

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE FÍSICA

**EFEITOS DAS SUBSTITUIÇÕES QUÍMICAS NA  
IRREVERSIBILIDADE MAGNÉTICA E  
MAGNETOCONDUTIVIDADE DO SUPERCONDUTOR  
 $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ \***

Valdemar das Neves Vieira

Tese realizada sob a orientação do Dr. Jacob Schaf e apresentada ao Instituto de Física da UFRGS, em preenchimento parcial dos requisitos para a obtenção do título de Doutor em Ciências.

Porto Alegre  
Janeiro de 2004

---

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

**Este trabalho é dedicado:**

A minha esposa, Ana Cristina

Aos meus pais e minha irmã

À memória de meus avós,

João e Lídia Vieira

## **AGRADECIMENTOS**

Ao Prof. Dr. Jacob Schaf, pela sua orientação objetiva, sua atenção permanente e seu empenho pessoal na realização desse trabalho;

Ao Prof. Dr. Paulo Pureur pela sua ajuda constante e pelas inúmeras colaborações que certamente enriqueceram este trabalho.

Ao grande amigo Fábio Dias, não somente por me aturar no Lab mas também por fazer o sacrifício de dividir a mesma morada.

Aos colegas de Lab. Fred, Jairo, Fábio Rocha, Job, Letície, Claudia e Olinda.

Aos Técnicos de Lab. Leandro e Rodrigo.

Ao pessoal da criogênia, Peco e Luiz.

Ao pessoal da M204 e M202, Magno, Werner, Cristiano, Douglas, Cássio, Edu, Alberto, Marcos André e Fábio Barros.

A todos que de alguma forma contribuíram para a realização deste trabalho.

*"Não sei de que modo o mundo me vê; mas a mim mesmo pareço ter sido apenas um menino brincando na praia, entretendo-me com encontrar de quando em quando um seixo mais liso ou uma concha mais bela do que o ordinário enquanto todo o vasto oceano da verdade jazia inexplorado diante de mim."*

Sir Issac Newton (1727)

## RESUMO

O presente trabalho consiste da realização de um estudo experimental sobre os efeitos das substituições químicas na irreversibilidade magnética e na magnetocondutividade do supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Para tanto, o comportamento da linha de irreversibilidade magnética (LIM) bem como dos regimes de flutuações na magnetocondutividade foram pesquisados em amostras policristalinas e monocristalinas de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ) e  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{D}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{D} = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). Além de reduzir drasticamente o valor da temperatura crítica de transição,  $T_c$ , os dopantes introduzem um caráter granular nos monocristais. No monocristal puro, o comportamento da LIM é descrito pela lei de potências prevista pelo modelo de "flux creep" gigante para dinâmica de fluxo de Abrikosov convencional. Por outro lado, o comportamento da LIM para as amostras supercondutoras granulares apresenta características próprias bastante relevantes. Os dados do limite de irreversibilidade,  $T_{\text{irr}}(H)$  seguem a lei de potência ditada pelas teorias de "flux creep" somente em altos campos magnéticos. Na região de baixos campos magnéticos, dois diferentes regimes de dinâmica de fluxo surgem: Nos campos magnéticos mais baixos que 1 kOe, os dados de  $T_{\text{irr}}(H)$  seguem uma lei de potência do tipo de Almeida-Thouless (AT). Perto de 1 kOe, ocorre um "crossover" e em campos magnéticos intermediários passa a ter seu comportamento descrito por uma lei de potências do tipo Gabay-Toulouse (GT). A ocorrência de um comportamento AT-GT na LIM é a assinatura de um sistema frustrado onde a dinâmica de fluxo intergranular ou de Josephson é dominante. Na ausência de teorias específicas para este comportamento em baixos campos, descrevemos o comportamento da LIM de nossos supercondutores granulares, na região de baixo campo, em analogia aos sistemas vidros de spin. No entanto, o comportamento de  $T_{\text{irr}}(H)$  na região de altos campos, ocorre de acordo com a teoria de "flux creep" gigante. Particularmente, para valores acima de 20 kOe, a LIM nos monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  para  $H \parallel ab$ , exibe fortes propriedades direcionais para a orientação de  $H$  próximo aos planos de maclas (PMCs). Este comportamento é do tipo "cusp", similar ao observado em supercondutores com defeitos colunares, o qual caracteriza uma fase vidro de Bose. Por outro lado, a magnetoresistividade elétrica revela que a transição resistiva dos supercondutores granulares ocorre em duas etapas. Quando a temperatura é decrescida, inicialmente ocorre a transição de pareamento no interior dos grãos. Em temperaturas inferiores, na proximidade do estado de resistência nula, ocorre a transição de coerência, observada pela primeira vez num monocristal. Na transição de coerência, o parâmetro de ordem adquire ordem de longo alcance. Na região de temperaturas imediatamente acima de  $T_c$ , nossos resultados de flutuações na magnetocondutividade revelam a ocorrência de regimes críticos e Gaussianos. Abaixo de  $T_c$ , na região paracoerente, que antecede à transição de coerência, observaram-se regimes críticos cujo expoente é consistente com o esperado para o modelo 3D-XY com desordem relevante e dinâmica do tipo vidro de spin.

## Abstract

In this work we present an experimental study of the effects of the chemical substitutions on the magnetic irreversibility and magnetoconductivity of the  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  superconductor. The behavior of the magnetic irreversibility line (IL) as well as the fluctuation regimes of the magnetoconductivity were studied in the  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ) and  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{D}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{D} = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ) single-crystals and ceramic samples. Addition of the impurity elements was verified to depress superconducting transition temperature,  $T_c$  and to introduce a granular character in the single-crystals. In the pure  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  single crystal, a power law that is according to giant flux creep model fits the irreversibility data. It means, that the flux dynamics in this sample is wholly conventional like. Very differently, however, the IL of the granular superconductors exhibits, in addition to the flux creep regime, two regimes characteristic of the Josephson flux dynamics. In fields lower than 1 kOe, the irreversibility limit,  $T_{\text{irr}}(H)$ , data of the doped samples, with a granular superconducting character display the de Almeida-Thouless (AT) like power law behavior. Above this field range they follow a Gabay-Toulouse (GT) like power law. The AT and GT regimes are the signature of a frustrated superconductor. Due to the absence of a superconducting theoretic model concerning the AT-GT behavior of our granular samples we try to understand it in terms of the entirely analogues IL of the spin glass systems. In the high field region, the  $T_{\text{irr}}(H)$  data of the granular samples follow, like the pure single crystal, the power law from the giant flux creep theory. On the other hand, for  $H \geq 20$  kOe along the ab plane, the IL of  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  single-crystals displays sharp directional properties along the twinning planes (TP's) for rotations about the c axis. This behavior is cusp-like about the TP's, similarly as that caused by columnar defects characterizing a Bose glass phase. Our magnetoconductivity results reveal that the resistive transition of the granular superconducting samples is a two-step process. When the temperature decreases, first the pairing transition sets in superconductivity within the grains. At lower temperatures and near to the zero resistance state, there occurs the coherence transition, observed by the first time in a single-crystal, where the phase of the order-parameter in individual grains becomes long-range ordered. In the normal phase, magnetoconductivity shows critical and Gaussian fluctuation regimes. In the paracoherent phase above the coherence transition a critical fluctuations regime becomes evident. The critical exponent value is the one expected from the 3D-XY model with disorder and a spin-glass-like dynamics.

