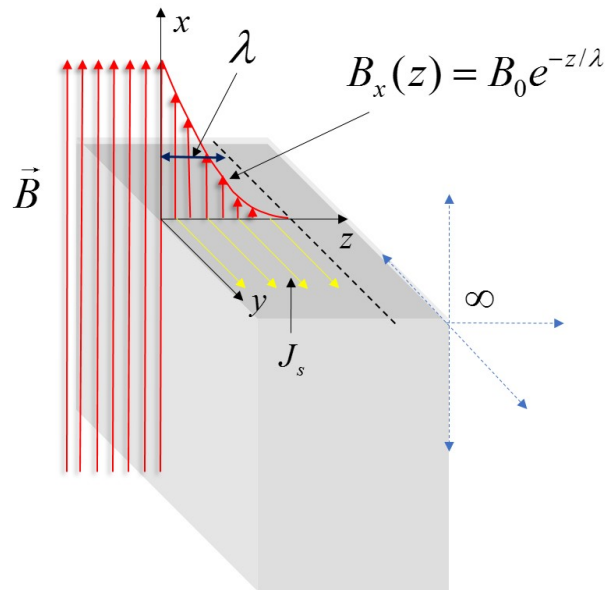


Figura 2.2: Representación esquemática de la longitud de penetración magnética

La expresión 2.4 es solución de la ecuación 2.3, donde λ es la longitud característica del sistema que nos dice qué tan profundo el campo magnético penetra en el superconductor.

En general, la longitud de penetración magnética varía con la temperatura y su valor a $T = 0$ está en el orden de 10^{-6} cm a 10^{-4} cm. Al aumentar la temperatura cerca de T_c , el valor de λ aumenta hasta ser el tamaño de la muestra. Esta dependencia de λ con la temperatura se utiliza para estudiar la simetría de la brecha de energía.

2.2. Longitud de Penetración Magnética y la Simetría de la Brecha de Energía

En la sección anterior se explicó el significado físico de la longitud de penetración magnética desde el punto de vista macroscópico. Sin embargo, desde el punto de vista microscópico, la densidad de electrones superconductores esta fuertemente vinculada con el parámetro de orden del superconductor a través de su dependencia con la estructura de la brecha de energía. En el límite local de la electrodinámica del superconductor, la relación que existe entre el tensor densidad de superfluido $\rho_{ij}^s(T)$ y la brecha de energía viene dada por la siguiente expresión [33]:

$$\rho_{ij}^s(T) = \frac{n_{ij}^s}{n} = \frac{\lambda_{ij}^2(0)}{\lambda_{ij}^2(T)} = 3 \left\langle \hat{k}_i \hat{k}_j \left[1 - 2 \int_{\Delta_0}^{\infty} \frac{E_{\vec{k}}}{\sqrt{E_{\vec{k}}^2 - \Delta_{\vec{k}}^2(T)}} \frac{\partial f(E_{\vec{k}})}{\partial E_{\vec{k}}} dE_{\vec{k}} \right] \right\rangle_{S.F} \quad (2.5)$$

donde n_{ij}^s es el tensor de electrones superconductores, n el número total de electrones, $\langle \dots \rangle$ es el promedio sobre la superficie de Fermi, el vector $\hat{k} = \vec{k}/k_F$ con k_F como el momento de Fermi, $E_{\vec{k}}$ es el espectro de energías de las cuasipartículas (ecuación 1.2), $f(E_k)$ es la función de Fermi y $\Delta_k(T) = \Delta_{\vec{k}}\Delta(T)$ es la función de la brecha de energía. La expresión $|\Delta_{\vec{k}}|^2$ viene dada por la ecuación 1.12 y $\Delta(T)$ viene dada por la fórmula de interpolación de Gross [34]:

$$\Delta(T) = \Delta_0 \tanh \left(\frac{\pi K_B T_c}{\Delta_0} \sqrt{a \frac{\Delta C}{C} (T_c/T - 1)} \right) \quad (2.6)$$

donde Δ_0 es la brecha a $T = 0$ y K_B la constante de Boltzmann. Para el caso específico de una brecha isotrópica tipo onda-s ($l = 0$), tenemos que $\Delta_k = \psi(\vec{k}) = \Delta_0$, la densidad

de superfluido se reduce a:

$$\rho_s(T) = \frac{n_s}{n} = \frac{\lambda_L^2(0)}{\lambda^2(T)} = 1 + 2 \int_{\Delta}^{\infty} \frac{E}{\sqrt{E^2 - \Delta^2(T)}} \frac{\partial f(E)}{\partial E} dE \quad (2.7)$$

Para $T \ll T_c$ la densidad de superfluido y la longitud de penetración magnética quedan:

$$\rho_s \approx 1 - \sqrt{\frac{2\pi\Delta_0}{K_B T}} e^{-\frac{\Delta(0)}{K_B T}} \quad \lambda(T) - \lambda(0) = \Delta\lambda(T) \approx \left(1 + \sqrt{\frac{\pi\Delta_0}{2K_B T}} e^{-\frac{\Delta(0)}{K_B T}} \right). \quad (2.8)$$

El comportamiento exponencial en la penetración magnética, caracteriza a las brechas isotrópicas en el límite de bajas temperaturas.

Las representaciones de brechas anisotrópicas dependen de la simetría del cristal a estudiar [19]. Como ejemplo de un apareamiento triplete con $l = 1$ (onda- p) se tomará la fase A del He^3 [27] y como ejemplo de un apareamiento singlete $l = 2$ se tomará una onda- d utilizada para describir los cupratos [27].

- **Onda- p :** $l = 1$ y $\vec{d}(\vec{k}) = \frac{\Delta_0}{k_f} (k_x \pm ik_y) \hat{z}$, donde $|\Delta_k|^2 = |\Delta_0|^2 \frac{k_x^2 + k_y^2}{k_f^2}$. Al utilizar coordenadas esféricas la brecha se representa como $\Delta_{\vec{k}} = \Delta_0 \sin(\theta)$, y posee puntos de nodos en los polos, como fue mostrado en la Figura 1.2(b).
- **Onda- d :** $l = 2$ y $\Delta_{\vec{k}} = \psi(\vec{k}) = \frac{\Delta_0}{k_f} (k_x^2 - k_y^2)$. En coordenadas esféricas la brecha se expresa como $\Delta_k = \Delta_0 \cos(2\phi)$ y tiene líneas nodos (Figura 1.2(a)).

Dependiendo de la dirección en que se mida $\lambda_{ij}(T)$ en el cristal, se obtendrá una respuesta particular el límite para bajas temperaturas ($T \ll T_c$). Particularmente para la onda- d mostrada con un campo magnético externo aplicado $\parallel z$, el comportamiento la

densidad de superfluido y la longitud de penetración magnética en el límite de bajas temperaturas es

$$\rho_s \approx 1 - \ln(2) \frac{\Delta_0}{K_B T}, \quad \lambda(T) \approx (1 + \ln(2) \frac{K_B T}{\Delta_0}). \quad (2.9)$$

El comportamiento lineal en la penetración magnética es característico en materiales con líneas de nodos en la brecha de energía.

Los ejemplos mostrados reflejan como los estudios de longitud de penetración magnética en el límite de bajas temperaturas proporcionan información acerca de la estructura de la simetría de la brecha de energía. De manera general el comportamiento de $\Delta\lambda(T)$ a $T \ll T_c$ indica

$$\Delta\lambda(T) \propto \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{T}} e^{-\Delta/K_B T} & \text{Sin nodos} \\ T & \text{Líneas nodales (3D) o Puntos nodales (2D)} \\ T^2 & \text{Puntos nodales (3D)} \end{cases} \quad (2.10)$$

Capítulo 3

Parte Experimental

3.1. Medidas de Longitud de Penetración Magnética: Oscilador de Diodo Túnel

3.1.1. Principio Físico

El principio físico de la medida de longitud de penetración magnética mediante la técnica del oscilador de diodo túnel consiste en medir el cambio de la frecuencia de resonancia de un circuito oscilador LC , en el cual la bobina de inductancia L posee una muestra en su interior. El cambio de frecuencia tiene su origen en la variación del flujo magnético producto de la respuesta en temperatura de la muestra que está sometida al campo magnético de la bobina. El cambio de flujo magnético cambia el comportamiento de L en el circuito LC , ocasionando un cambio en la frecuencia de resonancia $f = \frac{1}{2\pi\sqrt{LC}}$.

Consideremos una bobina de inductancia L_0 por la que pasa una corriente I . La energía total acumulada en la bobina viene dada por

$$U_0 = \frac{1}{2}L_0I^2. \quad (3.1)$$

La ecuación 3.1 es equivalente a la energía acumulada en el campo magnético de la bobina en un volumen V_b , la cual se expresa de la siguiente manera

$$U_0 = \frac{1}{2} \int_{V_b} \vec{B} \cdot \vec{H}_0 d^3r = \frac{1}{2} \int_{V_b} \mu_0 H_0^2 d^3r. \quad (3.2)$$

En la ecuación 3.2, el campo \vec{H}_0 , llamado *intensidad de campo magnético*, es asociado al campo magnético producido únicamente por corrientes libres (no ligadas al material) o un campo externo aplicado al sistema. El campo \vec{B} , llamado *campo magnético o inducción magnética*, es el campo total que involucra tanto al campo producido por corrientes libres o fuentes externas \vec{H}_0 como el campo producto de un material con magnetización \vec{M} , en el cual μ_0 es la permeabilidad magnética del vacío. Estos campos están relacionados de la siguiente manera:

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{H}_0 + \vec{M}). \quad (3.3)$$

Si se introduce una muestra en la bobina, la energía acumulada en su interior U_m se

expresa como

$$U_m = \frac{1}{2} \left[\int_{V_m} \mu_0 (\vec{H}_0 + \vec{M}) \cdot \vec{H}_0 d^3r + \int_{V_b - V_m} \mu_0 H_0^2 d^3r \right]. \quad (3.4)$$

El primero término corresponde a la energía en la región donde está la muestra (existe magnetización y campo externo), en el cual V_m es el volumen de la muestra. El segundo término es la energía acumulada en la región fuera de la muestra. El cambio de energía luego de introducir la muestra $\Delta U = U_m - U_0$, viene de la diferencia de las ecuaciones 3.4 y 3.2

$$\Delta U = \frac{1}{2} \int_{V_m} \mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_0 d^3r. \quad (3.5)$$

El cambio de energía en la bobina es asociado a un cambio de la inductancia lo que implica que

$$\Delta LI^2 = \int_{V_m} \mu_0 \vec{M} \cdot \vec{H}_0 d^3r. \quad (3.6)$$

Si asumimos un campo magnético $\vec{B} = \mu_0 \vec{H}$ uniforme en la bobina, integramos la ecuación 3.2 en todo su volumen e igualamos con la ecuación 3.1, tenemos

$$L_0 I^2 = \mu_0 H_0^2 V_b. \quad (3.7)$$

Ahora, utilizando la relación $\vec{M} = \chi \vec{H}_0$ en la ecuación 3.6 e integramos en el volu-

men de la muestra tenemos:

$$\Delta LI^2 = \mu_0 \chi H_0^2 V_m \quad (3.8)$$

donde χ es la susceptibilidad magnética. Si dividimos la ecuación 3.8 entre la 3.7, obtenemos la relación del cambio de inductancia con la susceptibilidad magnética:

$$\frac{\Delta L}{L_0} = \chi \frac{V_m}{V_b}. \quad (3.9)$$

En vista de que la bobina es parte de un circuito oscilador LC , cuya frecuencia de resonancia es $f_0 = \frac{1}{2\pi\sqrt{L_0 C}}$, se realiza una expansión del cambio de frecuencia Δf con respecto al cambio del valor de la inductancia ΔL :

$$\frac{\Delta f}{f_0} = -\frac{1}{2} \frac{\Delta L}{L_0}. \quad (3.10)$$

Utilizando las ecuaciones 3.9 y 3.10, obtenemos la relación entre el cambio de frecuencia y la susceptibilidad magnética:

$$\frac{\Delta f}{f_0} = -\frac{\chi}{2} \frac{V_m}{V_b}. \quad (3.11)$$

3.1.2. Susceptibilidad Magnética y Longitud de Penetración Magnética

La susceptibilidad magnética se relaciona con la longitud de penetración magnética y utilizando las aproximaciones necesarias para una geometría de la muestra como la representada en la Figura 3.1, la susceptibilidad magnética viene dada por

$$-\chi \approx \frac{1}{1-D} \left[1 - \frac{\lambda}{R} \tanh\left(\frac{R}{\lambda}\right) \right] \quad (3.12)$$

en donde R es el tamaño efectivo de la muestra y D el factor de desmagnetización.

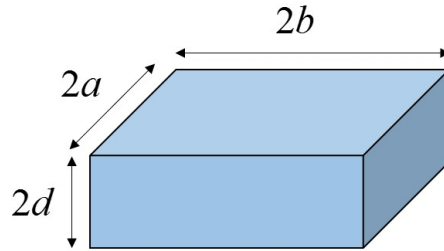


Figura 3.1: Forma general de las muestras utilizadas en las medidas de longitud de penetración magnética.

En general, el tamaño de la muestra es mucho mayor que el valor de λ . Tomando la condición límite de $R \gg \lambda$ en la ecuación 3.12, tenemos:

$$-\chi = \frac{1}{1-D} \left[1 - \frac{\lambda}{R} \right]. \quad (3.13)$$

Sustituyendo la ecuación 3.13 en 3.11 tenemos:

$$\frac{\Delta f}{f_0} = \frac{V_m}{2V_b(1-D)} \left[1 - \frac{\lambda}{R} \right] \quad (3.14)$$

con $\Delta f = f_0 - f_m$ en donde f_0 y f_m son la frecuencia de resonancia sin muestra y con muestra respectivamente.

Definiendo $\Delta\lambda(t) \equiv \lambda(T) - \lambda(T_{min})$ y $\Delta f(T) \equiv \Delta f_m(T) - \Delta f_0(T)$, donde $\Delta f(T)$ se expresa de forma explícita como:

$$\Delta f(T) = [f_m(T) - f_m(T_{min})] - [f_0(T) - f_0(T_{min})]. \quad (3.15)$$

El primer corchete corresponde al cambio de frecuencia de resonancia en temperatura en presencia de la muestra, mientras que el segundo corchete es la variación de frecuencia en ausencia de muestra. El montaje experimental (sección 3.3) fue diseñado para minimizar un posible cambio en el circuito resonante en función de la temperatura, lo que nos permite decir que $f_0(T) - f_0(T_{min}) \cong 0$. Entonces, el cambio de frecuencia es $\Delta f(T) \cong f_m(T) - f_m(T_{min})$, lo que nos lleva a que

$$\Delta f(T) = \frac{V_m f_0}{2RV_b(1-D)} \Delta\lambda(T) \quad (3.16)$$

donde definimos:

$$G \equiv \frac{V_m f_0}{2RV_b(1-D)}. \quad (3.17)$$

Finalmente, el cambio de frecuencia de resonancia se relaciona con el cambio de la

longitud de penetración magnética de la siguiente manera

$$\Delta f(T) = G\Delta\lambda(T). \quad (3.18)$$

Independientemente del valor de G , podemos decir que $\Delta f(T) \propto \Delta\lambda(T)$.

Las secciones 3.1.1 y 3.1.2 están desarrolladas en detalle en la Ref. [35].

3.1.3. Susceptibilidad Magnética y Efecto Piel

La técnica de medida del oscilador de diodo túnel está basada en la relación que existe entre el cambio de frecuencia del oscilador Δf con la susceptibilidad magnética χ (ecuación 3.11), que por encima de la temperatura crítica superconductor T_c (estado normal) es sensible a la respuesta producida por el efecto piel o “skin depth”.

El efecto piel describe que las corrientes AC en un conductor circulan principalmente en una región superficial con una profundidad δ . Este efecto trae como consecuencia el cambio de resistencia efectiva y la disminución de la sección eficaz del paso de corriente del conductor, efectos que dependen de la frecuencia AC de la corriente.

La relación que existe entre el cambio de frecuencia medido y el efecto piel es [36]

$$\Delta f(T) \propto \Delta\delta(T) = \sqrt{\frac{2\rho(T)}{\mu(T)\omega}} \quad (3.19)$$

donde $\rho(T)$ es la resistividad eléctrica, $\mu(T)$ la permeabilidad magnética y $\omega = 2\pi f$ está relacionada con la frecuencia del oscilador f .

La ecuación 3.19 indica que los cambios de frecuencia detectados en el estado normal ($T > T_c$), pueden ser asociados a la respuesta en temperatura de la resistividad eléctrica $\rho(T)$ y la permeabilidad magnética $\mu(T)$, lo que permite detectar una fase magnética en el estado normal del material.

3.1.4. Longitud de Penetración Magnética en Muestras Magnéticas

El valor efectivo de la longitud de penetración magnética varía cuando se tienen muestras con algún tipo de magnetismo. En un superconductor puro en el límite local, el valor efectivo de la penetración magnética viene dado por [37]:

$$\lambda(T) = \sqrt{\mu(T)}\lambda_L(T) \quad (3.20)$$

con

$$\lambda_L = \sqrt{\frac{m_e}{\mu_0 e^2 n_s(T)}} \quad (3.21)$$

en donde m_e es la masa del electrón, e la carga del electrón, μ_0 la permeabilidad magnética del vacío y $n_s(T)$ la densidad de electrones superconductores.

Para muestras que presentan impurezas paramagnéticas la permeabilidad se comporta como $\mu(T) \sim 1/T$, lo que se ve reflejado como un aumento en la penetración magnética en la región de bajas temperaturas [37, 38].

3.1.5. Sistema de Medida

El sistema de medida de cambio de frecuencia Δf fue implementado por primera vez en el laboratorio de temperaturas bajas del IVIC por W. Brämer [35] para un sistema de medidas de longitud de penetración magnética sin presión. La tesis de W. Brämer contiene los detalles de todo el desarrollo de la electrónica, amplificadores y filtros utilizados en la medida de Δf . En este trabajo solo se expondrán los aspectos necesarios para entender el sistema de medida.

El cambio de frecuencia Δf se mide a través de un circuito oscilador LC alimentado por un diodo túnel [39]. El diodo túnel tiene la propiedad de que en ciertas condiciones de corriente I y voltaje V posee una resistencia negativa. En la Figura 3.2 se muestra la curva característica del diodo **DB3**, en la cual existe una región donde la pendiente $I - V$ es negativa indicando que en esa región de voltaje y corriente el diodo posee una resistencia negativa. Esta propiedad hace que el diodo se comporte como un elemento activo del tipo amplificador/oscilador, el cual es capaz de oscilar entre los valores donde su resistencia es negativa de forma estable.

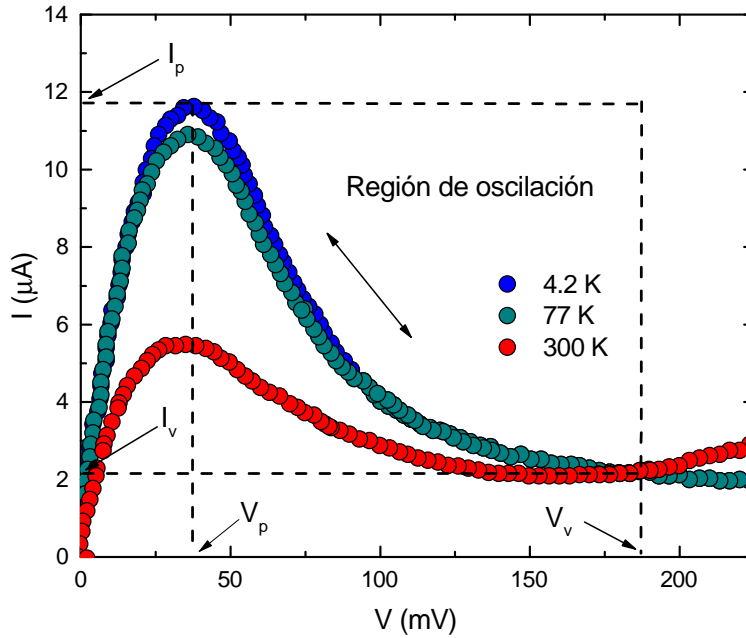


Figura 3.2: Curva característica del diodo túnel DB3 a diferentes temperaturas.

El diodo es capaz de oscilar entre regiones de voltaje V_v (voltaje de valle) y V_p (voltaje pico), dando una respuesta en corrientes I_v e I_p respectivamente. La respuesta corriente-voltaje del diodo se ve magnificada a bajas temperaturas tal y como se observa en la Figura 3.2. Este incremento en la respuesta de corriente da mayor estabilidad a la oscilación.

El circuito oscilador con el diodo túnel **DB3**, se muestra en la Figura 3.3 y puede dividirse en dos partes, **A** y **B**.

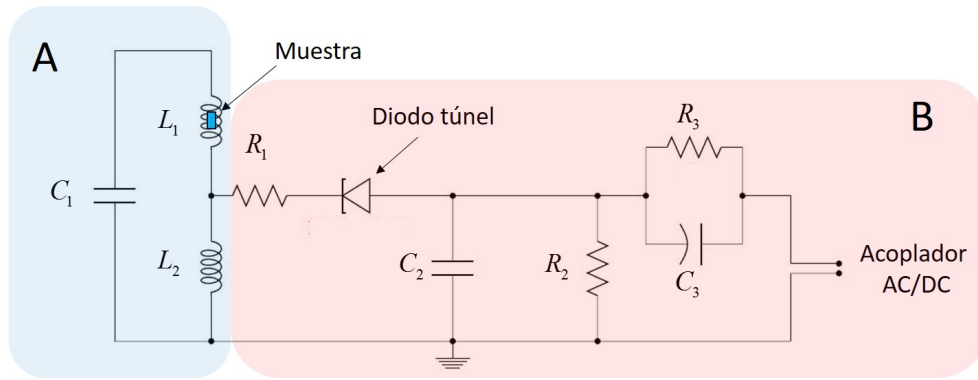


Figura 3.3: Circuito oscilador LC de diodo túnel. El circuito está constituido por los elementos $C_1 = 100 \text{ pF}$, $C_2 = 100 \text{ pF}$, $C_3 = 20 \text{ pF}$, $R_1 = 300 \text{ } \Omega$, $R_2 = 300 \text{ } \Omega$, $R_3 = 1200 \text{ } \Omega$, $L_1 = 0,82 \text{ } \mu\text{H}$ y $L_2 = 0,32 \text{ } \mu\text{H}$

La parte **A** corresponde al circuito oscilador LC , que consta de los elementos C_1 , L_1 y L_2 . El elemento L_1 es la bobina sensora o principal en donde se encuentra la muestra, C_1 es el condensador del oscilador LC y L_2 es una bobina de ajuste que posee diversas funciones en el circuito. La bobina L_2 está involucrada en el incremento de la sensibilidad de la bobina sensora, en la eliminación de la respuesta no lineal dependiente de la tensión de alimentación y establece el rango de oscilación en temperatura. En esta parte **A** del circuito oscilador, los elementos L_2 y C_1 se mantienen aislados de cambios térmicos (ver sección 3.3); esto se hace para minimizar cualquier respuesta que pueda tener el sistema oscilador (no provenientes de la muestra) en temperatura.

La parte **B** está relacionada con la alimentación de voltaje y corriente de todo el circuito, que entre sus funciones está establecer el rango de corrientes que pasa tanto por el diodo túnel como el circuito oscilador (parte **A**). Esta parte del circuito se ubica en el refrigerador de dilución en una parte donde su temperatura permanece constante a 4.2 K durante todo el experimento (ver sección 3.3). Los elementos que conforman esta parte del circuito son; diodo **DB3**, R_1 , R_2 , R_3 , C_2 y C_3 .

La bobina principal L_1 está construida con un alambre de cobre esmaltado marca Belden de 40 AWG. La bobina L_1 tiene 36 vueltas y sus dimensiones son de 2mm de diámetro y 7.2 mm de longitud, donde la separación entre las vueltas es igual al diámetro del cable. La bobina fue endurecida con epoxy transparente **Stycast 1266** y el campo magnético que genera es $\mu_0 H < 5$ mOe, campo suficientemente pequeño para que no produzcan vórtices de campo magnético en la muestra. La bobina de ajuste (L_2) esta construida de la misma manera que la bobina L_1 , pero el número de vueltas varía entre 12 a 18 según la necesidad del experimento. Vale destacar que las características físicas de las bobinas fueron especialmente diseñadas para ser implementadas en el sistema de medidas en presión, las cuales son significativamente distintas del diseño realizado para medidas a presión atmosférica [35].

En la Figura 3.4, se muestra un esquema general de la electrónica del sistema de medida.

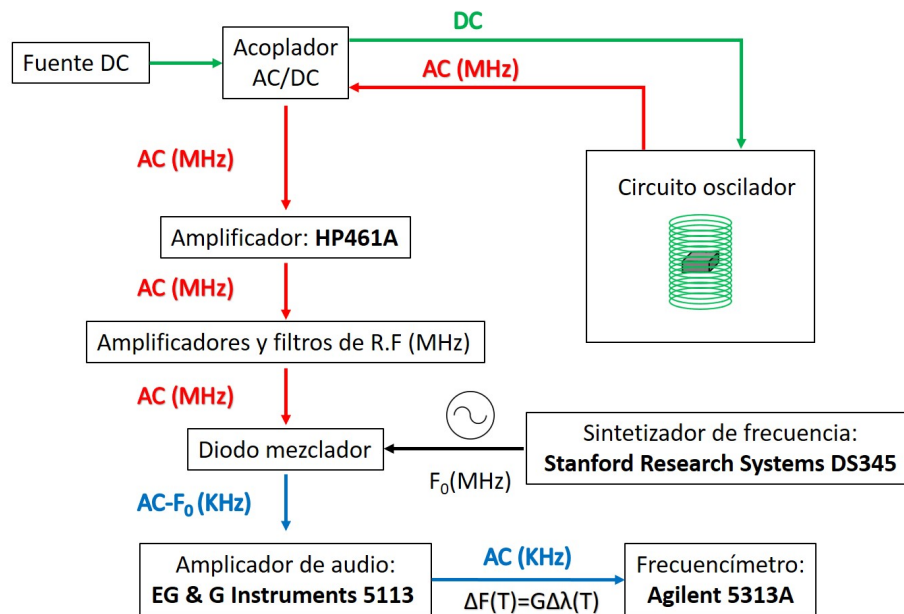


Figura 3.4: Diagrama de medida de Δf

La manera de medir $\Delta f(T)$ se explica en los siguientes pasos:

- Se tiene una fuente de voltaje DC de muy alta estabilidad construida en el laboratorio [35], la cual sintoniza el voltaje donde oscila el diodo túnel.
- La fuente DC es conectada a un acoplador AC/DC, que permite el paso de voltaje DC hacia la alimentación del circuito del diodo túnel y simultáneamente permite el retorno de la señal AC proveniente del circuito oscilador.
- La señal AC (~ 13.5 MHz) es amplificada en dos etapas; primero pasa por el amplificador **HP461A** y luego por una cascada de amplificadores y filtros pasa banda entre 12 MHz y 16 MHz construidos en el laboratorio [35].
- Luego de la etapa de amplificación, viene el bloque heterodino. Esta etapa consiste en aumentar la relación señal ruido optimizando el rango donde ocurre el cambio de frecuencia. En esta etapa, la señal AC (MHz) pasa por un diodo mezclador que suma o resta las frecuencias de dos señales, en este caso particular seleccionamos la resta de la señal AC con una frecuencia fija proporcionada por el sintonizador de frecuencias de muy alta estabilidad **Stanford Research System DS345**.
- La señal de salida del mezclador, ahora es del orden de los kHz (frecuencia audible) y pasa un amplificador y filtro de audio, donde finalmente, el cambio frecuencia es medido en el frecuencímetro de alta resolución **Agilent 5313A**.
- Todo el sistema de medida es controlado remotamente con conexiones GPIB en LabView.

3.2. Altas Presiones

3.2.1. Celda de Pistón de CuBe/NiCrAl

Las altas presiones son generadas en una celda cilíndrica de pistón híbrida de auto-bloqueo “*self-clamped hybrid piston-cylinder cell*”, la cual fue especialmente diseñada por F. Honda y I. Bonalde para implementar la técnica de longitud de penetración magnética con altas presiones en el refrigerador de dilución del laboratorio de temperaturas bajas del IVIC. El diseño de la celda presión se basa en la propuesta realizada por el grupo de física de condiciones extremas de la universidad de Tokio, Japón [40]. La celda fue construida por C&T Factory Co., Ltd., Tokyo, Japón, utilizando aleaciones de CeBe/NiCrAl no magnéticas [41], lo que permite utilizar sondas sensibles al magnetismo sin que la celda tenga alguna influencia magnética en la medida. El esquema general de la celda de presión puede observarse en la Figura 3.5.

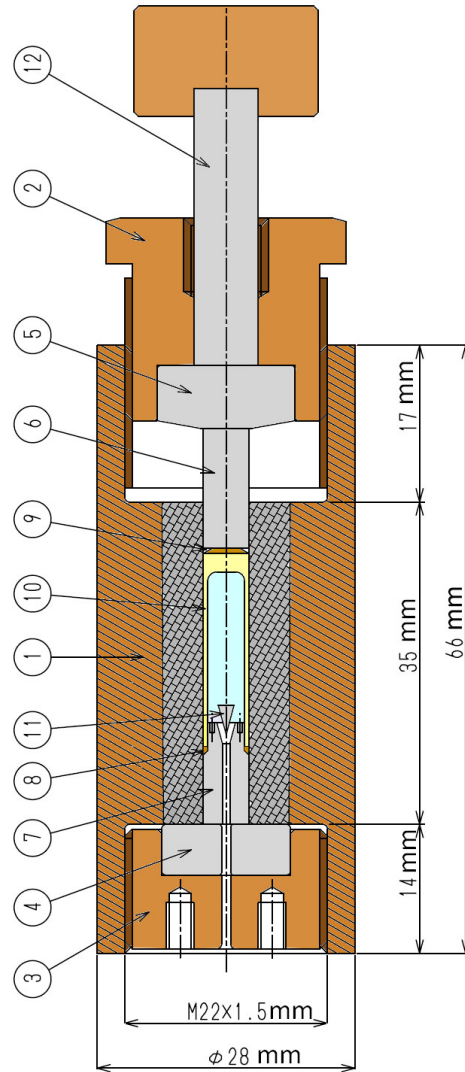


Figura 3.5: Diagrama general de la celda de presión. (1) Cilindro exterior de CuBe de la celda de presión, (2) Tornillo superior de CuBe, (3) Tornillo inferior de CuBe, (4) Soporte del tapón de WC no magnético, (5) Soporte del pistón de presurización de WC no magnético, (6) Pistón de presurización de WC no magnético, (7) Tapón de NiCrAl, (8) Anillo de sello de presión inferior de CuBe, (9) Anillo de sello de presión superior de CuBe, (10) Cápsula de teflon, (11) Tapón cónico de soporte para el sellar el paso de conexiones en el tapón de NiCrAl, (12) Vara de empuje de NiCrAl

La presión en la celda se genera comprimiendo una cápsula de teflón (Figura 3.5 (10)) rellena de un fluido presurizante (glicerina), el cual al ser incompresible genera presión hidrostática. La cápsula de teflón está soportada sobre un tapón de NiCrAl (Figura 3.5 (7)) que sostiene el sistema de medida de penetración magnética. La disposición de los elementos del sistema de medida de longitud de penetración magnética se muestra en más detalle en la Figura 3.6, en donde se observa la bobina principal (Figura 3.6(6)), la muestra (Figura 3.6(4)) y la fibra óptica con un rubí en la terminación de la fibra 3.6(3)(8)). La fibra óptica y el rubí se utilizarán para medir la presión dentro de la celda (ver sección 3.10).

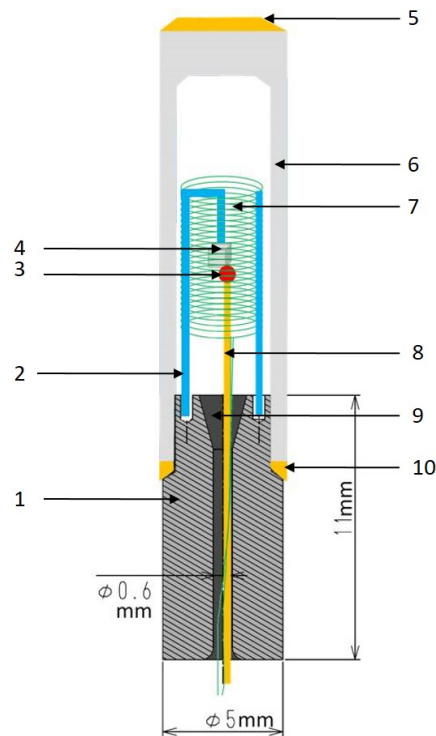


Figura 3.6: Montaje del sistema de longitud de penetración magnética en la celda de presión. (1) Tapón, (2) Bastón porta muestra, (3) Rubí, (4) Muestra, (5) Sello superior de la cápsula de teflón, (6) Cápsula de teflón, (7) Bobina principal, (8) Fibra óptica, (9) Sello de Epoxy, (10) Sello inferior de la cápsula de teflón.

El tapón de NiCrAl posee un orificio que permite la salida de los alambres de la bobina y fibra óptica ubicados en el interior de la cápsula de teflón (Figura 3.6(1)). Este orificio es sellado con epoxy **Stycast 2850 FT** (Figura 3.6(9)) previamente desgasado al vacío (15 min aproximadamente). Este procedimiento de sellado es suficiente para obtener presiones del orden de 2.5 GPa. Para presiones mayores a 2.5 GPa es necesario utilizar el tapón cónico (Figura 3.5(11)) cuando se sella el orificio del tapón con el **Stycast 2850 FT**, donde posteriormente se añade una capa de epoxy transparente **Stycast 1266** que da elasticidad al sello epóxico, ya que a estas presiones el **Stycast 2850 FT** se quiebra y fuga el fluido presurizante. Para evitar fugas del fluido presurizante en la unión de la cápsula de teflón y el tapón, se utilizan los anillos de CuBe (Figura 3.5 (8)(9) y Figura 3.6(5)(10)).

El tapón de NiCrAl esta soportado por un cilindro de WC no magnético (Figura 3.5 (4)) que también permite la salida de los alambres y fibra óptica del interior de la capsula de teflón. Este cilindro está contenido dentro del tornillo inferior de CuBe (Figura 3.5 (3)) que actúa como soporte para contener la presión generada. El tornillo superior de CuBe (Figura 3.5 (2)) tiene la función de mantener la presión, es decir, bloquea que la cápsula de teflón vuelva a expandirse luego de su compresión.

El hecho que la cápsula de teflón y el tapón están rodeados por la parte interna del cuerpo de la celda (Figura 3.5 (1)) trae como consecuencia que la deformación de la cápsula de teflón sólo sea posible en la misma dirección en que se ejerce la fuerza del pistón de presurización (Figura 3.5 (6)), generando así presión hidrostática.