## Conteúdo:

<b>INTRODUÇÃO</b>	<b>1</b>
<b>1. Propriedades Gerais do Sistema <math>YBa_2Cu_3O_{7-\delta}</math></b>	<b>4</b>
1.1 Estrutura Cristalina	4
1.2 O Comportamento de $T_c$ : o Modelo de Transferência de Cargas	7
1.3 Anisotropia Planar	7
1.4 Comprimentos Característicos	8
1.5 Defeitos Estruturais	8
1.6 Junções Fracas ("weak-links")	9
<b>2. O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do <math>YBa_2Cu_3O_{7-\delta}</math></b>	<b>12</b>
2.1 O Sistema $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$	12
2.1.1 Propriedades Estruturais	12
2.1.2 O Comportamento de $T_c$	15
2.1.3 O Mecanismo de Depressão para $T_c$	17
2.2 O Sistema $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$	18
2.2.1 Propriedades Estruturais	18
2.2.2 O Comportamento de $T_c$	19
2.2.3 O Mecanismo de Depressão para $T_c$	20
2.3 O Sistema $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$	21
2.3.1 Propriedades Estruturais	21
2.3.2 O Comportamento de $T_c$	23
2.3.3 O Mecanismo de Depressão para $T_c$	24
<b>3. Irreversibilidades Magnéticas nos HTSC</b>	<b>26</b>
3.1 Conceitos Fundamentais	26
3.1.1 Diagrama de Fase $H-T$	26

3.1.2 Estrutura de um Vórtice	27
3.1.3 Rede de Vórtices de Abrikosov: Supercondutividade Intragranular	28
3.1.4 O "Flux Pinning"	29
3.1.5 Efeitos Dissipativos	30
3.2 Supercondutividade Intergranular: Vórtices de Josephson	32
3.2.1 Introdução	33
3.2.2 Vórtices de Josephson - Vórtices Intergranulares	34
3.3 A Linha de Irreversibilidade Magnética (LIM)	35
3.3.1 Introdução	35
3.3.2 Anisotropia Planar da LIM	36
3.3.3 Modelos Teóricos	38
3.3.3.1 "Flux Creep" Gigante	38
3.3.3.2 Fusão da Rede de Vórtices	40
3.3.3.3 Vidro Supercondutor	42
3.3.3.4 Vidro de Vórtices	44
3.3.3.5 Vidro de Bose	46
3.3.4 Efeitos Direcionais de "Pinning" Devido aos Planos de Maclas na LIM	48
<b>4. Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC</b>	<b>51</b>
4.1 A Teoria Fenomenológica de Ginzburg-Landau	51
4.2 Flutuações na Condutividade Elétrica na Região de $T > T_c$	54
4.2.1 A contribuição de Aslamazov-Larkin	55
4.2.2 O Modelo de Lawrence-Doniac (LD)	56
4.2.3 Flutuações em Sistemas Inomogêneos	57
4.2.4 As Flutuações Críticas	57
4.3 Flutuações na Magnetocondutividade Elétrica na Região $T > T_c$	58
4.4 Flutuações na Condutividade Elétrica na Região $T < T_c$	59
4.5 Flutuações na Magnetocondutividade Elétrica na Região $T < T_c$	61
<b>5. Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais</b>	<b>64</b>
5.1 - Amostras Monocristalinas	64
5.1.1 Técnicas de Crescimento - Técnica de Auto-Fluxo	64

5.1.2 Procedimentos Experimentais Utilizados no Cresc. de Monocristais	65
5.1.2.1 Preparação Estequiométrica dos Ingredientes e Maceração	65
5.1.2.2 Tratamento Térmico	66
5.1.2.3 Oxigenação	67
5.1.2.4 Caracterização dos Monocristais	69
5.1.2.4.1 Microscopia Ótica	69
5.1.2.4.2 Difratoograma de Raio X	71
5.2 Amostras Policristalinas	74
5.2.1 Produção de Amostras Policristalinas	74
5.2.2 Caracterização Estrutural (Análise de Raio -X)	75
5.2.3 O Processo de Desoxigenação	76
5.3 A Técnica de Magnetização DC	76
5.3.1 O Magnetômetro Squid	77
5.3.2 Montagem das Amostras	79
5.3.3 Procedimento de Medida	79
5.3.4 Problemas Experimentais Durante as Medidas de Magnetometria DC	80
5.4 A Técnica de Magnetoresistividade Elétrica	81
5.4.1 Implantação de Contatos Elétricos	81
5.4.2 O Resistômetro AC	82
5.4.2.1 Sistema Criogênico para Campos Magnéticos Baixos	83
5.4.3 A Sistemática de Medida	85
<b>6. Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)</b>	<b>86</b>
6.1 Identificação das Amostras	86
6.2 Caracterização de $T_c$	87
6.3 Obtenção de $T_{irr}(H)$ e da LIM	88
6.4 Resultados: Curvas de $M(T)$ , $T_{irr}(H)$ e LIM	89
6.4.1 Amostras Policristalinas	89
6.4.2 Amostras Monocristalinas	99
6.4.3 LIM em Função das Substituições Químicas	138
6.5 Análise dos Resultados	144
6.6 Discussão dos Resultados	149
6.6.1 A LIM como Limite de Irreversibilidade nas Dinâmicas do Fluxo de Josephson e de Abrikosov	149
6.6.2 O Efeito das Substituições Químicas na LIM	153

6.6.3 Observação de Efeitos Fortemente Direcionais do “Pinning” na LIM dos monocristais de $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .	154
<b>7. Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade</b>	<b>157</b>
7.1 Identificação das Amostras Estudadas em Magnetoresistividade	157
7.2 Transição Resistiva	158
7.3 Flutuações na Magnetocondutividade: Resultados Experimentais	163
7.3.1 Método de Análise	163
7.3.2 Flutuações na Fase Paracondutora ( $T > T_c$ )	173
7.3.2.1 Flutuações Gaussianas	173
7.3.2.1.1 Análise dos Resultados	173
7.3.2.1.2 Discussão dos Resultados	182
7.3.2.2 Flutuações Críticas	183
7.3.2.2.1 Análise dos Resultados	192
7.3.2.2.2 Discussão dos Resultados	192
7.3.3 Flutuações na Fase Paracoernte ( $T_{c0} < T < T_c$ )	194
7.3.3.1 Método de Análise	194
7.3.3.2 Análise dos Resultados	195
7.3.3.3 discussão dos Resultados	202
<b>Conclusões</b>	<b>204</b>
<b>Bibliografia</b>	<b>207</b>

## ***Introdução***

A dinâmica de fluxo magnético nos supercondutores de alta temperatura crítica (HTSC) é um dos fenômenos mais complexos mas também potencialmente mais informativos sobre estes materiais. Apesar de ser o item mais pesquisado, ainda muito pouco se conhece sobre ele. Dentro da dinâmica de fluxo destacamos a irreversibilidade magnética cujo limite de temperatura em função do campo aplicado caracteriza, ou perfila, os diversos mecanismos de "pinning" de acordo com a sua sensibilidade ao campo magnético e forma a chamada linha de irreversibilidade magnética (LIM).

Apesar de ser amplamente investigada desde o descobrimento dos HTSC, a origem do comportamento da LIM é ainda uma questão muito controversa. Dentro de pontos de vista teóricos diferentes ela tem recebido diversas interpretações. Encontramos esta diversidade desde a época dos primeiros resultados experimentais. Por exemplo, Müller<sup>[66]</sup> interpretou a LIM como uma assinatura de uma genuína transição de fase em um supercondutor granular inhomogêneo, desordenado e frustrado, ao passo que, Yeshurun<sup>[64]</sup> descreve a LIM como sendo um fenômeno de "flux creep" gigante, análogo àquele dos supercondutores homogêneos convencionais de baixa temperatura. Entretanto, a fenomenologia proposta pelo modelo de Yeshurun está em claro conflito com a transição resistiva em duas etapas, observada na maioria dos HTSC, fato esse que caracteriza esses materiais como sendo granulares e, portanto não como supercondutores homogêneos.