3.2.2. Medidas de Presión

La presión dentro de la celda es determinada midiendo el corrimiento de la línea fluorescencia R_1 del rubí respecto a su valor a presión atmosférica. El rubí es colocado en el interior de la cápsula de teflón, tal y como se ve en la Figura 3.6 y es iluminado con un láser verde de 532 nm que excita al rubí que emite su señal de fluorescencia. Esta señal es llevada y recibida mediante un acople de fibras ópticas y lentes como se muestra en la Figura 3.7.

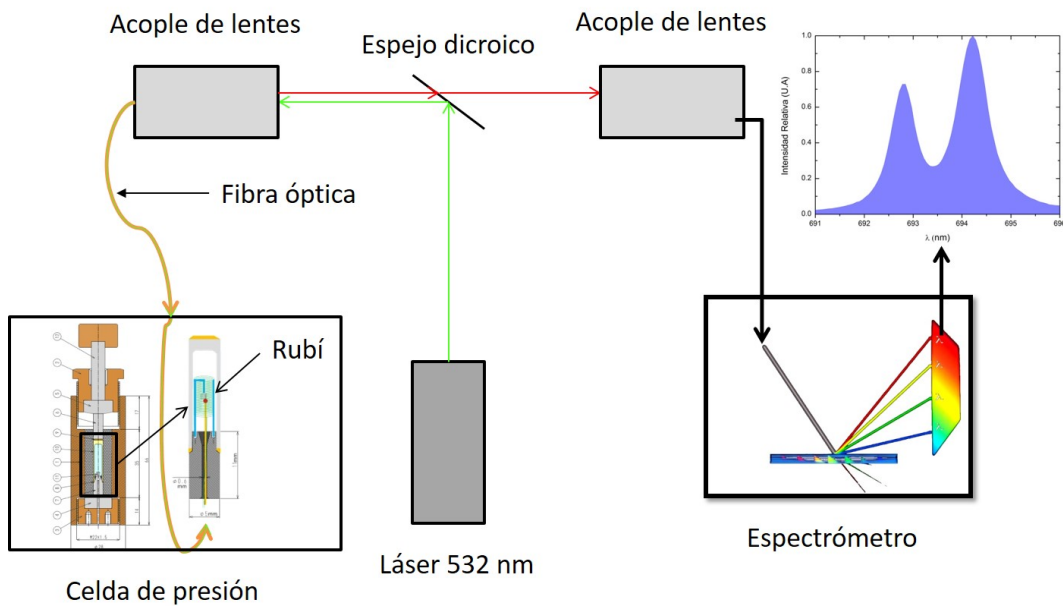


Figura 3.7: Sistema óptico para medidas de presión.

El sistema para medir el espectro de la línea R_1 del rubí (Figura 3.7), utiliza un espejo dicroico que funciona como un filtro en longitud de onda; refleja pero no transmite la longitud de onda de 532 nm del láser. La luz del láser reflejada por el espejo dicroico es concentrada en un acople de lentes hacia una fibra óptica, la cual permite llevar la

luz del láser hacia el rubí ubicado dentro de la celda. El rubí iluminado por el láser responde a la excitación emitiendo su patrón de fluorescencia alrededor de los 694 nm. Esta la señal se devuelve por la misma fibra óptica, pasa nuevamente por el acople de lentes y se trasmite a través del espejo dicróico hacia otro conjunto de acoples de lentes, donde finalmente llega al espectrómetro **Princeton Instruments SP Acton 2500**.

Dado que el experimento se realiza en bajas temperaturas, es necesario poder determinar la presión tanto a temperatura ambiente como a bajas temperaturas. Debido a que el fluido presurizante puede cambiar sus propiedades (se congela), el valor de la presión necesariamente no es el mismo a temperatura ambiente que a helio líquido (4.2 K). Para esto, es necesario conocer el comportamiento del espectro de fluorescencia del rubí en este rango de temperaturas.

La Figura 3.8 muestra el comportamiento en temperatura de la línea R_1 del rubí a presión atmosférica [42]. En general, se observa que la longitud de onda va disminuyendo a medida que baja la temperatura con un ligero incremento por debajo de 30 K.

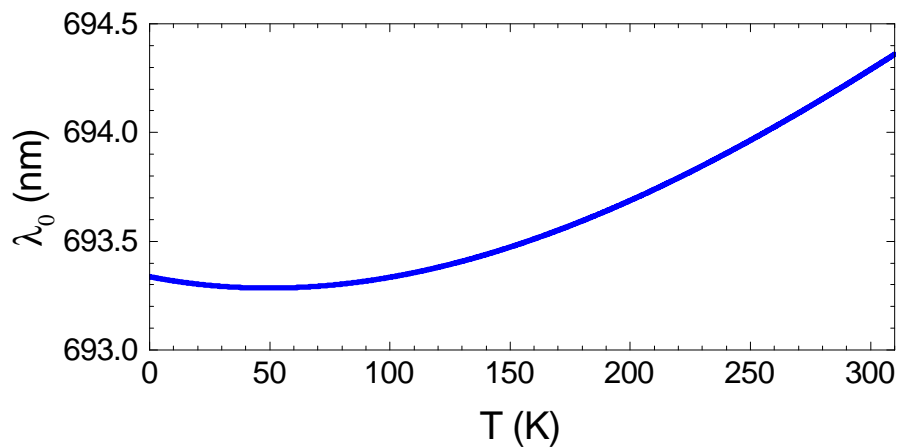


Figura 3.8: Comportamiento de la línea R_1 del rubí en temperatura

Debido al comportamiento en temperatura del espectro de fluorescencia del rubí, es necesario medir la presión bajo las mismas condiciones de temperatura para así disminuir tanto el error en la medida y como en la definición de la longitud de onda a presión atmosférica λ_0 . Para esto, fijamos dos temperaturas; ambiente, utilizando como valor 297 K (temperatura promedio del laboratorio) y helio líquido a 4.2 K.

El espectro del rubí para las temperaturas mencionadas se observa en la Figura 3.9:

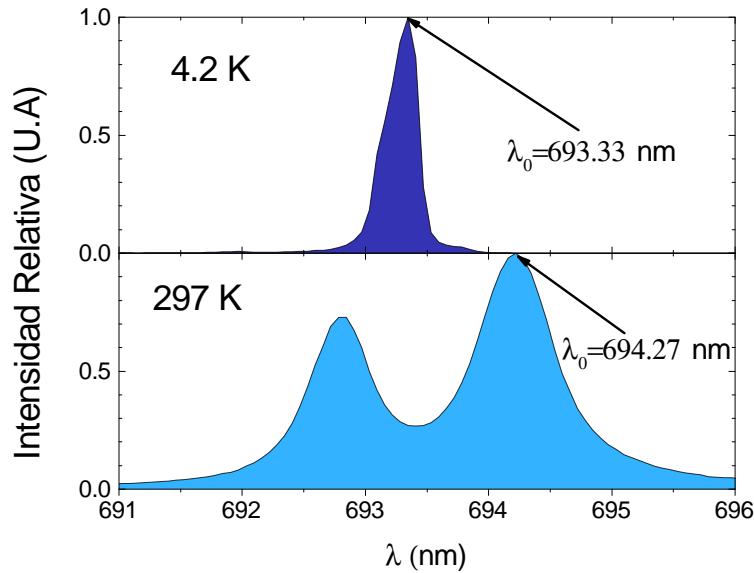


Figura 3.9: Espectro de fluorescencia del rubí a presión atmosférica a 297 K y 4.2 K

Para determinar la presión para las diferentes temperaturas se utilizan las siguientes expresiones [43]:

Para 297 K:

$$P(\text{GPa}) = \frac{A}{B} \left[\left(1 + \frac{\Delta\lambda}{\lambda_0} \right)^B - 1 \right]. \quad (3.22)$$

$A = 1904 \text{ GPa}$, $B = 7,715$ y $\lambda_0 = 694,27 \text{ nm}$.

Para 4.2 K:

$$P(\text{GPa}) = A_0 \ln \left(\frac{\lambda}{\lambda_0} \right). \quad (3.23)$$

$A_0 = 1762 \text{ GPa}$ y $\lambda_0 = 694,33 \text{ nm}$.

Donde $\Delta\lambda = \lambda - \lambda_0$, es la diferencia de longitud de onda entre el corrimiento de la línea R_1 del rubí respecto a su longitud de onda a presión atmosférica λ_0 . Las expresiones 3.22 y 3.23 son ampliamente utilizadas en la literatura, cuya implementación ha sido verificada con otras técnicas de medidas de presión [43]. El error de la medida de presión esta en el orden de 0.04 GPa y viene dada por la resolución del espectrómetro.

La Figura 3.10 es un ejemplo de medidas de presión a temperatura ambiente, donde se muestra de manera explícita el corrimimiento en la longitud de onda.

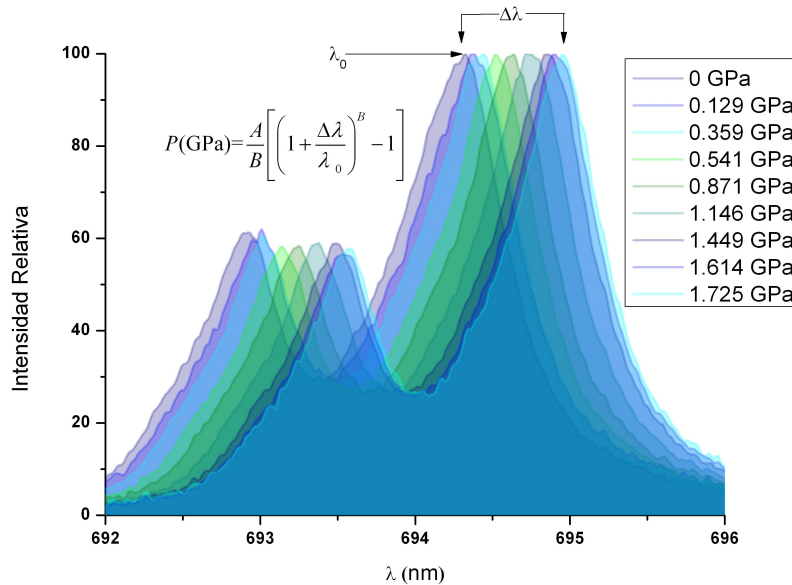


Figura 3.10: Medida de presión por fluorescencia del rubí a temperatura ambiente

3.3. Implementación del Sistema de Medida de Longitud de Penetración Magnética en el Régimen de Altas Presiones y Bajas Temperaturas

La celda de presión, con el sistema de medida de longitud de penetración magnética es instalado en el refrigerador de dilución de $^3\text{He}/^4\text{He}$ como se muestra en la Figura 3.11.

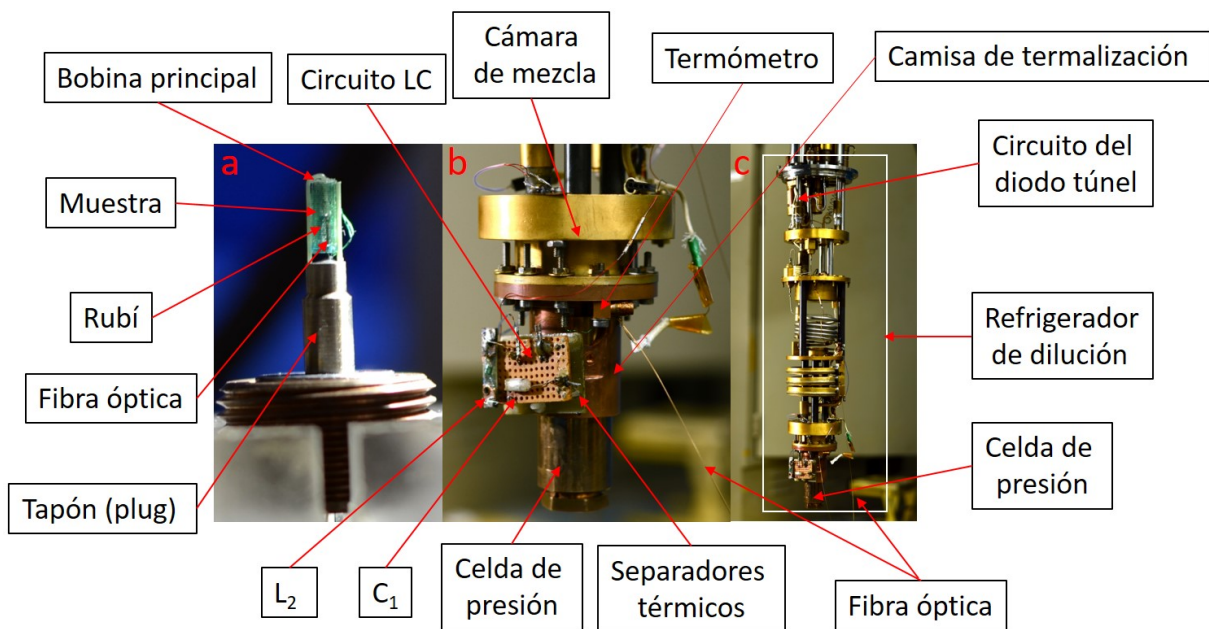


Figura 3.11: Implementación de la celda de presión con el sistema de medida de longitud de penetración magnética en el refrigerador de dilución de $^3\text{He}/^4\text{He}$. a Se muestra el tapón de NiCrAl, la bobina principal, la muestra, la fibra óptica y el rubí. b Disposición de la camisa de termalización con la celda de presión, parte A del circuito LC y la cámara de mezcla. c Refrigerador de dilución y ubicación de la parte B del circuito LC.

La Figura 3.11a es el montaje real del esquema presentado en la Figura 3.6, donde se

observa la bobina principal y la disposición de la muestra, fibra óptica y rubí, que son los elementos que van dentro de la cápsula de teflón y son insertados en la celda de presión como se mostró en la Figura 3.5. En la Figura 3.11b se muestra la celda de presión arropada por la camisa de termalización, la cual está acoplada a la cámara de mezcla del refrigerador de dilución. También se muestra la disposición del circuito oscilador con los elementos L_2 y C_1 , denotando que esta parte del circuito está aislada térmicamente de la camisa de termalización, lo que minimiza cualquier respuesta intrínseca del circuito oscilador en temperatura, al menos por parte de estos elementos. El termómetro es colocado en el acople de la camisa de termalización y la cámara de mezcla. La parte del circuito que posee el diodo túnel (parte B Figura 3.3) se encuentra en la parte superior de refrigerador (Figura 3.11c), la cual siempre va a estar a temperatura constante de 4.2 K, ya que se encuentra en contacto térmico directo con un reservorio de helio líquido.

Todo el sistema de medidas tanto de frecuencia como de temperatura, es controlado remotamente vía GPIB. El sistema de medida de temperatura utiliza un puente de resistencia AVS-47 de la compañía Picowatt y el termómetro es de RuO está calibrado hasta 18 mK por Lakeshore.

3.3.1. Prueba de Termometría y Presión a Bajas Temperaturas

Dada la complejidad del camino térmico para extracción de calor al interior de la celda (donde está la muestra), se realizaron pruebas de termometría para verificar que la temperatura medida y la respuesta obtenida de la muestra son correspondientes.

Durante el proceso de desarrollo de la técnica se hicieron varias pruebas de termometría con diferentes fluidos presurizantes, en las cuales se colocaron muestras con

temperaturas superconductoras críticas conocidas (Nb, Sn, Al, Zn y Cd). De todos los fluidos utilizados, la glicerina fue el único medio presurizante en el que se lograron detectar señales superconductoras por debajo de 1 K, por esta razón, la glicerina es el fluido presurizante que se utilizó en todos los experimentos.

El resultado de la prueba de termometría utilizando muestras de Sn, Al, Zn y Cd a una presión de 1.64 GPa medida a 4.2 K, se muestra en la Figura 3.12. Los resultados de las temperaturas críticas concuerdan muy bien con los valores reportados para estos elementos a ésta presión [44] [45].