A supercondutividade granular nos HTSC não é resultado apenas da sua policristalinidade. Devido ao pequeno comprimento de coerência do parâmetro de ordem de Ginsburg-Landau,  $\psi_{GL}$  qualquer defeito na rede cristalina produz localmente uma forte depressão de  $\psi_{GL}$ . Se a densidade de defeitos for grande, isto pode conduzir a granularidade mesmo em amostras monocristalinas. Sendo assim, planos de maclas e deslocações podem facilmente separar um grão supercondutor em partes as quais se conectam apenas fracamente.

Então, poderíamos pensar que o comportamento magnético de um HTSC granular envolve sempre a coexistência de duas dinâmicas de vórtices: A intergranular (denominada de dinâmica de Josephson) e a intragranular (denominada de dinâmica de Abrikosov), cada uma com seus problemas específicos e ainda com termos de perturbação mútua. Contudo, sabe-se que em muitas circunstâncias, a dinâmica de fluxo é dominada por apenas uma ou outra.

O valor de campo crítico,  $H_{c1J}$  para a penetração dos fluxóides quantizados nos espaços situados entre os grãos é muito menor do que o  $H_{c1G}$  para a penetração dos fluxóides de Abrikosov no interior dos grãos. O movimento dos vórtices intergranulares ou de Josephson é restringido apenas por acoplamentos discretos e fracos existente entre grãos supercondutores. Estes acoplamentos podem ocorrer principalmente via junções Josephson ou por efeito de proximidade. Portanto, a energia de ativação dos vórtices intergranulares é significativamente menor do que a dos vórtices intragranulares. Por isso espera-se que nos supercondutores granulares a dinâmica de Josephson predomina na região de baixos campos magnéticos e que seja fortemente marcada pela frustração do sistema de grãos. Nesta região de baixo campo a dinâmica de vórtices de Abrikosov ou não existe ou ainda não foi ativada.

Elevando-se os valores do campo magnético ou da temperatura espera-se que a amplitude das flutuações da fase do  $\psi_{GL}$  dos grãos vizinhos se torne grande o suficiente para enfraquecer os acoplamentos, permitindo assim, que os vórtices se movam com facilidade entre os grãos supercondutores. Isto torna o sistema magneticamente reversível.

Em supercondutores granulares, a transição resistiva se apresenta como um processo que compreende duas etapas. Inicialmente ocorre uma transição de pareamento nas proximidades de  $T_c$ , a qual é seguida por uma transição de coerência nas proximidades da temperatura em que a resistividade se anula. O estudo da transição de coerência e sua caracterização como uma legítima transição de fase termodinâmica é um tema ainda em discussão.

Dentro deste ponto de vista, a realização de um estudo detalhado da irreversibilidade magnética e da transição resistiva de HTSC homogêneos e inhomogêneos (granulares) em função do campo aplicado seria de grande interesse uma vez que poderia caracterizar-se e delimitar-se a preponderância das dinâmicas de fluxo de Josephson ou de Abrikosov e a natureza da transição supercondutora em supercondutores granulares.

Motivados por estas possibilidades e com o objetivo de por à prova estas hipóteses, preparamos diversas amostras supercondutoras policristalinas e monocristalinas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ) e  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{M}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  ( $M = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). Com exceção dos monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  muito limpos, os quais podem ser tratados como supercondutores homogêneos, as demais amostras apresentam diferentes níveis de granularidade e portanto, estão aptas para o nosso objetivo.

Estudamos detalhadamente a irreversibilidade magnética nessas amostras utilizando medidas de magnetização DC em temperaturas que variam entre  $20 < T < 100$  K em campos magnéticos aplicados entre  $0.002 \leq H \leq 50$  kOe.

A transição resistiva das amostras policristalinas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  e  $\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  juntamente com as amostras monocristalinas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $\text{YBa}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  e  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{Zn}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  foi pesquisada a partir de medidas de resistividade elétrica AC realizadas em temperaturas que variam entre  $80 < T < 100$  K e em campos magnéticos aplicados entre  $0 \leq H \leq 0.6$  kOe. Os efeitos da granularidade na transição normal-supercondutora destas amostras foram investigados a partir da análise dos regimes de flutuações na magnetocondutividade.

A presente tese se estrutura nos seguintes itens:

### Capítulo 1

Uma exposição sucinta das principais propriedades estruturais e supercondutoras do  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

### Capítulo 2

Os principais efeitos sobre às propriedades supercondutoras do  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  causadas pela substituição parcial do Ba por átomos de Sr e do Cu por átomos de Zn ou Mg.

### Capítulo 3

Descrição das propriedades magnéticas genéricas dos HTSC, colocando em destaque a LIM e os principais modelos teóricos, utilizados na sua interpretação.

### Capítulo 4

Modelos teóricos empregados na interpretação dos regimes de flutuações na magnetocondutividade nas regiões paracondutora (normal) e paracoerente (supercondutora) dos HTSC.

### Capítulo 5

Os métodos utilizados na preparação e na análise das amostras, bem como a descrição dos equipamentos, procedimentos de medida e a análise de dados.

### Capítulo 6

Apresentação dos resultados experimentais da LIM bem como a discussão em termos dos modelos teóricos usuais.

### Capítulo 7

Apresentação dos resultados experimentais referentes aos regimes de

flutuações na magnetocondutividade nas regiões paracoerente e paracondutora bem como a discussão desses resultados em termos dos modelos teóricos usuais.

Finalizaremos esta tese com um resumo detalhado de todas as conclusões obtidas no desenvolvimento do presente trabalho.

## Capítulo 1 - Propriedades Gerais do Sistema $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Em 1987, Berdnorz e Müller constataram que a substituição do Ba por Sr no óxido supercondutor  $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-y}$  eleva o valor de  $T_c$  de 35 K até aproximadamente 40 K.<sup>[1]</sup> Utilizando a aplicação de pressão hidrostática Chu e col. obtiveram  $T_c \sim 50$  K.<sup>[2]</sup> Baseados nesse fato, Wu e col. substituíram o  $La^{3+}$  por um íon menor o  $Y^{3+}$  no composto LaBaCuO. Este procedimento resultou na elevação do valor de  $T_c$  para surpreendentes 93 K.<sup>[3]</sup> Surgia naquele momento um dos materiais mais estudados de todos os tempos, o supercondutor YBaCuO. Este supercondutor foi inicialmente produzido na forma de uma cerâmica multifásica apresentando a seguinte composição nominal  $Y_{1.2}Ba_{0.8}CuO_{4-\delta}$  entretanto, pesquisas mais detalhadas identificaram que a fase responsável pela supercondutividade a alta temperatura era a  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ <sup>[4]</sup> onde  $\delta$  representa o desvio à estequiometria ideal para o oxigênio.

Desde a sua descoberta até os dias de hoje, o supercondutor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ainda vem sendo intensamente investigado. Isso se deve ao fato desse material apresentar uma temperatura de transição superior à temperatura de liquefação do nitrogênio, uma estrutura não usual e excelentes propriedades supercondutoras. Entre elas, podemos citar os elevados valores de campo e correntes críticas, o que o torna atrativo para aplicações tecnológicas. Além disso, no que tange a pesquisa básica, a obtenção de amostras supercondutoras monofásicas permite uma investigação sistemática da natureza do estado supercondutor nessa classe de materiais.