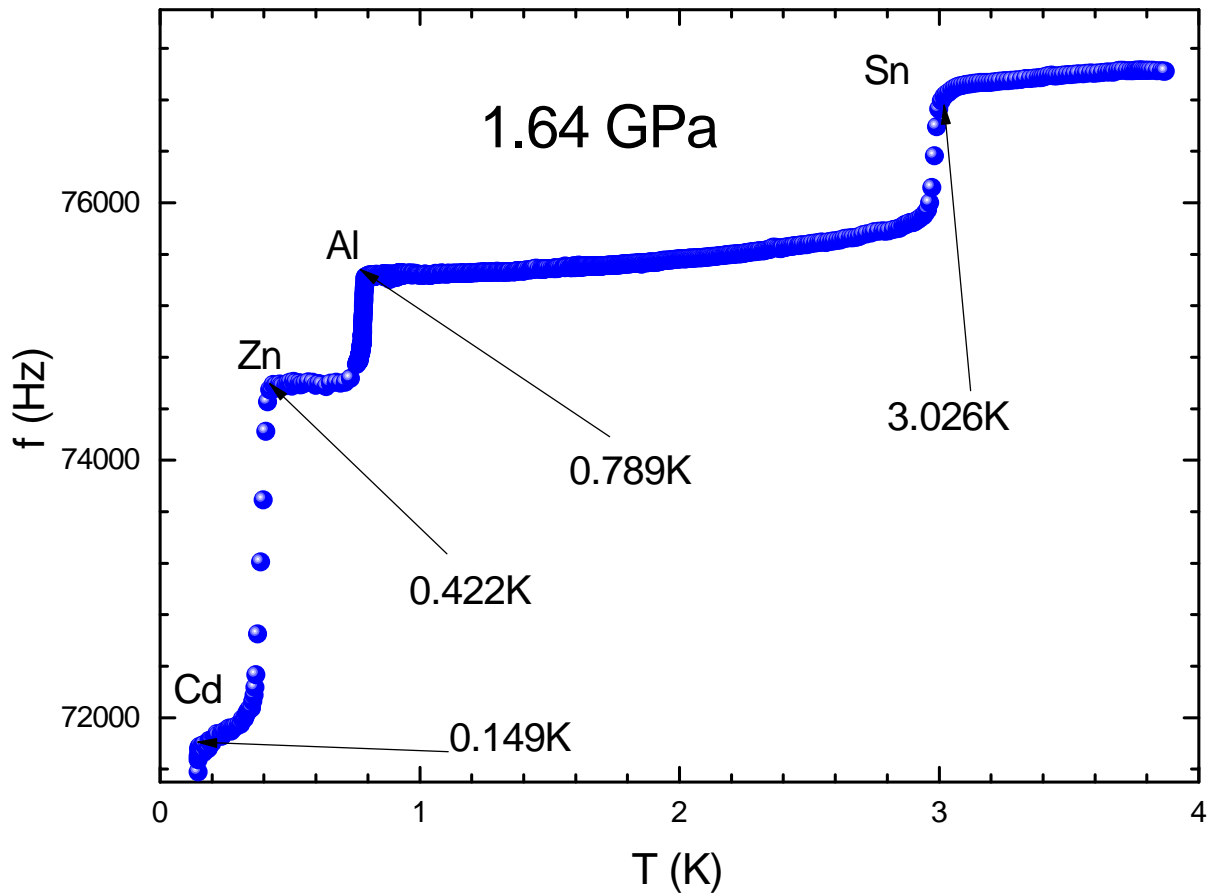


Figura 3.12: Medidas de longitud de penetración magnética expresado en frecuencia para Sn, Al, Zn y Cd a 1.64 GPa

3.4. Preparación de las Muestras de CeIrSi₃ y CeRhSi₃

Los monocristales de CeIrSi₃ fueron crecidos por el método de extracción “pulling method” de Czochralski en horno de tetra arco “tetra-arc furnace”, a una velocidad de 15mm/h por el grupo de Y. Ōnuki en la universidad de Osaka, Japón [46]. Los lingotes crecidos fueron envueltos en papel de Ta y sellados en tubos de cuarzo en vacío de 10⁶ Torr, para luego ser sometidos a un recocido a 950°C por cinco días. La alta calidad de la muestra es evidenciada con la resistividad residual de una razón de 1/120. La muestra fue cortada en dimensiones de 0,45 × 0,65 × 0,2 mm³ y pulida con alúmina con granos de 0.3 μm.

Los monocristales de CeRhSi₃ fueron crecidos por el método de extracción de Czochralski en horno de tetra arco en atmósfera de gas Ar por el grupo de N. Kimura de la universidad de Tohoku, Japón. Los materiales de inicio fueron 4N-Ce, 3N-Rh, y 5N-Si. Los lingotes resultantes estuvieron en recocido a 900 °C en un vacío de 2 × 10⁻⁶ Torr. La muestra medida fue cortada en dimensiones de 0,5 × 0,5 × 0,24 mm³.

Capítulo 4

Parámetro de Orden en CeIrSi_3 y CeRhSi_3

En este capítulo se muestran los resultados de un estudio sistemático de la dependencia en temperatura de la longitud de penetración magnética $\lambda(T)$ bajo presión hidrostática en los compuestos de fermiones pesados no centrosimétricos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 .

Las medidas de $\lambda(T)$, se realizaron en monocristales de CeIrSi_3 y CeRhSi_3 hasta una temperatura de 200 mK y una presión de 2.81 GPa, en el cual el campo magnético aplicado es paralelo al eje cristalográfico [001] para ambas muestras. Los resultados muestran que la estructura de la brecha de energía evoluciona de nodos a isotrópica a una presión $p_c = 2,3$ GPa para el CeIrSi_3 , mientras que para el CeRhSi_3 permanece con nodos. Bajo la luz de estos resultados, se discutirá sobre la relevancia que tiene la presencia del antiferromagnetismo, el acople espín órbita antisimétrico y el punto

crítico cuántico, sobre las propiedades superconductoras de estos fermiones pesados no centrosimétricos.

4.1. Estudios Previos en los compuestos CeIrSi_3 y CeRhSi_3

Los compuestos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 cristalizan en una estructura tetragonal del tipo BaNiSn_3 pertenecientes al grupo espacial $I4mm$ (Nro. 107) que carece de centro inversión y es conocido como estructura *no centrosimétrica*. La estructura cristalina de ambos compuestos está representada en la Figura 4.1, donde los parámetros de red son $a = 4,252 \text{ \AA}$, $c = 9,715 \text{ \AA}$, para el CeIrSi_3 y $a = 4,44 \text{ \AA}$, $c = 9,813 \text{ \AA}$, para el CeRhSi_3 [47, 48].

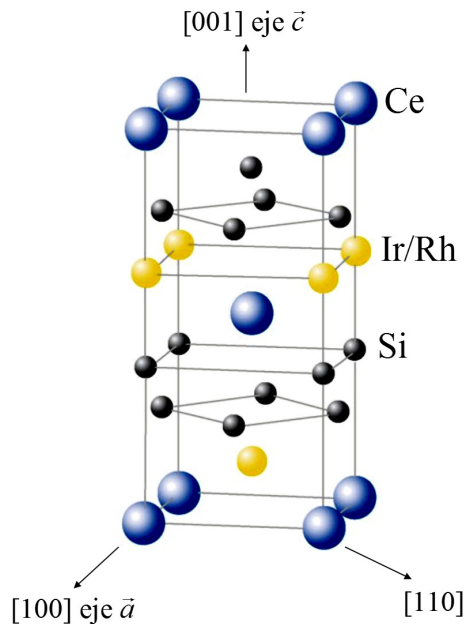


Figura 4.1: Estructura cristalina del CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 . Estructura tetragonal del tipo BaNiSn_3 pertenecientes al grupo espacial $I4mm$ (Nro. 107). La esfera azul representa al Ce, la negra al Si y la amarilla al Ir y Rh según sea el caso. (imagen tomada de Ref. [47]).

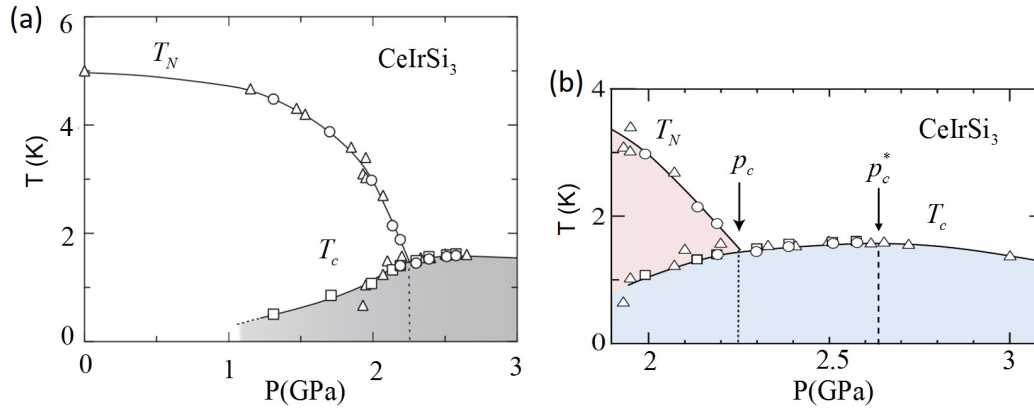


Figura 4.2: Diagrama de fase temperatura-presión del CeIrSi₃ obtenido en estudios previos. (a) Datos obtenidos por medidas de resistividad eléctrica y capacidad calorífica (imagen tomada de Ref. [49]). **(b)** Mayor detalle en el diagrama de fase en la región donde coexiste la fase antiferromagnética con la superconductividad (imagen tomada de Ref. [50]).

El CeIrSi₃ se ordena antiferromagnéticamente por debajo de la temperatura de Néel $T_N = 5,0$ K a presión atmosférica [47]. A medida que la presión aumenta, T_N decrece monótonicamente con tendencia hacia cero tal y como se observa en la Figura 4.2 (a). La superconductividad emerge alrededor de 1.3 GPa, estado que persiste al menos hasta 3.0 GPa, donde el máximo de la temperatura crítica superconductor T_c está alrededor de 1.6 K a una presión $p_c^* \approx 2,58$ GPa (Figura 4.2 (b)) [49]. Hasta ahora, el orden antiferromagnético no ha sido detectado dentro de la fase superconductor por encima de la presión crítica $p_c \approx 2,25$ GPa, en la cual $T_N = T_c$. El comportamiento de T_N indica un posible punto crítico cuántico, donde la fase antiferromagnética desaparece por efecto de la presión.

En el caso del CeRhSi₃, el ordenamiento antiferromagnético se manifiesta a 1.6 K a presión atmosférica [48], pero el comportamiento de T_N a medida que aumenta la presión es diferente al del CeIrSi₃. En la Figura 4.3, se observa que cuando aumenta la

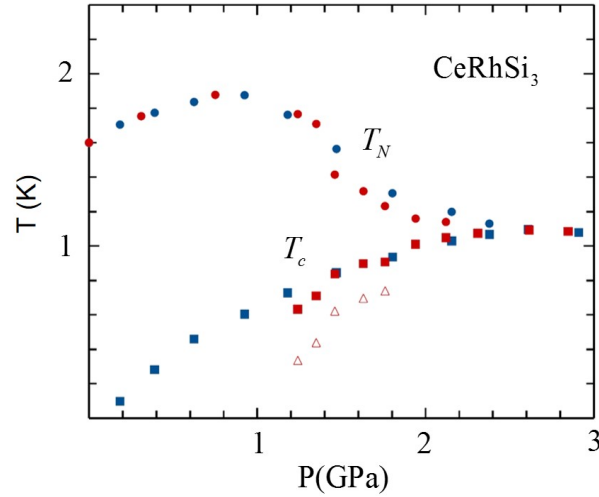


Figura 4.3: Diagrama de fase temperatura-presión del CeRhSi_3 obtenido en estudios previos. Datos obtenidos con medidas de resistividad eléctrica (imagen tomada de Ref. [48]).

presión hay un incremento de T_N hasta 1.9 K que luego decrece y se aproxima asintóticamente al máximo del domo de superconductividad a una presión de $p_c^* \approx 2,7$ GPa. Este comportamiento indica que el antiferromagnetismo parece evitar la superconductividad, lo que aleja la posibilidad de un punto crítico cuántico en este material.

Tanto el CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 presentan un campo magnético crítico superior $H_{c_2}(0)$ muy alto. El CeIrSi_3 presenta un campo $H_{c_2}(0) \approx 45$ T cuando $H \parallel [001]$ a una presión de 2.6 GPa [50]. Mientras que el CeRhSi_3 presenta un campo $H_{c_2}(0) \approx 25$ T con $H \parallel [001]$ a 2.85 GPa [51].

Estudios a presión atmosférica de difracción de neutrones (Figura 4.4) indican que para ambos compuestos el orden magnético es incommensurable, lo que significa que la estructura magnética no coincide con la estructura cristalográfica del compuesto, indicando un comportamiento itinerante de los electrones f [52, 53]. El carácter itinerante

de los electrones f también fue observado por estudios de espectroscopia de fotoemisión resonante resuelta por ángulo [54].

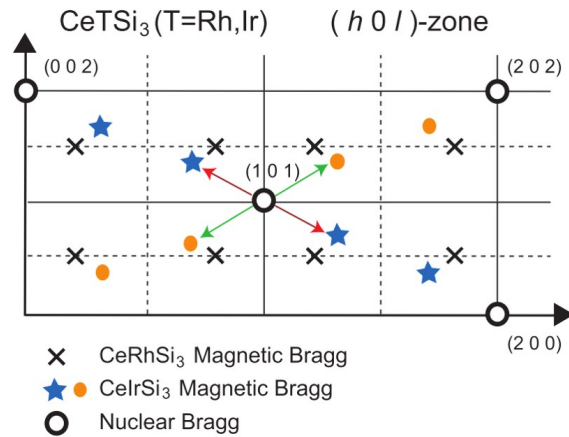


Figura 4.4: Difracción de neutrones a presión atmosférica para el CeIrSi₃ y CeRhSi₃. El orden magnético inconmensurable refleja la naturaleza itinerante de electrones f [52, 53] (imagen tomada de Ref. [53]).

Medidas de Haas-van Alphen (dHvA) muestran que ambos compuestos tienen una superficie de Fermi muy similar (figura 4.5) [55, 56]. Además, tanto estudios de dHvA y de espectroscopia de emisión resonante de rayos-X en presión muestran que la superficie de Fermi no cambia a lo largo del domo de superconductividad [57, 58]. Esto sugiere que las fluctuaciones de espín dominan la física relevante del punto crítico cuántico, descartando el escenario de criticalidad cuántica local, al menos para el CeIrSi₃.

La falta de simetría de inversión en estos compuestos lleva a la aparición de un acoplamiento espín órbita antisimétrico, por lo tanto a la posibilidad de tener estados mixtos de singlete y triplete [59]. Para el caso del CeIrSi₃ el acople espín órbita antisimétrico es grande [60] y podría tener efectos en la simetría del parámetro de orden. Medidas de susceptibilidad de espín a 2.8 GPa se interpretaron como un dominio del

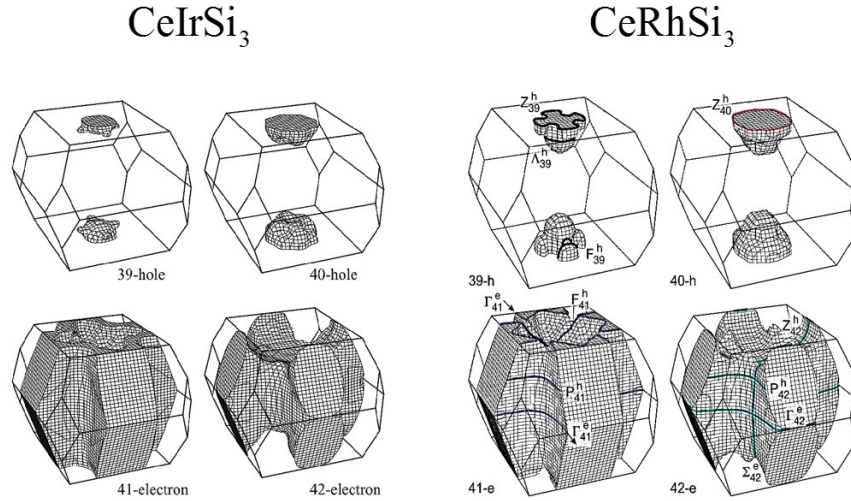


Figura 4.5: Estructura electrónica del CeIrSi_3 y el CeRhSi_3 . Simulaciones de la superficie de Fermi basada en medidas de dHvA (imagen tomada de Ref. [55, 56])

acople espín órbita antisimétrico sobre las correlaciones electrónicas [61]. Hay que resaltar que el acople espín órbita antisimétrico en superconductores no centrosimétricos, pudiera no siempre ser fundamental para la aparición de propiedades no convencionales como las mostradas en el CePt_3Si y LaPt_3Si [62], lo que desvía la atención al rol que pueda tener el orden AFM o el efecto conjunto AFM/acople espín órbita antisimétrico en las propiedades no convencionales de los superconductores.

Ambos compuestos tienen la misma estructura cristalina, magnética y electrónica. El magnetismo de ambos compuestos viene dado por electrones f itinerantes, pero el comportamiento en presión de la fase magnética (identificada con T_N), sugiere que solo el CeIrSi_3 tiene punto crítico cuántico del tipo de ondas de densidad de espín. Vale destacar que hasta ahora no hay estudios concluyentes relacionados con la simetría de la brecha de energía, salvo un estudio de NMR a 2.8 GPa para el CeIrSi_3 que sugieren posibles líneas de nodos en la brecha de energía [63].

4.2. CeIrSi₃

En esta sección se muestra el estudio en presión de la dependencia en temperatura de la longitud de penetración magnética $\lambda(T)$ para el CeIrSi₃. Vale recordar (sección 3.1.3), que en el estado normal ($T > T_c$), las medidas de frecuencia $f(T)$ son proporcionales al efecto piel (ecuación 3.19). Además, dado que el CeIrSi₃ y el CeRhSi₃ son superconductores magnéticos, por debajo de la temperatura crítica superconductora T_c la dependencia de $\lambda(T)$ viene dada por la ecuación 3.20. Para el caso particular del antiferromagnetismo es conocido que $\mu(T)$ minimiza su respuesta exponencialmente [64] [65]. Así que en el límite de bajas temperaturas, las medidas están directamente relacionadas con la densidad de pares de Cooper como $\Delta f(T) \propto \Delta \lambda(T) = \Delta \lambda_L(T)$.

La Figura 4.6 (a)-(h) muestra las medidas de efecto piel y longitud de penetración magnética expresadas en frecuencia de oscilación $f(\text{kHz})$ (datos crudos) para el CeIrSi₃ a diferentes presiones. Además de la transición superconductora indicada como T_c en la Figura 4.6 (a)-(h), el efecto piel muestra un marcado cambio de pendiente en los puntos etiquetados con T_N en la Figura 4.6 (a)-(c). Estas anomalías en el efecto piel son atribuidas a transiciones de la fase antiferromagnética, ya que ocurren muy cerca de las temperaturas de Néel T_N reportadas en la Ref. [47].

CeIrSi₃

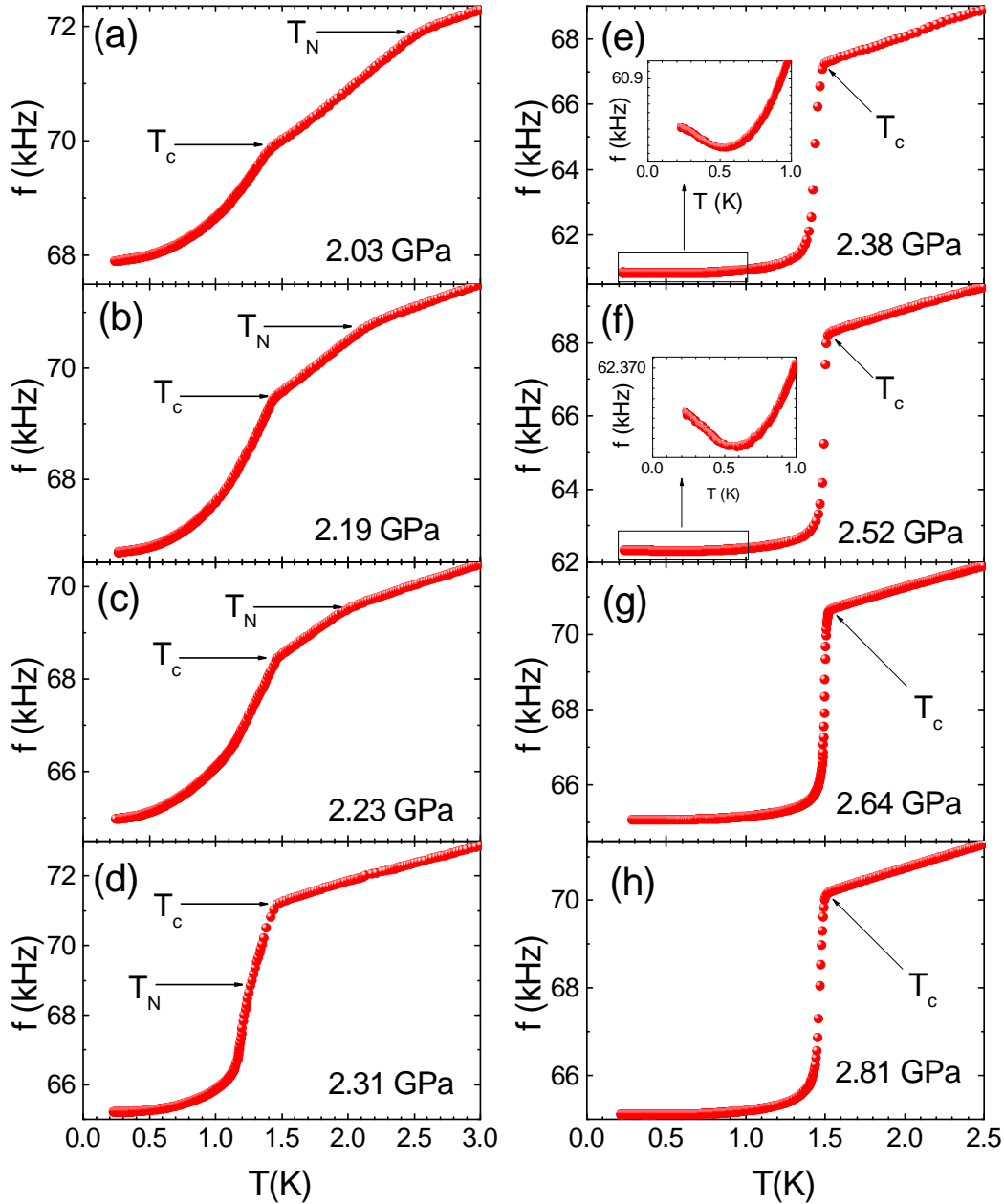


Figura 4.6: Longitud de penetración magnética y efecto piel del CeIrSi₃ bajo presión hidrostática Dependencia de la frecuencia de oscilación (f) con la temperatura en diferentes presiones, donde; $f(T) \propto \lambda(T)$ para $T < T_c$ y $f(T) \propto \delta(T)$ para $T > T_c$. La marca T_c se refieren al comienzo de la transición superconductor y la marca T_N se asocia a una transición antiferromagnética. En el recuadro interno de (e) y (f) se muestra un incremento de la longitud de penetración magnética asociada con la presencia de antiferromagnetismo dentro del estado superconductor.

Hay que remarcar que el efecto piel refleja la respuesta en temperatura tanto de la resistividad eléctrica como de la permeabilidad magnética para $T > T_c$, por lo tanto, puede reflejar transiciones de un orden magnético. La respuesta en el efecto piel puede apreciarse mejor en la Figura 4.7, que muestra las medidas expresadas como cambio de frecuencia Δf y normalizadas a la frecuencia de 3 K. Se observa que por encima de la caída diamagnética hay una clara respuesta del antiferromagnetismo en el efecto piel, que se manifiesta como un cambio de pendiente en los puntos señalados con T_N . Por encima de T_N la respuesta en temperatura es igual para todas las presiones, y por debajo la respuesta en temperatura (pendiente) es igual para aquellas presiones que presentan antiferromagnetismo por encima de T_c . También, de la Figura 4.7, se aprecia mejor el bulto o anomalía dentro de la caída diamagnética a 2.31 GPa, efecto que no se ve en ninguna otra presión.

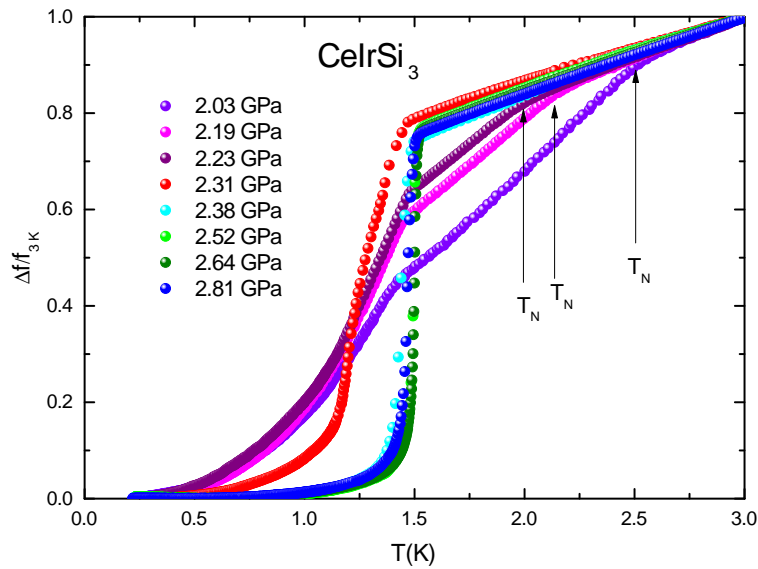


Figura 4.7: Penetración magnética y efecto piel expresados en Δf normalizada a la frecuencia en 3 K.

Las medidas en el CeIrSi₃ muestran por primera vez signos de antiferromagnetismo dentro de la fase superconductora ($T_N < T_c$). Esto se puede decir debido a dos hechos experimentales observados en las medidas:

- Un bulto o anomalía en medio de la caída diamagnética en 2.31 GPa (Figura 4.6 (d)), que desaparece a presiones mayores a 2.31 GPa.
- Un aumento o “upturn” en la longitud de penetración magnética en la región de bajas temperaturas para las presiones 2.38 y 2.52 GPa (recuadro interno en la Figura 4.6 (e)-(f))

El aumento en la longitud de penetración magnética es una manifestación de la fase antiferromagnética, cuya presencia tiene un efecto de rompimiento de pares causando una respuesta reentrante de la componente resistiva de la medida (se destruye parcialmente la superconductividad). Este comportamiento ya ha sido observado a presión atmosférica en penetración magnética en los borocarburos HoNi₂B₂C y ErNi₂B₂C (Figura 4.8) [66–68], donde claramente se observa tanto en la susceptibilidad magnética como en la penetración magnética (Figura 4.8 (a)) el aumento de la señal hasta un máximo, que luego cae nuevamente en el estado diamagnético. Aquí el aumento en la penetración magnética es la fase paramagnética precursora al antiferromagnetismo.

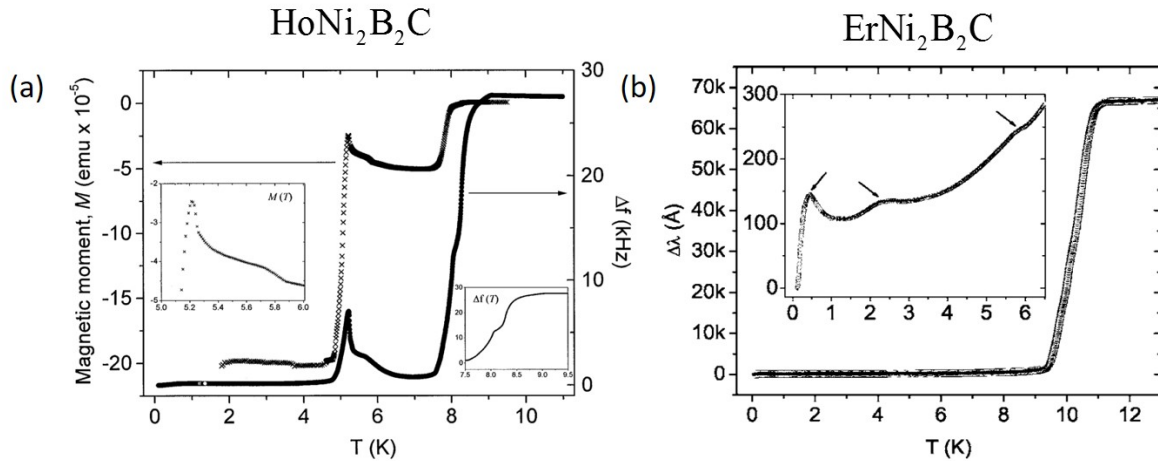


Figura 4.8: Penetración magnética en $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$ y $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$. (a) Medidas de susceptibilidad magnética y penetración magnética del $\text{HoNi}_2\text{B}_2\text{C}$, donde se muestra el aumento en la penetración magnética (expresada en Δf) debido al orden antiferromagnético (imagen tomada de Ref. [67]).(b) Penetración magnética del $\text{ErNi}_2\text{B}_2\text{C}$ en el recuadro interno se observa el efecto del orden magnético en la medida (imagen tomada de Ref. [68])

Por otro lado, del diagrama de fase campo magnético vs temperatura para diferentes presiones del CeIrSi_3 (Figura 4.9 [60]) podemos observar que en la extrapolación de la curva que señala el antiferromagnetismo a cero campo magnético (color rojo Figura 4.9), sería posible encontrar la fase antiferromagnética dentro del estado superconductor. Específicamente, si observamos el diagrama de fase para 2.31 GPa (Figura 4.9 (c)) a 0 T, es posible encontrar la fase antiferromagnética a una temperatura un poco menor a T_c , fase que se relaciona con la anomalía dentro de la caída superconductora a 2.31 GPa (Figura 4.6 (d)). La causa de la anomalía se debe a que el rompimiento de pares causado por la fase magnética altera la forma de la caída diamagnética, efecto que no es observado bajo ninguna otra presión. Además, para las presiones 2.38GPa y 2.52 GPa, no se muestra esta anomalía en la caída diamagnética, pero si presenta el aumento en la penetración magnética. Hecho que es consistente con el diagrama de fase de campo

magnético vs temperatura de la Figura 4.9 (d)(h) a 0 T, en el cual la extrapolación indica que puede existir la fase antiferromagnética dentro del estado superconductor a temperaturas distintivamente menores a T_c , lo cual se refleja en las medidas de penetración magnética en la región de bajas temperaturas (cuando interno de Figura 4.6 (e)(f)).

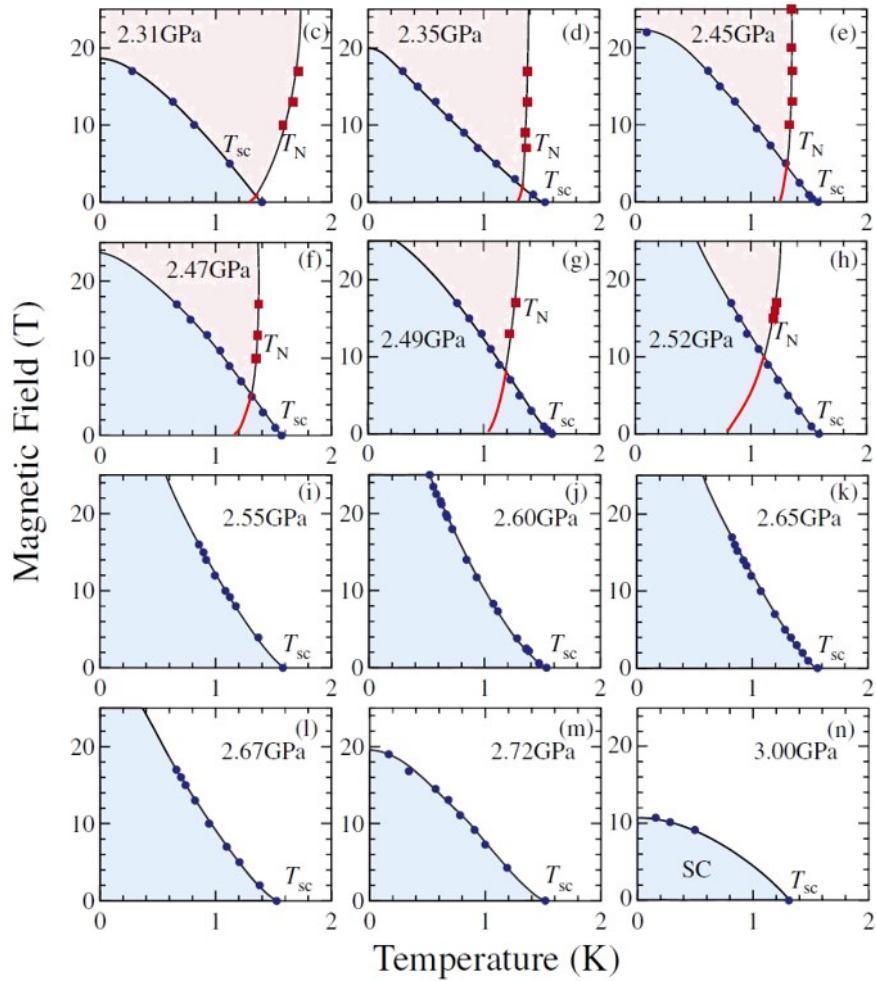


Figura 4.9: Diagrama de fase H (T) vs T(K) del CeIrSi_3 para diferentes presiones. (imagen tomada de Ref. [60])

Para presiones mayores a 2.52 GPa las medidas de penetración magnética no mues-

tran ningún signo de antiferromagnetismo, siendo esto consistente con el diagrama de fase en campo magnético (Figura 4.9). Lo que indica que la fase antiferromagnética desaparece a presiones cercanas a $p_c^* = 2,58$ GPa, confirmando la existencia de un punto crítico cuántico ubicado en las cercanías de p_c^* .

La detección del antiferromagnetismo a presiones $p_c < p < p_c^*$ está en línea directa con la evidencia encontrada en otros fermiones pesados [69–71]. Por ejemplo, en el CeRhIn₅ la fase antiferromagnética fue detectada por medidas de capacidad calorífica luego de extinguir (quenching) la fase superconductor con altos campos magnéticos [69], tal y como se observa en la Figura 4.10.

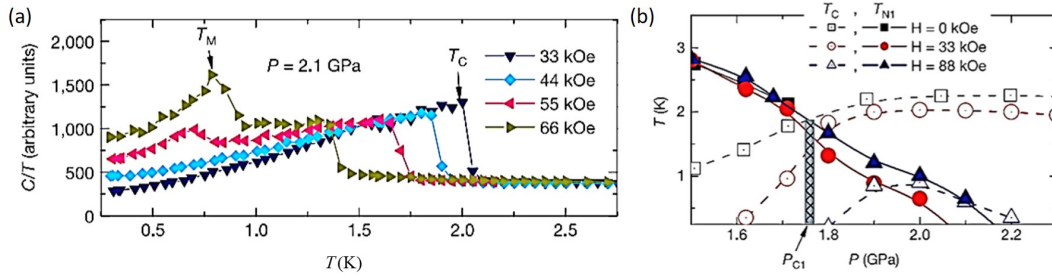


Figura 4.10: Antiferromagnetismo dentro del estado superconductor en el CeRhIn₅. (a) Medidas de C_p con campos magnéticos revelan la fase antiferromagnética dentro la fase superconductor. (b) Diagrama de fase T (K) vs P (GPa) donde se muestra el antiferromagnetismo dentro del estado superconductor (imagen tomada de Ref. [69]).

Utilizando los valores obtenidos de T_N y T_c de las medidas de efecto piel y longitud de penetración magnética, y los valores reportados en medidas de capacidad calorífica y resistividad eléctrica en estudios previos [47, 49], se construye el diagrama de fase temperatura versus presión para el CeIrSi₃ mostrado en la Figura 4.11. Del diagrama de fase podemos observar que en general hay una gran concordancia entre los valores de T_N y T_c reportados previamente y los obtenidos en este estudio. Las dispersiones en T_c

observadas en el diagrama de fase, pueden ser atribuidas a lo difícil de definir el T_c en una transición es ancha a baja presiones (ver transiciones en Ref. [47,49]).