### 1.1 - Estrutura Cristalina

A estrutura cristalina do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , supondo  $\delta = 0$ , é ortorrômbica apresentando os seguintes parâmetros de rede:  $a = 3.82$  Å,  $b = 3.89$  Å e  $c = 11.69$  Å.<sup>[5,6]</sup> De acordo com a *fig. 1.1*, a cela unitária é constituída basicamente por dois planos de  $Cu-O_{(2)}$  separados por um plano formado por íons de ítrio. As camadas que separam esses planos duplos de  $Cu-O_{(2)}$  contém camadas de bário, cobre e oxigênio ordenados e justapostos ao longo do eixo  $c$ . Nesse supercondutor a disposição dos átomos de cobre na cela unitária ocorre da seguinte forma: Dois átomos de cobre,  $Cu_{(2)}$  encontram-se em cada plano de  $Cu-O_{(2)}$  ligados a cinco átomos de oxigênio. Um terceiro átomo de cobre identificado como  $Cu_{(1)}$ , o qual encontra-se ligado a quatro átomos de oxigênio, está localizado nas camadas que separam os planos duplos de  $Cu-O_{(2)}$ . A disposição linear dos átomos de  $Cu_{(1)} - O - Cu_{(1)} - O - \dots$ , formando uma estrutura unidimensional ao longo do eixo cristalográfico  $b$  forma as chamadas cadeias lineares de  $Cu-O_{(1)}$ . Então, podemos dizer que o sistema apresenta a seguinte sequência de planos ao longo do eixo  $c$ :  $Cu-O_{(1)} - BaO - Cu-O_{(2)} - Y - Cu-O_{(2)} - BaO - Cu-O_{(1)}$ . Nessa configuração o sanduíche  $Cu-O_{(2)} - Y - Cu-O_{(2)}$  é denominado de camada de condução. Por outro lado, a estrutura  $BaO - Cu-O_{(1)} - BaO$  chamada de camadas de reservatório de carga, conforme ilustra a *fig. 1.1*. As camadas que formam os planos duplos de  $Cu-O_{(2)}$  característicos da cela unitária são separadas por uma distância da ordem de 3.4 Å.<sup>[7]</sup> A distância entre subseqüentes planos de condução é da ordem de 8 Å.<sup>[7]</sup>

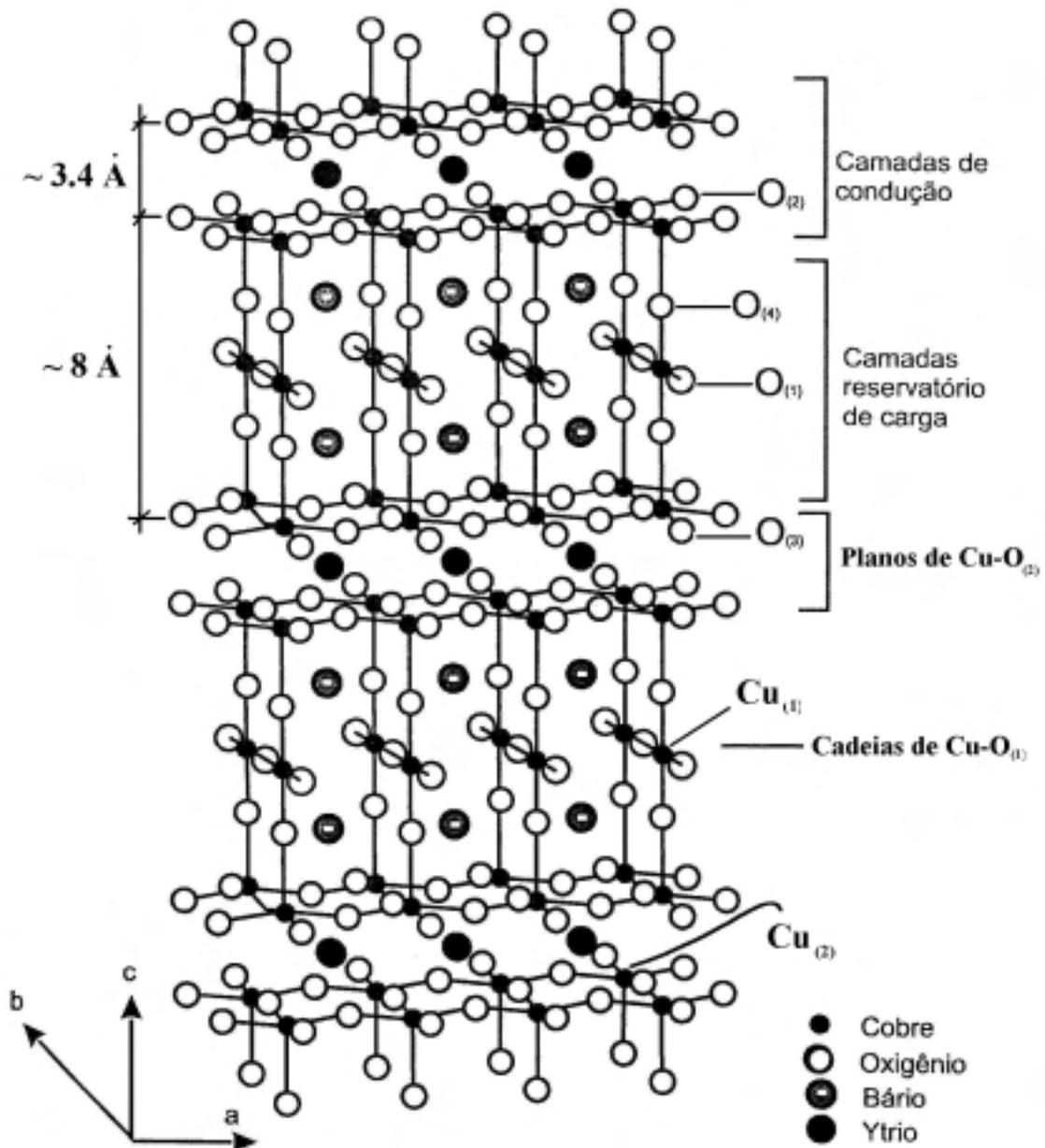


Fig. 1.1 - Estrutura Cristalina para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .<sup>[7]</sup>

## 1.2 - O Comportamento de $T_c$ : O Modelo de Transferência de Cargas

Apesar da existência de muitas dúvidas sobre a natureza do mecanismo supercondutor dos HTSC, é certo afirmarmos que a temperatura crítica de transição supercondutora depende da concentração de portadores nos planos de  $Cu-O_{(2)}$  e da carga armazenada pelos átomos de oxigênio nas cadeias de  $Cu-O_{(1)}$ . O montante desta carga pode ser controlado através da manipulação da estequiometria do oxigênio nas cadeias de  $Cu-O_{(1)}$ <sup>[8, 9]</sup> ou por meio de substituições atômicas.<sup>[10]</sup> Sendo assim, podemos estudar o comportamento de  $T_c$  no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  em função da concentração de oxigênio na cela unitária, conforme ilustram os resultados das fig. 1.2 e 1.3.

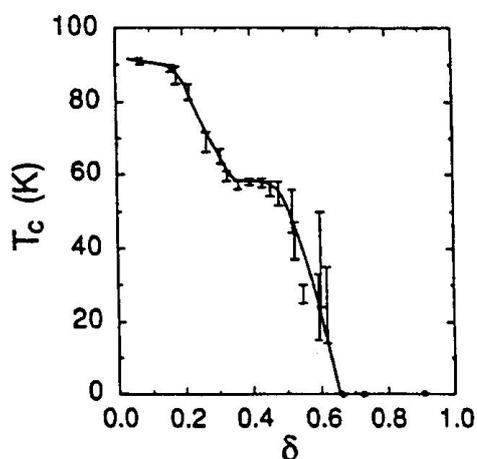


Fig. 1.2 - O comportamento de  $T_c$  em função de  $\delta$ .<sup>[8]</sup>

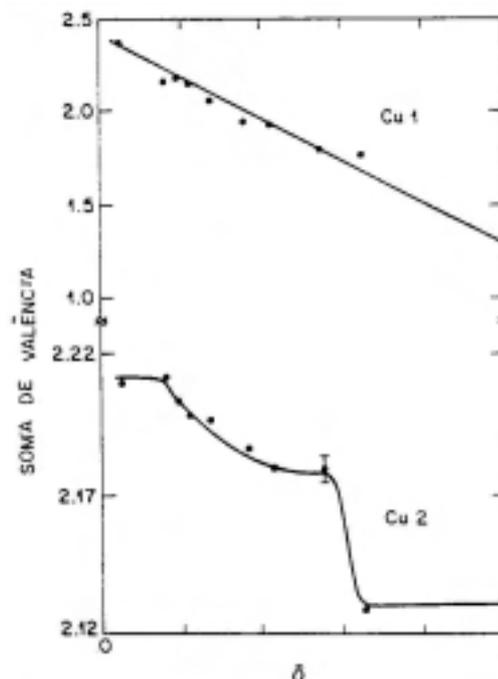


Fig. 1.3 - Soma de valências do plano de Cu em função de  $\delta$ .<sup>[11]</sup>

De acordo com a *fig. 1.2*,<sup>[8]</sup> observamos que  $T_c$  mostra um crescimento abrupto de 0 a 60 K, para valores de  $\delta$  variando de 0.6 até 0.5, onde  $\delta$  representa o desvio à estequiometria ideal para o oxigênio. Contudo, para concentrações entre  $0.5 > \delta > 0.35$ , a temperatura crítica estabiliza em torno do valor de 60 K. Porém, quando  $\delta$  diminui de 0.35 para 0.18, a temperatura crítica incrementa rapidamente o seu valor em aproximadamente 30 K, tendendo suavemente a atingir o valor de 92 K quando o valor de  $\delta$  decresce de 0.18 para aproximadamente 0. Conforme ilustra a *fig. 1.2*, o comportamento de  $T_c(\delta)$  apresenta dois platôs compreendidos entre  $0 < \delta < 0.18$  e  $0.35 < \delta < 0.5$ , onde o valor da temperatura crítica se mantém relativamente estável. Este comportamento de  $T_c(\delta)$  tem sido observado sistematicamente em várias amostras, independentemente do método utilizado na preparação das mesmas.<sup>[9]</sup> Cabe também ressaltar que o valor de  $T_c$  se anula para concentrações de  $\delta > 0.65$ . Isso ocorre porque quando  $\delta \sim 0.65$  a estrutura do material sofre uma transição da fase ortorrômbica para a fase tetragonal onde o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  passa a ser um isolante. O valor de  $\delta$ , onde esta mudança de estrutura é desencadeada varia um pouco de amostra para amostra e está fundamentalmente ligada ao método experimental empregado no preparo da mesma.

Por outro lado, a variação de  $T_c(\delta)$ , evidenciada na *fig. 1.2*, é explicada através do modelo de transferência de cargas.<sup>[11]</sup> Este modelo está baseado na soma do valor da valência dos átomos de cobre existentes nos planos de Cu-O<sub>(2)</sub>.<sup>[12]</sup> Em outras palavras, a carga total associada aos planos piramidais de Cu-O em função da concentração de oxigênio.

Com base neste modelo, o decréscimo da temperatura crítica de transição de 90 para 60 K no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  encontra-se associado à ocorrência de uma grande

transferência de carga negativa (aproximadamente  $0.03 e^-/Cu$ ) para os planos de  $Cu-O_{(2)}$ , quando  $\delta = 0.4$ . O desaparecimento da supercondutividade estaria ligado a uma nova transferência de cargas, superior à primeira em  $\delta = 0.55$ , tendo como consequência imediata o anulação de  $T_c$  e a mudança da estrutura cristalina para a fase tetragonal a qual particulariza-se por ser isolante. É importante ressaltar, conforme ilustra a *fig. 1.3*, o fato de que a quantidade de cargas nas cadeias de  $Cu-O_{(1)}$  decresce linearmente em função da estequiometria de oxigênio ao passo que a quantidade de carga nos planos de  $Cu-O_{(2)}$  apresenta a mesma estrutura de platôs observada na *fig. 1.2* para  $T_c(\delta)$ . Portanto, o transporte de carga e a supercondutividade encontram-se fundamentados na remoção de oxigênios existentes nas ligações com os átomos de  $Cu$  quando  $\delta$  varia de 0 a 1. Então, a concepção de que a transferência de cargas controla a variação de  $T_c$  no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  juntamente com a idéia de que as cadeias de  $CuO$  comportam-se como reservatório de cargas estão bem fundamentadas.

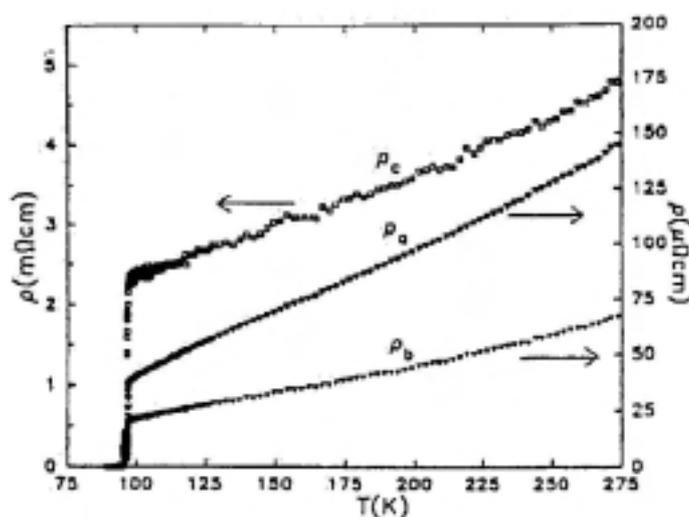
Este modelo ainda apresenta-se como um forte candidato a explicar o comportamento apresentado por  $T_c$  quando elementos de transição 3d são substituídos parcialmente no sítio do  $Cu$ .<sup>[13]</sup> Isso se deve ao fato de que a substituição parcial dos átomos de  $Cu$  por esses elementos no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  provoca um efeito semelhante àquele observado na variação de  $T_c(\delta)$ .

### **1.3 - A Anisotropia Planar**

Medidas de resistividade elétrica normal no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  revelam a existência de uma forte anisotropia na condutividade elétrica deste material ao longo dos eixos cristalográficos  $a$ ,  $b$  e  $c$ .

A anisotropia deve-se principalmente à estrutura cristalina do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Os planos de  $Cu-O_{(2)}$ , os quais se estendem ao longo do plano  $ab$ , são excelentes condutores, porém, esses são intercalados por planos de baixa condutividade.

A *fig. 1.4* apresenta o comportamento da resistividade ao longo dos eixos  $a$ ,  $b$  e  $c$  em função da temperatura para um monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  de excelente qualidade (sem maclas).<sup>[14]</sup>



**Fig. 1.4** - Resistividade nas direções  $a$ ,  $b$  e  $c$  para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .<sup>[14]</sup>

Verifica-se que a resistividade  $\rho_a$  é cerca de duas vezes maior que  $\rho_b$  para temperaturas entre  $T_c$  e 275 K. A componente  $\rho_c$  é aproximadamente 30 vezes maior do que a resistividade ao longo do eixo  $a$  e 75 vezes superior à do eixo  $b$ .

### **1.4 - Comprimentos Característicos**

Dentre os comprimentos característicos do estado supercondutor do YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, podemos citar dois: o comprimento de penetração de London ( $\lambda_L$ ) e o comprimento de coerência ( $\xi$ ). A razão entre estes dois comprimentos nos fornece o parâmetro de Ginzburg Landau,  $k = \lambda_L/\xi$  onde  $k \gg 1$  para o YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>, fato que o classifica como um supercondutor do tipo II.