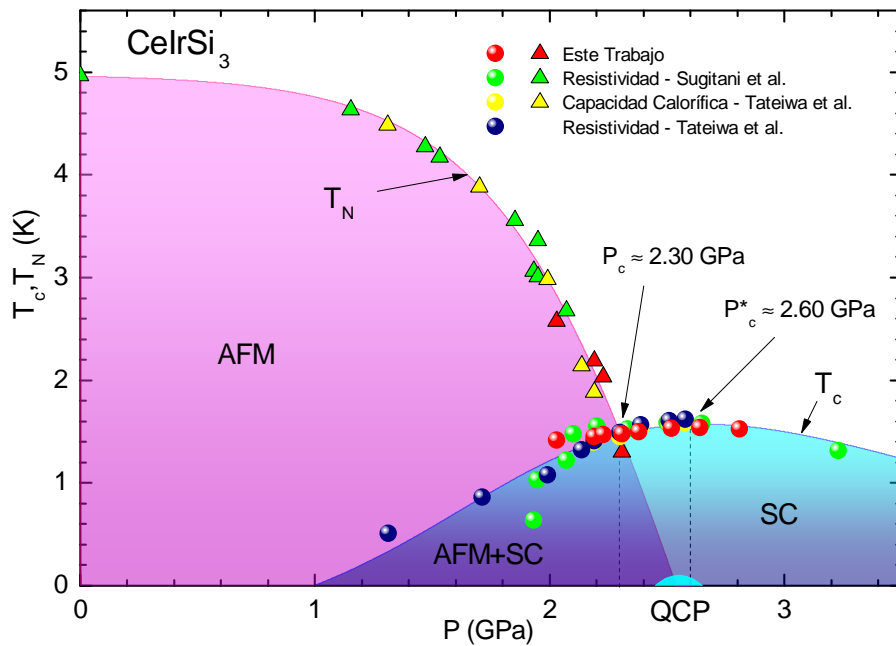


Figura 4.11: Diagrama de fase temperatura versus presión para el CeIrSi_3 . Los triángulos representan las temperaturas de Néel T_N , y las esferas las temperaturas críticas superconductoras T_c . Hay tres regiones identificadas como **AFM** (antiferromagnetismo), **AFM+SC** (antiferromagnetismo + superconductividad) y **SC** (superconductividad), donde $p_c \approx$ es la presión en la cual $T_N = T_c$ y p_c^* es donde T_c es máxima. Alrededor de p_c^* , dentro del error experimental, se encuentra el punto crítico cuántico

Del diagrama de fase (Figura 4.11) se observan tres regiones. La primera (sombreado rosa) donde está presente la fase antiferromagnética (**AFM**), la segunda (sombreado azul-violeta) donde coexisten las fases antiferromagnética y superconductor (**AFM+SC**) y la tercera (sombreado azul claro) donde solamente se manifiesta la superconductividad (**SC**). Del diagrama de fase podemos identificar que la presión crítica es $p_c \approx 2,30$ GPa y la presión donde es máxima la superconductividad es $p_c^* \approx 2,60$ GPa. El pequeño domo señalado con “QCP” se refiere a la región donde está ubicado el punto

crítico cuántico que está en las cercanías de p_c^* .

4.2.1. Propiedades Superconductoras del CeIrSi₃

Los datos presentados en la figura 4.6 (a)-(h) fueron limitados a la región superconductor y convertidos a penetración magnética tal y como se muestra en la figura 4.12. Explícitamente, la normalización se realizó utilizando la expresión:

$$\frac{\Delta f(T)}{f(T_c) - f(0)} = \frac{\Delta \lambda(T)}{\lambda(T_c) - \lambda(0)} = \frac{\Delta \lambda(T)}{\Delta \lambda_0}. \quad (4.1)$$

Aquí, $f(T_c)$ es la frecuencia a T_c y $f(0)$ es la frecuencia a $T = 0$. Dado que no es posible alcanzar $T = 0$, experimentalmente lo que se obtiene es una temperatura mínima T_{min} . La frecuencia a T_{min} puede extrapolarse a $T = 0$ dependiendo del comportamiento a bajas temperaturas de la medida. Si el comportamiento es exponencial, podemos extrapolar que $f(0) = f(T_{min})$, dado que para T_{min} no hay cambios en la respuesta en temperatura y permanece igual hasta $T = 0$. Por otro lado, si el comportamiento obtenido es lineal, se realiza una extrapolación de la frecuencia hasta $T = 0$. Recordando que $\Delta f(T) = G\Delta \lambda(T)$, en la ecuación 4.1 la constante de proporcionalidad G es anulada en el cociente, por lo que normalización $\Delta \lambda(T)/\Delta \lambda_0$ no depende del factor G . La ecuación 4.1 representa la variación de la longitud de penetración magnética respecto al cambio total penetración magnética entre T_c y $T = 0$. Con el fin de comparar todas la medidas en presión bajo el mismo criterio de temperatura, en la Figura 4.12, se utilizó una escala de temperatura normalizada a T_c .

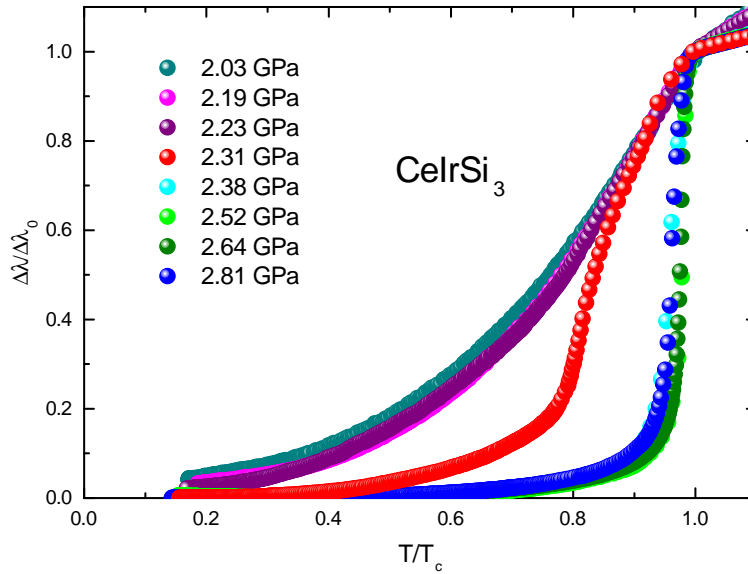


Figura 4.12: Longitud de penetración magnética del CeIrSi_3 para diferentes presiones.

De Figura 4.12, se observa claramente que a medida que aumenta la presión la transición se vuelve más aguda, señalando de forma mas clara el efecto de la transición antiferromagnética dentro de la caída diamagnética a 2.32 GPa.

El comportamiento a bajas temperaturas de la longitud penetración magnética es mostrado en las Figuras 4.13 y 4.14. Para las presiones menores a $p_c = 2,30$ GPa (Figura 4.13) la penetración magnética presenta un comportamiento lineal en su región de bajas temperaturas, lo indica la presencia de líneas de nodos en la brecha de energía, que es un comportamiento de superconductividad *no convencional*. Por otro lado, para las presiones mayores a p_c el comportamiento de la penetración magnética es exponencial, indicando que la brecha de energía es isotrópica. Este comportamiento en general sólo ocurre en superconductividad *convencional*. Para el caso particular de las presiones 2.38 GPa y 2.52 GPa se sustrae el aumento en la penetración magnética causado por

el antiferromagnetismo, revelando que el comportamiento de la penetración magnética sigue siendo exponencial (cuadro interno de la Figura 4.14). Para la presión de 2.31 GPa, donde el antiferromagnetismo está presente en medio de la caída diamagnética, el comportamiento a bajas temperaturas muestra una brecha de energía isotrópica (comportamiento exponencial). Por otro lado, el comportamiento isotrópico de la brecha de energía a presiones mayores a 2.30 GPa difiere de la interpretación de las medidas de ^{29}Si NMR a 2.7-2.8 GPa, las cuales sugieren posibles líneas de nodos [63].

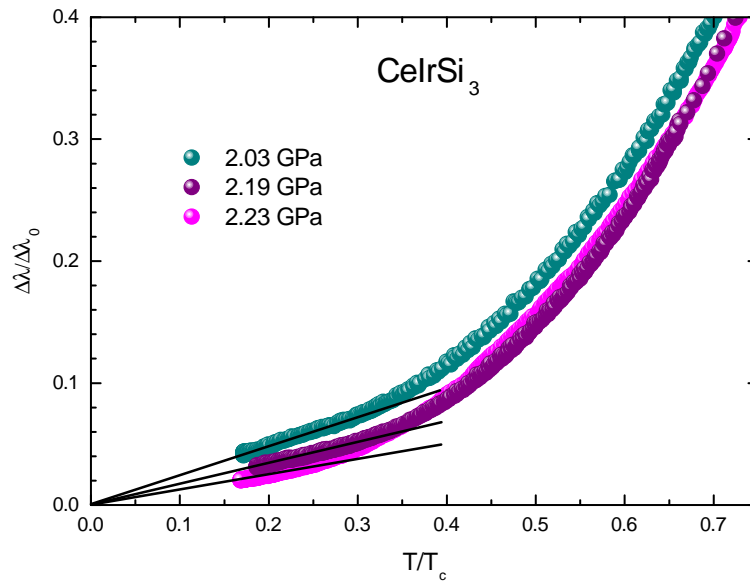


Figura 4.13: Región de bajas temperaturas de la longitud de penetración magnética del CeIrSi_3 para presiones $p < p_c$.

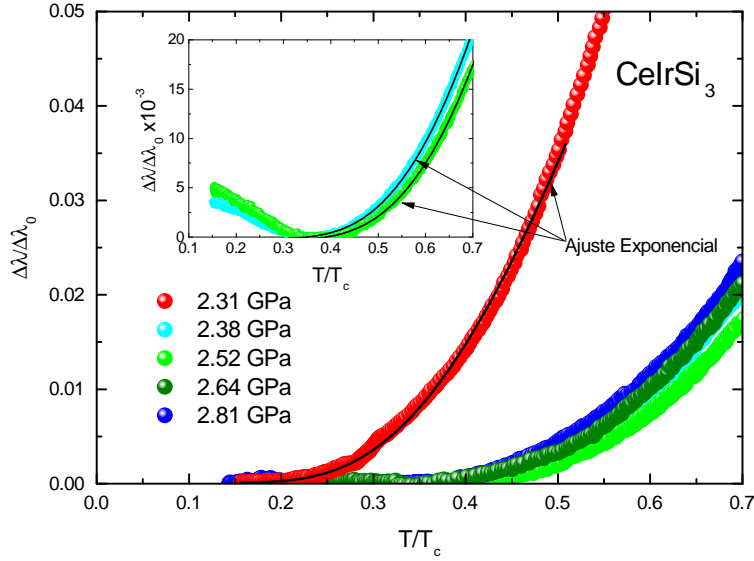


Figura 4.14: Región de bajas temperaturas de la longitud de penetración magnética del CeIrSi_3 para presiones $p > p_c$

Los resultados reflejan que para presiones menores a $p_c = 2,30$ el CeIrSi_3 posee un comportamiento de superconductividad *no convencional* (líneas de nodos) y para presiones mayores a p_c no hay signos de superconductividad no convencional, dado su comportamiento isotrópico de la brecha de energía que generalmente es asociado a un comportamiento *convencional* de la superconductividad. Si observamos las pendientes de las medidas con respuesta lineal en la Figura 4.13 se aprecia que a medida que la presión se va a aproximando a p_c las pendientes van disminuyendo y en algún punto alrededor de p_c , el comportamiento cambia de lineal a exponencial. Esta evolución del comportamiento de líneas de nodos a brecha de energía isotrópica tiene su punto álgido en p_c y no en p_c^* (punto crítico cuántico).

La presión crítica p_c tiene un valor distintamente menor a p_c^* y sorprendentemente no se observan cambios cualitativos en la dependencia en temperatura de la penetración magnética alrededor del punto crítico cuántico (p_c^*). Sin embargo, varias características

de la superconductividad se vuelven óptimas en las cercanías del punto crítico cuántico. Por ejemplo; estudios previos en presión para el CeIrSi_3 revelan que tanto el campo H_{c2} y el tamaño del brinco en la capacidad calorífica se vuelven máximos a 2.58 GPa [60] (presión muy cercana a $p_c^* = 2,60$ GPa). Esto se observa claramente en la Figura 4.15. Por otro lado, si analizamos el ancho de la caída diamagnética $T_c - T_{MA}$ (Figura 4.16), donde T_{MA} es la temperatura a la mitad de altura de la caída diamagnética, observamos que alrededor de p_c^* , la transición es menos ancha, consistente con la temperatura crítica máxima observada en el diagrama de fase (Figura 4.11).

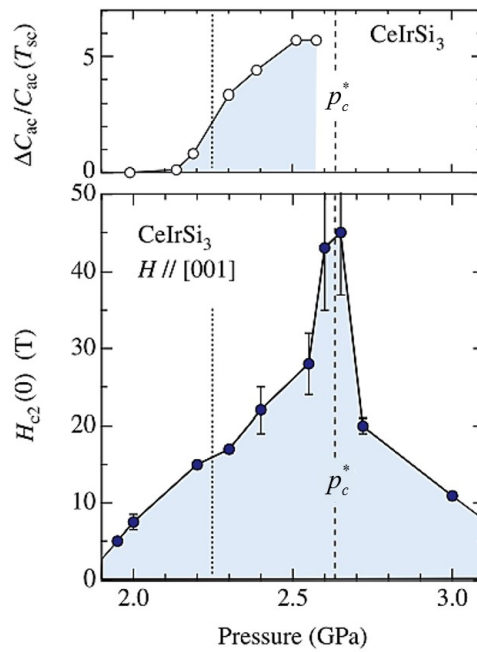


Figura 4.15: Comportamiento de la magnitud brinco de capacidad calorífica y campo crítico $H_{c2}(0)$ del CeIrSi_3 en presión. Las propiedades superconductoras del campo crítico y el brinco en la capacidad calorífica se hacen máximas en las cercanías de p_c^* (imagen tomada de Ref. [60])

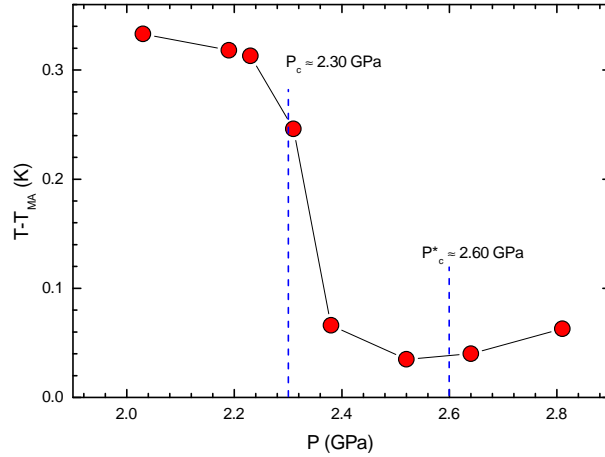


Figura 4.16: Comportamiento del ancho de la transición superconductora en presión

Un parámetro importante en la superconductividad es el valor de la brecha de energía Δ_0 a $T = 0$. Estos valores los podemos obtener del ajuste exponencial realizado para presiones mayores a p_c , donde la expresión para el ajuste es la siguiente

$$\Delta\lambda(T) \propto \sqrt{\frac{\pi\Delta_0}{2K_B T}} \exp(-\Delta_0/K_B T). \quad (4.2)$$

Los valores la brecha de energía obtenidos del ajuste se muestran en la Figura 4.17. En general, los valores de $\Delta_0/k_B T_c$ obtenidos son bastante mayores que los valores típicos de superconductores BCS o de acoplamiento débil, es decir, son de acoplamiento fuerte. También se observa que el valor máximo de la brecha de energía se encuentra en presiones un poco menores pero cercanas a p_{c^*} .

El comportamiento de las propiedades superconductoras (T_c , $H_{c2}(0)$, $\Delta C_p/C_p$, Δ_0 y ancho de la transición) reflejan que en la vecindad del punto crítico cuántico se vuelven óptimas y los valores que presentan están muy alejados de las posibilidades predictivas

de una interacción electrón-fonón que caracteriza la teoría BCS.

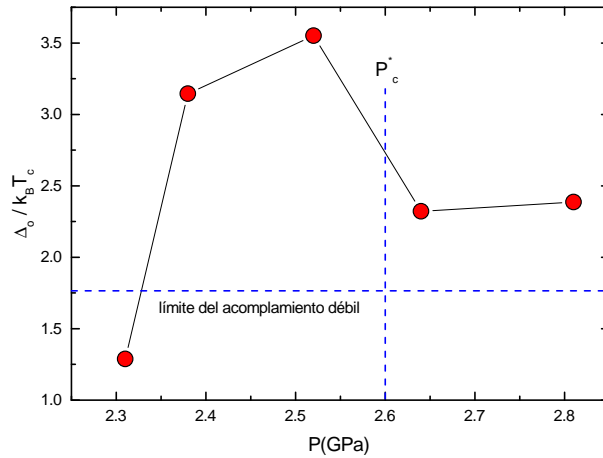


Figura 4.17: Evolución del valor de la brecha de energía en presión. Valores $\Delta_0/k_B T_c$ obtenidos del ajuste exponencial para diferentes presiones

4.3. CeRhSi₃

La Figura 4.18 (a)-(i) muestra las medidas de longitud de penetración magnética y el efecto piel representadas en f (kHz) a diferentes presiones. El efecto piel muestra los cambios de pendientes asociados a la transición antiferromagnética señalados con T_N en la Figura 4.18 (a)-(g). La marca T_c muestra el inicio de la caída diamagnética de la fase superconductor. Contrario a las observaciones en el CeIrSi₃ no hay evidencia de la fase antiferromagnética por debajo de T_c en el CeRhSi₃.

CeRhSi₃

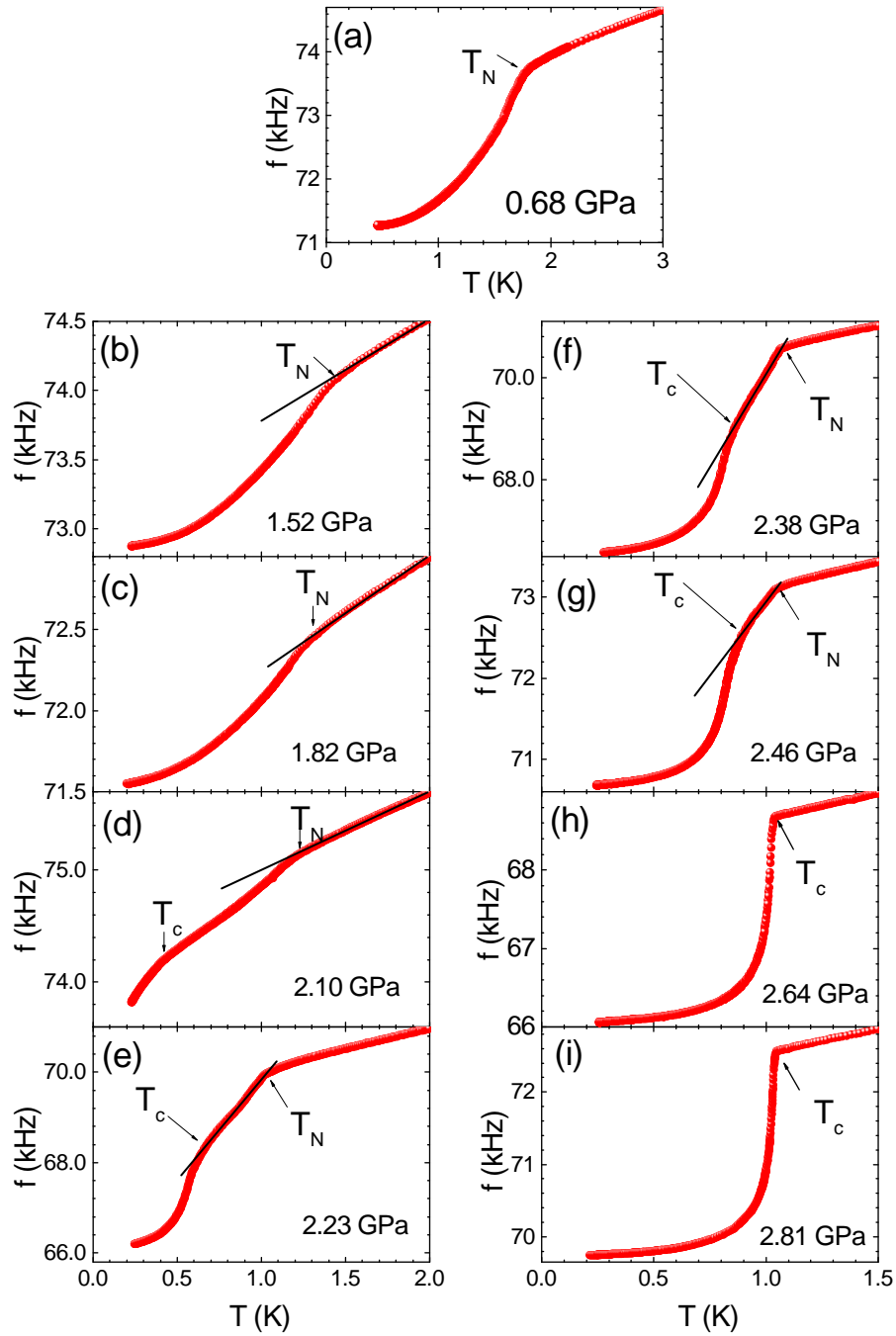


Figura 4.18: Longitud de penetración magnética y efecto piel del CeRhSi₃ para diferentes presiones. Medidas de efecto piel y penetración magnética representadas en cambio de frecuencia. Donde T_c marca el inicio de la transición superconductor y T_N esta asociado a la transición antiferromagnética. Las medidas no muestran signos de antiferromagnetismo por debajo de T_c

Utilizando los valores de T_N y T_c reportados tanto en estudios previos con medidas de resistividad eléctrica y capacidad calorífica [72, 73] y los valores obtenidos en éste estudio se construyó el diagrama de fase mostrado en la Figura 4.19.

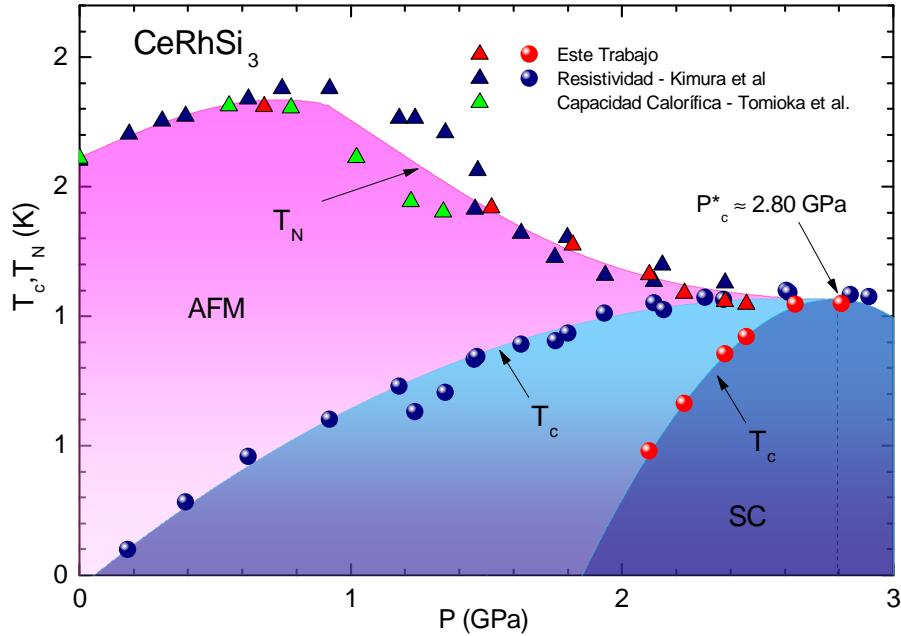


Figura 4.19: Diagrama de fase T (K) vs P (GPa) para el CeRhSi_3 . Los triángulos representan temperaturas de Néel T_N y las esferas temperaturas críticas superconductoras T_c . El antiferromagnetismo tiende asintóticamente a la fase superconductora, y se unen a una presión $p_c^* \approx 2,80$ GPa donde T_c se hace máxima.

Del diagrama de fase del CeRhSi_3 (Figura 4.19) se observa que T_N se comporta notablemente diferente a lo observado en el CeIrSi_3 . La fase antiferromagnética permanece alejada de la fase superconductora y la tendencia de T_N pareciera converger con T_c a una presión $p_c^* \approx 2,80$ GPa. En nuestras medidas no pudimos detectar antiferromagnetismo a presiones por encima de 2.6 GPa, lo que lleva a una clara y sorprendente conclusión: *el CeRhSi_3 no tiene un verdadero punto crítico cuántico*. Este resultado contrasta con estudios realizados en espectroscopia de rotación de espín de muón, en el

cual se detecta un campo magnético interno en el CeRhSi_3 que desaparece en a bajas temperaturas [70]. Este campo magnético interno fue asociado al antiferromagnetismo e interpretado como evidencia de un punto crítico cuántico en el CeRhSi_3 . Por otro lado, estudios en resistividad con campos magnéticos intensos muestran que el antiferromagnetismo puede estar escondido dentro del estado superconductor a cero campo magnético y a 2.61 GPa [74]. Este estudio es mostrado en la Figura 4.20 donde a una presión de 2.61 GPa (Figura 4.20) (b) la fase antiferromagnética reaparece cuando se aplica un campo magnético mayor a 4 T, permaneciendo el antiferromagnetismo en una escala de energía mayor a la de la superconductividad ($T_N > T_c$). El comportamiento de T_N en campo magnético sugiere que de alguna manera el antiferromagnetismo está escondido dentro del estado superconductor.

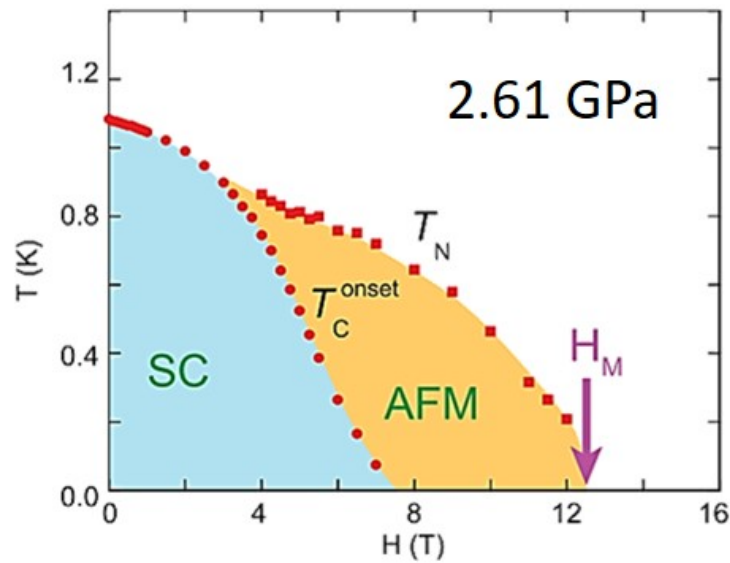


Figura 4.20: Diagrama de fase temperatura- campo magnético del CeRhSi_3 a 2.61 GPa. Diagrama de fase T (K) vs H (T) a 2.61 GPa muestra que el antiferromagnetismo puede estar escondido dentro de la fase superconductora (imagen tomada de Ref. [74])

El comportamiento observado de T_c parece no estar muy acorde con los valores

previamente reportados, a diferencia del comportamiento de T_N , cuyos valores son altamente consistentes con los reportados previamente. La inconsistencia en el comportamiento de T_c podría estar asociado a una superconductividad superficial detectada por resistividad a bajas presiones, esto ya ha sido sugerido y detectado para el CeIrSi₃ [75]. Sin embargo, medidas recientes de calor específico para el CeRhSi₃ no muestran signos de superconductividad a presiones menores de 1.8 GPa [76], lo cual es consistente con las medidas de penetración magnética de éste trabajo.

4.3.1. Propiedades superconductoras del CeRhSi₃

Limitando los datos mostrados en la figura 4.18 a la región superconductora y realizando el mismo procedimiento de normalización de datos que hizo en el CeIrSi₃, obtenemos el comportamiento de $\Delta\lambda/\Delta\lambda_0$ vs T/T_c , mostrando en la Figura 4.21.

El comportamiento de $\Delta\lambda/\Delta\lambda_0$ a bajas temperaturas (recuadro interior de la Figura 4.21) es lineal para todas las presiones y se observa que la pendiente disminuye a medida que la presión tiende a p_c^* . Además, el ancho de la transición (Figura 4.22) es cada vez menor a medida que la presión se aproxima a p_c^* , indicando que la superconductividad es óptima alrededor de esa presión. Este resultado es consistente con el hecho de que el comportamiento no convencional (líneas de nodos) solo existe cuando $T_N > T_c$.

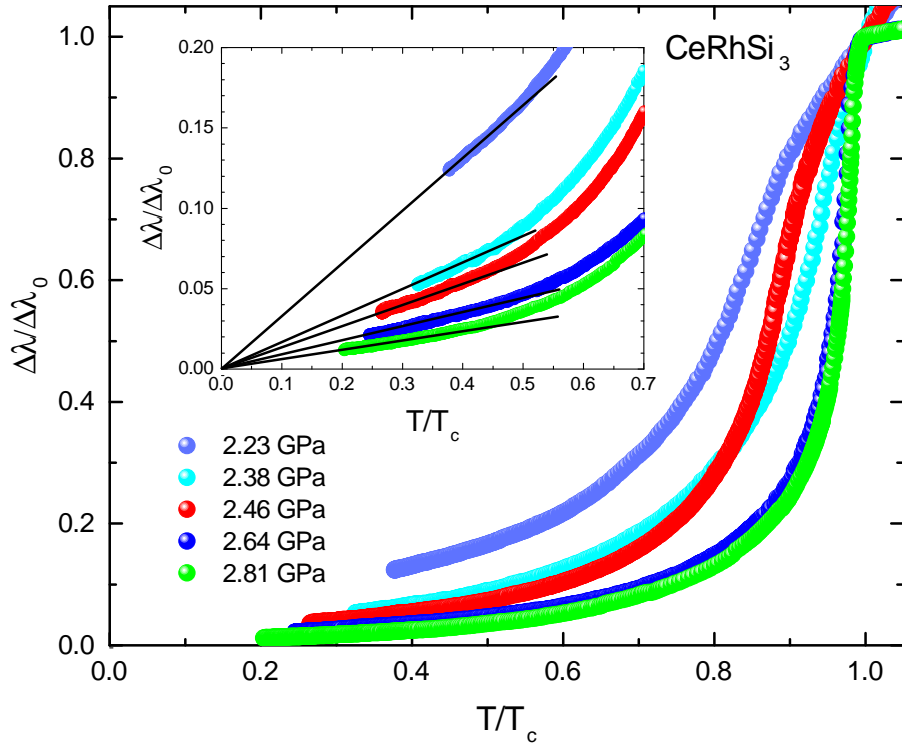


Figura 4.21: Logintud de penetración magnética para el CeRhSi_3 bajo efecto de presión hidrostática.

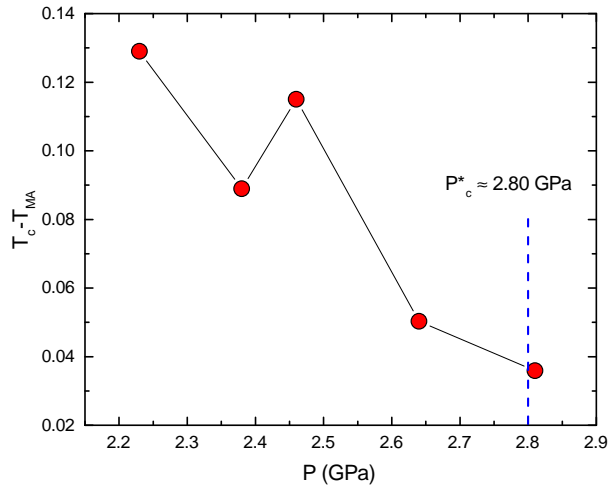


Figura 4.22: Comportamiento del ancho de la transición superconductora $T_c - T_{MA}$ del CeRhSi_3 en función de la presión.

4.4. Conclusiones

Los resultados muestran que tanto en el CeIrSi₃ y el CeRhSi₃ el comportamiento no convencional de la superconductividad sólo aparece en regiones donde $T_N > T_c$, es decir, cuando la escala de la energía magnética es mayor que la de superconductividad. Podemos decir que la evolución de líneas de nodos a brecha de energía isotrópica en p_c para el CeIrSi₃ y la existencia de líneas de nodos en la ausencia de punto crítico cuántico en el CeRhSi₃, proveen la primera evidencia experimental de que la no convencionalidad en estos compuestos no está relacionada con la presencia de un punto crítico cuántico magnético, si no mas bien esta relacionada con la presencia del orden antiferromagnético a una escala de energía mayor que la superconductividad. Tomando en cuenta que en el CeIrSi₃ y en el CeRhSi₃, las fluctuaciones cuánticas de espín puede que sean dominantes en la física alrededor del punto crítico cuántico (al menos en el CeIrSi₃), nuestros resultados sugieren que las fluctuaciones magnéticas no conllevan al comportamiento no convencional en estos materiales, como es ampliamente planteado en la literatura [8, 9].

Las implicaciones de este trabajo se pueden extender a otros sistemas electrónicos fuertemente correlacionados donde la superconductividad y el magnetismo coinciden, específicamente otros sistemas de fermiones pesados. Dentro de este último grupo están los materiales no centrosimétricos de la familia $CeTX_3$ (T : metal de transición; X :Si,Ge), CePd₂Si₂, algunos miembros de la serie $Ce_nM_nIn_{3n+2m}$ (CeIn₃, Ce₂RhIn₈, y CeMIn₅), y UCoGe de electrones $5f$ (mayor detalle en el artículo de revisión de Pleinleder para familias de fermiones pesado [8]). Otro compuesto relevante es el fermión pesado no centrosimétrico CePt₃Si, que posee coexistencia de superconductividad y an-

tiferromagnetismo desde presión atmosférica hasta 0.6 GPa, donde el antiferromagnetismo desaparece a $T = 0$. Este material posee líneas de nodos en la brecha superconductora a presión atmosférica [18]. Sorprendentemente, otros estudios de la estructura de la brecha de energía con dependencia de un parámetro de sintonización (presión, sustitución química, etc) no mostraron variación ni en la vecindad del punto crítico ni en los alrededores del máximo T_c , como es el caso de los pnictides de hierro y CrAs, entre otros [20–24]. La diferencia con respecto al CeIrSi₃ puede estar asociado a la hibridación colectiva entre los electrones de conducción y los electrones $4f$ en los sistemas de fermiones pesados. Esta hibridación conlleva a la existencia cuasipartículas pesadas de donde se desarrolla el orden magnético. Por otro lado, en el CrAs y los pnictides de hierro el orden magnético proviene de simples electrones d .

Dado que es el orden antiferromagnético y no el punto crítico cuántico el que afecta la estructura de la brecha de energía, es probable que los nodos de en la brecha de energía sean de carácter accidental, ya que la influencia del antiferromagnetismo se debilita a medida que aumenta la presión. Además, las fluctuaciones de espín en antiferromagnetismo conllevan a líneas de nodos impuestas por simetría, que serían robustas bajo la aplicación de parámetros externos tales como dispersión por impurezas, sustitución química o presión, que no se observó en los experimentos.