A anisotropia deste supercondutor é novamente verificada através de valores obtidos para  $\xi$  e  $\lambda_L$ . O comprimento de penetração de London para o YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> apresenta valores de aproximadamente  $\lambda_{ab} \sim 1400 \text{ \AA}$  ao longo do plano  $ab$ <sup>[15]</sup> e  $\lambda_c \sim 7000 \text{ \AA}$  para o eixo  $c$ .<sup>[15]</sup> Ao passo que o valor estimado para comprimento de coerência ao longo do plano  $ab$  é de  $\xi_{ab} \sim 14 \text{ \AA}$ <sup>[15]</sup> e para o eixo  $c$  de  $\xi_c \sim 1.5 \text{ \AA}$ .<sup>[15]</sup>

O alto valor de  $\lambda_L$  juntamente com o reduzido valor encontrado para  $\xi$  sugerem que a supercondutividade neste composto seja de caráter bidimensional. Chamamos a atenção para o fato de que  $\xi_c$  apresenta um valor muito inferior ao parâmetro de rede  $c$  ( $c = 11.69 \text{ \AA}$ ).

### **1.5 - Defeitos Estruturais**

Conforme discutido no ítem anterior, o YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> apresenta um comprimento de coerência,  $\xi$  com dimensões, comparáveis à da cela unitária, e bastante anisotrópico tornando as propriedades supercondutoras fortemente dependentes da orientação cristalina. Em virtude disto, defeitos estruturais cuja extensão é da ordem ou maior do que o valor para o comprimento de coerência  $\xi$ , passam a ser considerados muito relevantes. Portanto, o pequeno valor apresentado por  $\xi$  confere às propriedades supercondutoras uma maior sensibilidade a imperfeições químicas e estruturais microscópicas. Em particular, a amplitude do parâmetro de ordem é fortemente deprimida em superfícies externas, fronteiras de grão e nos defeitos estendidos e locais. A rápida variação da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor com a posição deve-se principalmente a seu pequeno comprimento de coerência. Desta forma, os defeitos microscópicos e mesoscópicos, os quais apresentam escalas de tamanho intragrão, juntamente com a existência de defeitos macroscópicos podem influenciar diversas propriedades supercondutoras do YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>.

Conforme mencionado no parágrafo anterior, podemos classificar os defeitos em função de sua extensão em três níveis:

- Microscópicos: Esses defeitos também denominados de locais são os seguintes: Vacâncias de oxigênio, impurezas, desordem química, etc.. Esses defeitos são tidos como quase-intrínsecos à estrutura do YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>.

- Mesoscópicos: Também denominados de defeitos estendidos. Entre os principais defeitos mesoscópicos destacamos as maclas, deslocamentos, falhas de empilhamento ou ainda os defeitos colunares introduzidos artificialmente através de bombardeamento com íons pesados.

- **Macroscópico:** Nesta escala, os defeitos característicos são as fronteiras de grãos, precipitados, poros de amostras cerâmicas e fases alternativas não supercondutoras como a fase  $Y_2BaCuO_5$ .

A *fig. 1.5* apresenta uma ilustração para uma possível fronteira entre grãos no plano  $ab$ , constituindo um plano de macla.<sup>[16]</sup>

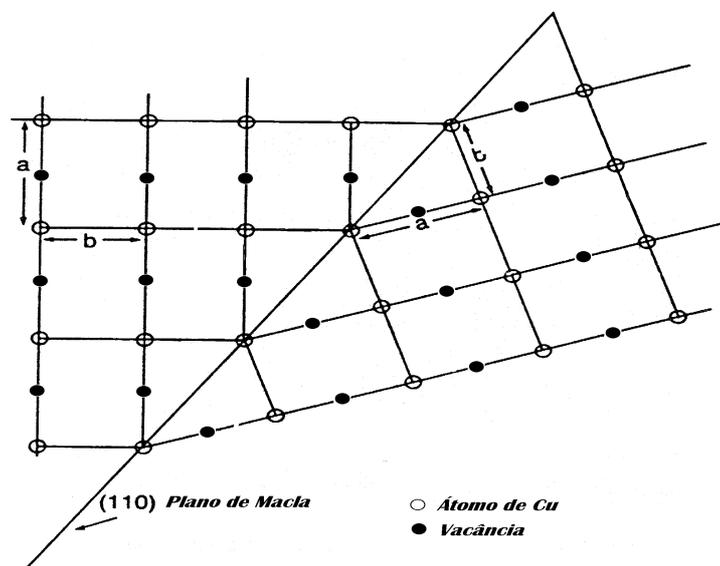


Fig. 1.5 - Representação de uma interface de macla paralela à direção  $[110]$ .<sup>[16]</sup>

As maclas, são o tipo de imperfeições mais encontradas tanto em amostras policristalinas quanto monocristalinas. As maclas ocorrem ao longo dos planos  $[110]$  e ou  $[1\bar{1}0]$ . Em outras palavras, as maclas são fronteiras de grãos cristalinos, que têm a direção  $c$  e formam um ângulo de aproximadamente  $45^\circ$  com as direções cristalográficas  $b$  e  $a$ . Isso, implica em que as redes cristalinas adjacentes apresentam respectivamente os seus eixos  $a$  e  $b$  trocados, conforme a *fig. 1.5*. Uma possível explicação para a ocorrência deste tipo de imperfeição sugere que a variação volumétrica sofrida pela amostra durante a mudança de fase tetragonal para ortorrômbica causaria esta distorção na estrutura. Como consequência, a minimização de energia de distorção, juntamente com a restauração volumétrica, originam as maclas de interfaceamento.

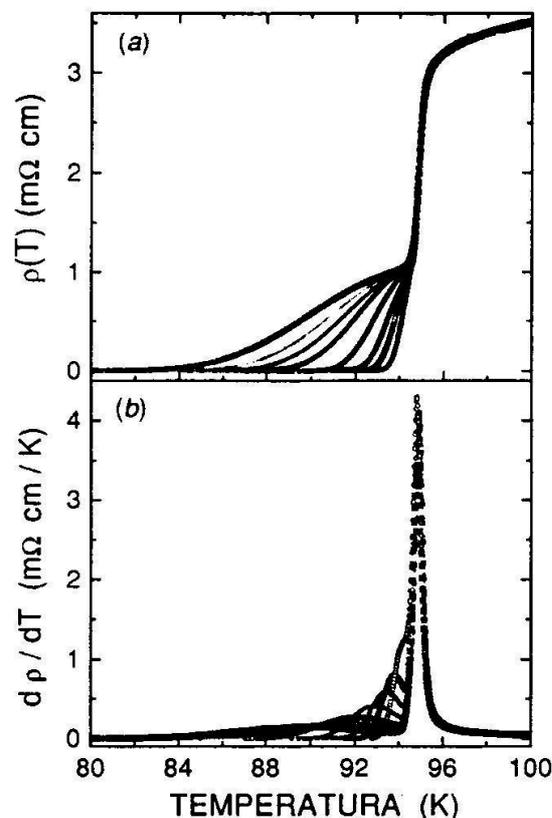
## 1.6 - Junções Fracas ("weak-links")

A microestrutura de amostras supercondutoras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , bem como para os demais HTSC, fabricadas a partir dos métodos convencionais de reação em sólido, caracteriza-se por apresentar uma distribuição de grãos supercondutores aleatoriamente orientados. A escala de desordem estrutural resultante desta aleatoriedade é da ordem do comprimento de coerência para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Esta circunstância é desfavorável, pois conduz ao espalhamento de elétrons nas fronteiras de grão resultando na supressão da supercondutividade. Estes problemas são

intensificados pela presença de materiais amorfos e fases secundárias. Portanto, os fatores citados acima contribuem para que o acoplamento entre as fronteiras de grãos supercondutores seja fraco. Este acoplamento fraco provoca um rápido decaimento da densidade de corrente crítica,  $J_c$  na presença de um pequeno valor de campo magnético. Se o interfaceamento entre as fronteiras de grãos supercondutores realizar-se por meio de um material isolante (SIS) então as supercorrentes terão que tunelar através dessa junção. Caso o material seja um metal normal (SNS), o transporte ocorrerá por efeito de proximidade.