El orden antiferromagnético puede o no combinarse con los estados mixtos de singlete y triplete originados por la presencia de un acoplamiento espín órbita antisimétrico, originando la respuesta no convencional observada en estos superconductores no centrosimétricos, como ha sido sugerido teóricamente en la literatura [77, 78]. Sin embargo, en estos análisis teóricos se asume un orden antiferromagnético estático en ausencia de fluctuaciones cuánticas de espín. Las observaciones experimentales muestra que para

ambos compuestos los electrones f poseen un carácter itinerante y el antiferromagnetismo se caracteriza por ser de ondas de densidad de espín, en el cual es bastante probable que existan fluctuaciones cuánticas de espín. Para esclarecer la simetría del parámetro de orden, son necesarias futuras investigaciones teóricas relativas a estos materiales. .

En este trabajo de investigación, se realizaron estudios de la dependencia en temperatura de la longitud de penetración magnética para los compuestos CeIrSi_3 y CeRhSi_3 bajo la acción de presión hidrostática. En el CeIrSi_3 se encontró una evolución de líneas de nodos a brecha isotrópica a una presión distintiva mente menor al punto crítico cuántico. En el CeRhSi_3 no se observó un punto crítico cuántico y se detectaron líneas de nodos en todo el rango de presiones estudiadas. Estos resultados, proveen la primera evidencia que el comportamiento no convencional de los fermiones pesados CeIrSi_3 y CeRhSi_3 está más asociado al orden antiferromagnético que a las fluctuaciones cuánticas de espín del punto crítico cuántico. Las conclusiones de este trabajo deberían ser de un valor significativo para la comprensión de la dinámica que existen entre el magnetismo y la superconductividad en fermiones pesados similares y de otros sistemas electrónicos fuertemente correlacionados que posean un diagrama de fases similar.

Lista de Trabajos y Publicaciones

En esta sección se listan los trabajos y publicaciones realizados durante la realización de la tesis doctoral en el laboratorio de temperaturas bajas del IVIC.

Publicaciones:

- **J. F. Landaeta**, D. Catalá, D. Subero, S. V. Taylor, N. Kimura, R. Settai, Y. Ōnuki, M. Sigrist and I. Bonalde, *Superconductivity and quantum criticality in heavy-fermion CeIrSi₃ and CeRhSi₃*. **Enviado a Nature Physics**. arXiv:1702.06812v2.
- **J. F. Landaeta**, D. Subero, P. Machado, F. Honda and I. Bonalde, *Point-node gap and pressure-induced antiferromagnetic order in noncentrosymmetric superconductor LaNiC₂: A single-crystal study*. **En preparación**
- **J. F. Landaeta**, S. V. Taylor, I. Bonalde, C. Rojas, Y. Nishikubo, K. Kudo, and M. Nohara, *High-resolution magnetic penetration depth and inhomogeneities in locally noncentrosymmetric SrPtAs*, Phys. Rev. B 93, 064504 (2016).
- **S. V. Taylor**, **J. F. Landaeta**, D. Subero, P. Machado, E. Bauer and I. Bonalde, *Evidence of s-wave superconductivity in ternary intermetallic La₃Pd₄Si₄*, Supercond. Sci. Technol. 28 (2015) 095013.

Bibliografía

- [1] Van Delft, D. History and significance of the discovery of superconductivity by Kamerlingh Onnes in 1911. *Physica C* **479**, 30–35 (2012).
- [2] Bardeen, J., Cooper, L. N. & Schrieffer, J. R. Theory of Superconductivity. *Phys. Rev.* **108**, 1175–1204 (1957).
- [3] Bardeen, J., Cooper, L. N. & Schrieffer, J. R. Microscopic Theory of Superconductivity. *Phys. Rev.* **1**, 162–164 (1957).
- [4] Steglich, F. *et al.* Superconductivity in the Presence of Strong Pauli Paramagnetism: CeCu₂Si₂. *Phys. Rev. Lett.* **43**, 1892–1896 (1979).
- [5] Moriya, T. & Ueda, K. Spin fluctuations and high temperature superconductivity. *Adv. Phys.* **49**, 555–606 (2000).
- [6] Kuroki, K. Pairing symmetry competition in organic superconductors. *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 051013 (2006).
- [7] Abrahams, E. & Si, Q. Quantum criticality in the iron pnictides and chalcogenides. *J. Phys.* **23**, 223201 (2011).
- [8] Pfleiderer, C. Superconducting phases of f-electron compounds. *Rev. Mod. Phys.* **81**, 1551–1624 (2009).
- [9] White, B. D., Thompson, J. D. & Maple, M. B. Unconventional superconductivity in heavy-fermion compounds. *Physica C*: **514**, 246–278 (2015).
- [10] Jensen, P. *Structural investigation of La_(2-x)Sr_(x)CuO_(4+y) - Following staging as a function of temperature.* Ph.D. thesis, Niels Bohr Institute, Faculty of Science, University of Copenhagen (2015).
- [11] Keimer, B., Kivelson, S. A., Norman, M. R., Uchida, S. & Zaanen, J. From quantum matter to high-temperature superconductivity in copper oxides. *Nature* **518**, 179–86 (2015).

- [12] Park, T. & Thompson, J. D. Magnetism and superconductivity in strongly correlated CeRhIn5. *New J. Phys.* **11**, 055062 (2009).
- [13] Wang, M. *et al.* Doping dependence of spin excitations and its correlations with high-temperature superconductivity in iron pnictides. *Nat. Commun.* **4**, 2874 (2013).
- [14] Gegenwart, P., Si, Q. & Steglich, F. Quantum criticality in heavy-fermion metals. *Nature Phys.* **4**, 186–197 (2008).
- [15] Si, Q. & Paschen, S. Quantum phase transitions in heavy fermion metals and Kondo insulators. *Phys. Status Solidi B* **250**, 425–438 (2013).
- [16] Si, Q. & Steglich, F. Heavy Fermions and Quantum Phase Transitions. *Science* **1161**, 1161–1167 (2014).
- [17] Wirth, S. & Steglich, F. Exploring heavy fermions from macroscopic to microscopic length. *Nat. Mater.* **1**, 1–16 (2016).
- [18] Kimura, N. & Bonalde, I. Non-centrosymmetric Heavy-Fermion Superconductors. In Bauer, E. & Sigrist, M. (eds.) *Non-Centrosymmetric Superconductors : Introduction and Overview*, vol. 847, chap. 2, 35–79 (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2012).
- [19] Sigrist, M. & Ueda, K. Phenomenological theory of unconventional superconductivity. *Rev. Mod. Phys.* **63**, 239–311 (1991).
- [20] Khasanov, R. *et al.* Pressure-induced electronic phase separation of magnetism and superconductivity in CrAs. *Sci. Rep.* **5**, 13788 (2015).
- [21] Cho, K. *et al.* Energy gap evolution across the superconductivity dome in single crystals of $(\text{Ba}_{1-x}\text{K}_x)\text{Fe}_2\text{As}_2$. *Sci. Adv.* **2**, e1600807 (2016).
- [22] Hardy, F. *et al.* Doping evolution of superconducting gaps and electronic densities of states in $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$ iron pnictides. *EPL* **91**, 47008 (2010).
- [23] Gordon, R. T. *et al.* Doping evolution of the absolute value of the London penetration depth and superfluid density in single crystals of $\text{Ba}(\text{Fe}_{1-x}\text{Co}_x)_2\text{As}_2$. *Phys. Rev. B* **82**, 054507 (2010).
- [24] Hashimoto, K. *et al.* A Sharp Peak of the Zero-Temperature Penetration Depth at Optimal Composition in $\text{BaFe}_2(\text{As}_{1-x}\text{P}_x)_2$. *Science* **336**, 1554 (2012).
- [25] Stockert, O. *et al.* Nature of the A phase in CeCu_2Si_2 . *Phys. Rev. Lett.* **92**, 136401 (2004).

- [26] Kernavanois, N. *et al.* Neutron diffraction study under pressure of the heavy-fermion compound CePd 2Si 2. *Phys. Rev. B* **71**, 064404 (2005).
- [27] Mineev, V. P. & Samokhin, K. V. *Introduction to Unconventional Superconductivity* (Science Publisher, 1999).
- [28] Sigrist, M. *Introduction to Unconventional Superconductivity* (2007).
- [29] Sigrist, M. *Introduction to unconventional superconductivity in non-centrosymmetric metals* (2009).
- [30] Andres, K. & Graebner, J. E. *4f-Virtual-Bound-State Formation in CeAl₃ at Low Temperatures.* *Phys. Rev. Lett.* **35**, 1779–1782 (1975).
- [31] Coleman, P. Heavy Fermions: electrons at the edge of magnetism. *arXiv* **1**, 1–97 (2006).
- [32] Doniach, S. The Kondo lattice and weak antiferromagnetism. *Physica B* **91**, 231–234 (1977).
- [33] Bonalde, I. *et al.* Evidence for conventional superconducting behavior in noncentrosymmetric Mo₃Al₂C. *Phys. Rev. B* **84**, 134506 (2011).
- [34] Gross, F. *et al.* Anomalous temperature dependence of the magnetic field penetration depth in superconducting UBe13. *Z. Phys. B* **64**, 175–188 (1986).
- [35] Brämer-Escamilla, W. *Estudio del parámetro de orden en el superconductor no centrosimétrico CePt₃Si usando la longitud de penetración magnética.* Ph.D. thesis, Instituto Venezolano de Investigaciones Científicas (2007).
- [36] Landaeta, J. F. *et al.* Superconductivity and quantum criticality in heavy fermions CeIrSi₃ and CeRhSi₃. *arXiv* 1702.06812 (2017).
- [37] Prozorov, R. & Giannetta, R. W. Magnetic Penetration Depth in Unconventional Superconductors. *Supercond. Sci. Technol.* **19**, R41–R67 (2006).
- [38] Bonalde, I., Ribeiro, R. L., Syu, K. J., Sung, H. H. & Lee, W. H. Nodal gap structure in the noncentrosymmetric superconductor LaNiC₂ from magnetic-penetration-depth measurements. *New J. Phys.* **13**, 123022 (2011).
- [39] Van Degrift, C. T. Tunnel diode oscillator for 0.001 ppm measurements at low temperatures. *Rev. Sci. Instrum* **46**, 599–607 (1975).
- [40] Uwatoko, Y. *et al.* Design of 4GPa class hybrid high pressure cell for dilution refrigerator. *Physica B* **329-333**, 1658–1659 (2003).

- [41] Wang, X. & Kamenev, K. V. Review of modern instrumentation for magnetic measurements at high pressure and low temperature. *Low. Temp. Phys* **40**, 735–746 (2014).
- [42] Ragan, D. D., Gustavsen, R. & Schiferl, D. Calibration of the ruby R1 and R2 fluorescence shifts as a function of temperature from 0 to 600 K. *J. Appl. Phys* **72**, 5539–5544 (1992).
- [43] Yamaoka, H. *et al.* Ruby pressure scale in a low-temperature diamond anvil cell. *J. Appl. Phys* **112**, 124503 (2012).
- [44] Jennings, L. D. & Swenson, C. A. Effects of pressure on the superconducting transition temperatures of Sn, In, Ta, Tl, and Hg. *Phys. Rev.* **112**, 31–43 (1958).
- [45] Brandt, N. B. & Ginzburg, N. I. Pressure Dependence of the Superconducting Transition Temperature in Zinc. *J. Exp. Theor. Phys.* **23**, 838–840 (1966).
- [46] Okuda, Y. *et al.* Magnetic and superconducting properties of LaIrSi₃ and CeIrSi₃ with the non-centrosymmetric crystal structure. *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 044708 (2007).
- [47] Sugitani, I. *et al.* Pressure-induced heavy-fermion superconductivity in antiferromagnet CeIrSi₃ without inversion symmetry. *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 043703 (2006).
- [48] Kimura, N. *et al.* Pressure-induced superconductivity in noncentrosymmetric heavy-fermion CeRhSi₃. *Phys. Rev. Lett.* **95**, 247004 (2005).
- [49] Tateiwa, N. *et al.* Strong-coupling superconductivity of CeIrSi₃ with the non-centrosymmetric crystal structure. *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 083706 (2007).
- [50] Settai, R. *et al.* Huge upper critical field and electronic instability in pressure-induced superconductor CeIrSi₃ without inversion symmetry in the crystal structure. *J. Phys. Soc. Jpn.* **77**, 073705 (2008).
- [51] Sugawara, T. *et al.* Anomalous behavior of the upper-critical-field in heavy-fermion superconductor CeRhSi₃. *J. Phys. Soc. Jpn.* **79**, 063701 (2010).
- [52] Aso, N. *et al.* Incommensurate magnetic order in the pressure-induced superconductor CeRhSi₃. *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 602–604 (2007).
- [53] Aso, N. *et al.* Neutron Diffraction in the Pressure-Induced Superconducting Antiferromagnet CeIrSi₃. *J. Phys.* **400**, 022003 (2012).
- [54] Ohkochi, T. *et al.* Observation of itinerant Ce 4f electronic states in CeIrSi₃ studied by angle-resolved Ce 3d → 4f resonance photoemission spectroscopy. *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 084802 (2009).

- [55] Terashima, T. *et al.* Fermi surface in LaRhSi₃ and CeRhSi₃. *Phys. Rev. B* **78**, 205107 (2008).
- [56] Ōnuki, Y. & Settai, R. Electronic States and Superconducting Properties of Non-centrosymmetric Rare Earth Compounds. In Bauer, E. & Sigrist, M. (eds.) *Non-Centrosymmetric Superconductors : Introduction and Overview*, vol. 847, chap. 3, 81–125 (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2012).
- [57] Terashima, T. *et al.* Fermi surface and superconductivity in noncentrosymmetric CeRhSi₃. *Phys. Rev. B* **76**, 054506 (2007).
- [58] Yamaoka, H. *et al.* Pressure and Temperature Dependences of the Electronic Structure of CeIrSi₃ Probed by Resonant X-ray Emission Spectroscopy. *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 124701 (2011).
- [59] Bauer, E. & Sigrist, M. *Non-Centrosymmetric Superconductors : Introduction and Overview*, vol. 847 of *Lecture Notes in Physics* (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2012).
- [60] Settai, R. *et al.* Field-induced antiferromagnetic state in non-centrosymmetric superconductor CeIrSi₃. *J. Phys. Soc. Jpn.* **80**, 094703 (2011).
- [61] Mukuda, H. *et al.* Spin susceptibility of noncentrosymmetric heavy-fermion superconductor CeIrSi₃ under pressure: ²⁹Si knight-shift study on single crystal. *Phys. Rev. Lett.* **104**, 017002 (2010).
- [62] Ribeiro, R. L., Bonalde, I., Haga, Y., Settai, R. & Onuki, Y. Magnetic penetration depth and gap symmetry of the noncentrosymmetric superconductors CePt₃Si and LaPt₃Si. *J. Phys. Soc. Jpn.* **78**, 115002 (2009).
- [63] Mukuda, H. *et al.* Enhancement of superconducting transition temperature due to the strong antiferromagnetic spin fluctuations in the noncentrosymmetric heavy-fermion superconductor CeIrSi₃: A ²⁹Si NMR study under pressure. *Phys. Rev. Lett.* **100**, 107003 (2008).
- [64] Lildiard, A. B. Antiferromagnetism. *Rep. Prog. Phys* **17**, 201–243 (1954).
- [65] Fawcett, E. Spin-density-wave antiferromagnetism in chromium. *Rev. Mod. Phys* **60**, 209–283 (1988).
- [66] Jacobs, T. *et al.* Microwave properties of borocarbide superconductors RNi₂B₂C (R=Y,Er,Tm,Ho). *Phys. Rev. B* **52**, R7022–R7025 (1995).
- [67] Chia, E. E. M. *et al.* Penetration depth measurements in HoNi₂B₂C: competition between superconducting and magnetic order. *J. Magn. Mater.* **226-230**, 301 (2001).

- [68] Chia, E. E. M. *et al.* Effect of magnetic order on the superfluid response of single-crystal ErNi₂B₂C: A penetration depth study. *Phys. Rev. B* **72**, 214505 (2005).
- [69] Park, T. *et al.* Hidden magnetism and quantum criticality in the heavy fermion superconductor CeRhIn₅. *Nature* **440**, 65–68 (2006).
- [70] Egetenmeyer, N. *et al.* Direct observation of the quantum critical point in heavy fermion CeRhSi₃. *Physical Review Letters* **108**, 177204 (2012).
- [71] Shen, Y. *et al.* Structural and magnetic phase diagram of CrAs and its relationship with pressure-induced superconductivity. *Phys. Rev. B* **93**, 060503 (2016).
- [72] Kimura, N., Ito, K., Aoki, H., Uji, S. & Terashima, T. Extremely high upper critical magnetic field of the noncentrosymmetric heavy fermion superconductor CeRhSi₃. *Phys. Rev. Lett.* **98**, 197001 (2007).
- [73] Tomioka, F. *et al.* Heat capacity of CeRhSi₃ under pressure. *J. Magn. Magn. Mater.* **310**, 340–342 (2007).
- [74] Iida, H., Sugawara, T., Aoki, H. & Kimura, N. Search for a quantum critical point in CeRhSi₃ via electrical resistivity. *Phys. Status Solidi B* **250**, 502–505 (2013).
- [75] Iida, H., Sato, M. & Kimura, N. Superconductivity Induced by Surface Polishing in CeIrSi₃. *J. Phys. Cond. Mat.* **85**, 073708 (2016).
- [76] Umehara, I. Private Communication (2016).
- [77] Fujimoto, S. Emergent nodal excitations due to coexistence of superconductivity and antiferromagnetism: Cases with and without inversion symmetry. *J. Phys. Soc. Jpn.* **75**, 083704 (2006).
- [78] Yanase, Y. & Sigrist, M. Magnetic properties in non-centrosymmetric superconductors with and without antiferromagnetic order. *J. Phys. Soc. Jpn.* **76**, 124709 (2007).