Em supercondutores óxidos, geralmente granulares, o acoplamento de grãos através das fronteiras de grãos, na maioria dos casos, ocorre por meio de junções de Josephson.<sup>[17]</sup> A presença destas junções se torna mais evidente em materiais policristalinos porque os cristalitos são acoplados entre si através das barreiras fracamente condutoras que se formam na superfície dos grãos. Tais sistemas são modelizados como meios de Josephson, nos quais o parâmetro de ordem varia acentuadamente com a posição. No entanto, o alto grau de desordem e randomicidade torna o tratamento deste problema bastante difícil.

Evidências experimentais da presença de distribuições de junções fracas podem ser obtidas em medidas de resistividade.<sup>[18]</sup> Em sistemas cerâmicos demonstra-se claramente que a transição resistiva é um processo em duas etapas. Num primeiro momento a supercondutividade se estabelece dentro dos grãos e num segundo estágio, a ordem de longo alcance é estabelecida através da percolação dos grãos. Estas junções são sensíveis à aplicação de campos magnéticos e às correntes de transporte as quais tendem a provocar o desacoplamento dos grãos. O efeito devido a aplicação de campo magnético é ilustrado na *fig. 1.6*.



**Fig 1.6** - Curvas de  $\rho(T)$  em função de  $H = 0, 0.005, 0.01, 0.02, 0.05, 0.1, 0.2$  e  $0.5$  kOe e suas respectivas derivadas para o  $GdBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .<sup>[18]</sup>

Por outro lado, a presença de camadas não supercondutoras entre os planos de  $Cu-O_{(2)}$  é a principal justificativa para o fraco acoplamento entre eles. Esse acoplamento fraco está baseado na anisotropia usualmente expressa pelo parâmetro de anisotropia  $\varepsilon = (m / M)^{1/2}$ , onde  $m$  e  $M$  são as massas eletrônicas efetivas no plano  $ab$  e ao longo do eixo  $c$ . Alguns autores se referem a esse tipo de acoplamento em termos de junções de Josephson intrínsecas ao material.

Em materiais monocristalinos apresentando inomogeneidades, como defeitos de rede ou dopagem de oxigênio, também pode ocorrer um acoplamento fraco entre regiões supercondutoras (onde a estequiometria de oxigênio é próxima da ideal) e regiões subdopadas e como tal fracamente supercondutoras, ou não-supercondutoras.

## ***Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$***

Os HTSC, na sua grande maioria, são sistemas óxidos metálicos apresentando uma estrutura cristalina bastante complexa. Inúmeros estudos experimentais, com o objetivo de pesquisar o papel das propriedades físicas, químicas e supercondutoras destes materiais vêm sendo realizados. Dentre estes, destacamos a relevância do efeito das substituições químicas na estrutura e nas propriedades supercondutoras destes compostos.

O supercondutor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é um dos materiais supercondutores preferidos para investigar o efeito das substituições químicas nas propriedades supercondutoras. A grande estabilidade e portanto a unicidade da fase supercondutora YBCO-123 é um dos fatores que o credencia para tal estudo.

### ***2.1 - O Sistema $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$***

Os efeitos causados pela aplicação de pressão hidrostática nas propriedades estruturais (parâmetros de rede) e supercondutoras (valor de  $T_c$ ) no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  são reproduzidos por meio de substituições químicas. O efeito de pressão hidrostática causado pela substituição química ajuda a melhor compreendermos o mecanismo elevador de  $T_c$  nesse material.

Particularmente, a maneira mais fácil de reduzir as distâncias interatômicas sem alterar o ambiente eletrônico é substituir parcialmente Ba por Sr no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Isso se deve ao fato de que o átomo de Sr é menor do que o de Ba e ambos são divalentes. A introdução de átomos de Sr não altera a concentração de lacunas ao longo dos planos de  $Cu-O_{(2)}$  ao mesmo tempo que produz um efeito de compressão da cela unitária. Entretanto, a substituição parcial do Ba por Sr no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , dependendo da proporção utilizada, induz um decréscimo de  $T_c$  e acima de um certo limite torna a fase YBCO-123 instável.

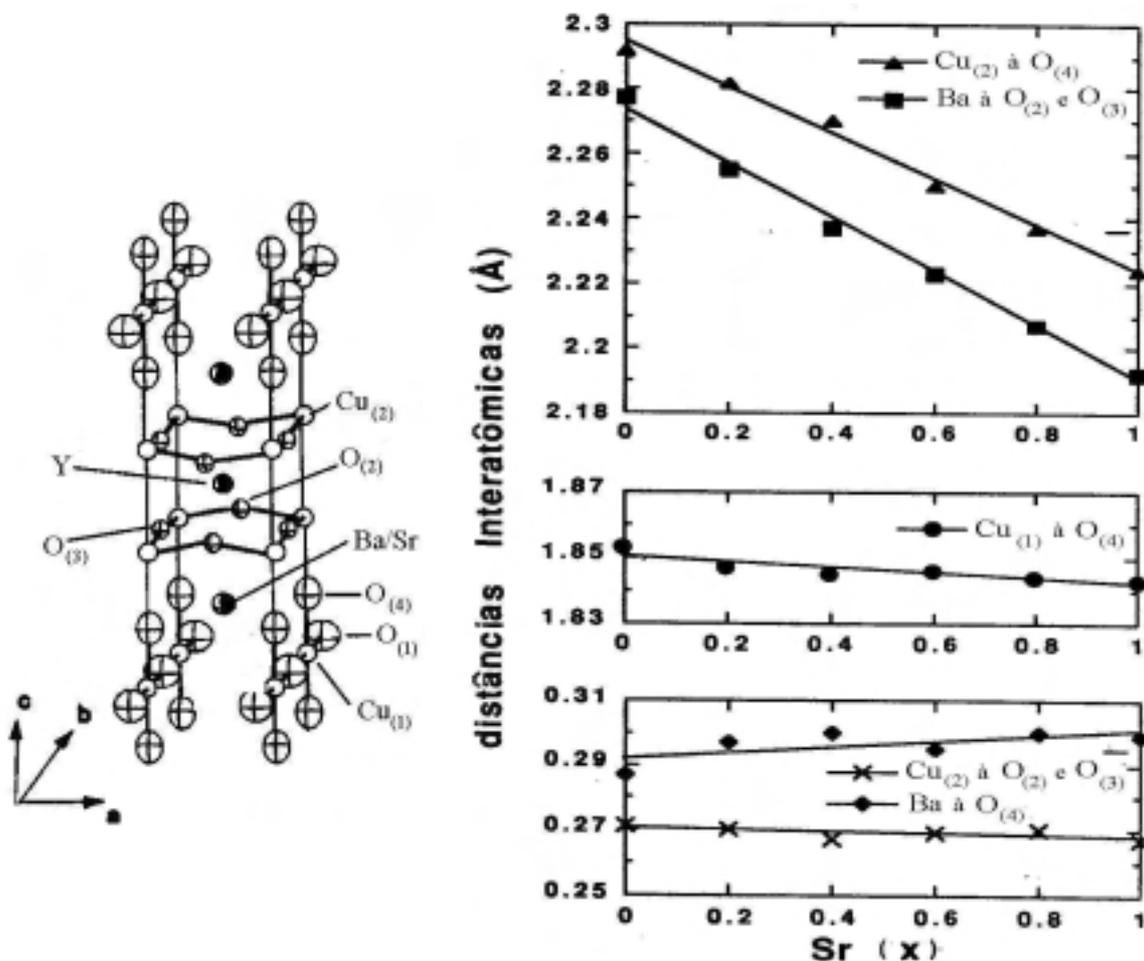
#### ***2.1.1 - Propriedades Estruturais***

Diversos trabalhos realizados no sistema  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  revelaram que os átomos de Sr substituem diretamente os átomos de Ba em uma proporção bastante elevada.<sup>[19-22]</sup> Estudos de difração de raio-X, realizados em amostras preparadas a pressão ambiente, revelaram que a substituição de 50 % do Ba por Sr ( $x = 1$ ) não provocou o aparecimento de nenhuma fase estrutural diferente daquelas conhecidas para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Já, para percentuais entre 75 e 85 % ( $1.5 < x < 1.7$ ), foi constatada a formação de fases espúrias e para concentrações superiores a 85 % ( $x > 1.7$ ), o composto assume um caráter isolante.<sup>[23]</sup> Entretanto, sob condições experimentais adequadas é possível a obtenção do supercondutor  $YSr_2Cu_3O_x$  onde Ba é trocado integralmente pelo Sr.<sup>[24]</sup>

A substituição parcial do Ba por Sr implica na compressão da cela unitária ortorrômbica. O valor dos eixos cristalográficos  $a$ ,  $b$ , e  $c$  apresenta variação de amostra para amostra.<sup>[25,26]</sup> Na maioria das vezes, eles mostram um decréscimo linear para concentrações de Sr variando entre  $0 < x < 1$ , não tendendo a tetragonalização da

**Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$**

cela unitária.<sup>[19,20]</sup> Uma pesquisa mais detalhada sobre a variação apresentada por algumas distâncias interatômicas do composto  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ , onde  $0 < x < 1$ , foi realizada<sup>[25]</sup> e os resultados são ilustrados na *fig. 2.1*.



**Fig. 2.1** - Cella unitária do  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  e o comportamento de algumas distâncias interatômicas sem função de  $x$  ( $0 < x < 1$ ).<sup>[25]</sup>

Nota-se na *fig. 2.1*, que a compressão da cela unitária ao longo da direção  $c$  acontece na região compreendida entre os planos de  $Cu-O_{(2)}$  e as cadeias de  $Cu-O_{(1)}$ . A distância de ligação existente entre os átomos de  $Cu_{(2)}$  e  $O_{(4)}$  decresce rapidamente com o aumento da concentração de Sr, ao mesmo tempo que a distância de separação entre os átomos de  $Cu_{(1)}$  e  $O_{(4)}$  diminui suavemente. Portanto,  $O_{(4)}$  é deslocado em direção ao plano de  $Cu-O_{(2)}$ , definido na *fig. 1.1*. O plano composto por Ba(Sr) movimenta-se na mesma direção que  $O_{(4)}$  o que leva a concluir que suas posições relativas não se alteram ao longo do eixo cristalográfico  $c$ . Esses resultados encontram-se em comum acordo com os obtidos utilizando-se a técnica de absorção de raio-X para a estrutura fina (EXAFS), onde foi constatado uma distorção da estrutura em torno dos átomos de Sr no plano Ba(Sr).<sup>[27]</sup>

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

Feitas estas considerações, sugere-se que a distorção ocorrida no sítio do Ba, devido a substituição parcial por átomos de Sr, não tende a criar uma simetria tetragonal na estrutura para concentrações inferiores a  $x \leq 1$ . Esta característica, revela que o ordenamento das cadeias de Cu-O<sub>(1)</sub> não é fortemente afetada por este tipo de dopagem. Por outro lado, o deslocamento em conjunto do plano Ba(Sr) com os átomos de O<sub>(4)</sub> em direção aos planos supercondutores de Cu-O<sub>(2)</sub>, devido ao aumento da concentração de Sr, indica que nenhuma redistribuição de carga entre os planos supercondutores de Cu-O<sub>(2)</sub> e as cadeias de Cu-O<sub>(1)</sub> ocorre.<sup>[25]</sup> Além disso, as distâncias interatômicas entre os átomos de Cu<sub>(2)</sub>, O<sub>(2)</sub> e O<sub>(3)</sub> no plano supercondutor não apresentaram variação significativa, colaborando assim para a não alteração do ambiente eletrônico em torno dos átomos de Cu<sub>(2)</sub>.

Maregio et al<sup>[28]</sup> realizaram um estudo experimental contrastando os efeitos produzidos pela aplicação de pressões hidrostática e química ("doping" com Sr) à estrutura do YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub> . Os principais resultados observados foram os seguintes:

- A contração dos parâmetros de rede devido a aplicação de pressão química ocorre de maneira isotrópica ao passo que o efeito produzido pela aplicação de pressão hidrostática é anisotrópico pois a taxa de decréscimo do eixo *c* e aproximadamente o dobro da taxa apresentada pelos eixos *a* e *b*.

- A distância de separação entre os planos de Cu-O<sub>(2)</sub> aumenta quando aumenta a quantidade de Ba substituída por Sr e diminui quando aumenta o valor da pressão hidrostática aplicada a cela unitária do YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub> .

- A completa substituição do Ba por Sr no YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  induz uma variação nos parâmetros de rede equivalente a aplicação de uma pressão externa entre 5 a 10 GPa.

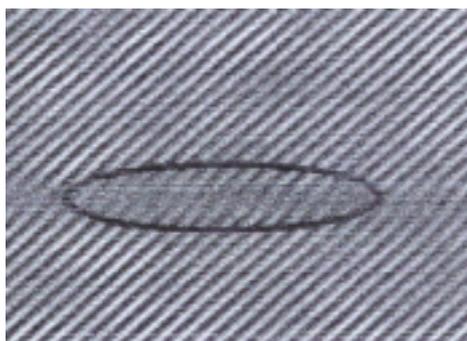
- A distância de separação entre os átomos de Cu<sub>(2)</sub> e O<sub>(4)</sub> diminui com a utilização de ambas as técnicas.

Por outro lado, a fase estrutural do sistema YBaSrCu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  foi estudada em função da concentração de oxigênio. Medidas de difração de raio-X (XRD) acusaram dois tipos de fases dependentes da concentração de O<sub>2</sub> nesse sistema. Para concentrações de O<sub>2</sub>  $\leq$  6.6, a fase é tetragonal, ao passo que, para concentrações entre 6.6  $\leq$  O<sub>2</sub>  $\leq$  7, a estrutura é ortorrômbica e para concentrações de O<sub>2</sub>  $\geq$  7, conseguidas em altas pressões de oxigênio, a fase volta a ser tetragonal.<sup>[26]</sup>

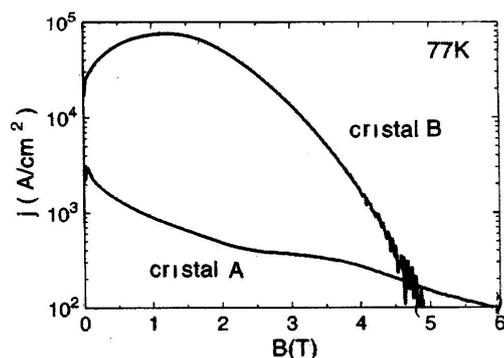
Outro efeito importante causado pela substituição parcial do Ba por Sr é o aumento significativo da densidade de centros de "pinning". Saito et al<sup>[29]</sup> revelam que a substituição de 1 % do Ba por átomos de Sr em monocristais de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  tende a aumentar a densidade de maclas em pelo menos três vezes em relação ao sistema puro.

A *fig. 2.2* ilustra imagens de microscopia eletrônica de transmissão de alta resolução (HRTM) obtidas ao longo dos planos [001] de monocristais de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7- $\delta$</sub>  dopados com 1 % de átomos de Sr. Estas imagens foram analisadas em computador através da técnica de filtragem de Fourier.

Na região delineada por um traço oval da *fig. 2.2*, os planos de rede trocam suas orientações abruptamente e até um pequeno deslocamento lateral ao longo da fronteira das maclas também pode ser observado. Estas características estendem-se ao longo da superfície de todo o cristal e não apenas para a região em destaque. Segundo os autores, a distorção da rede observada ao longo dos planos de maclas seria resultado da decoração destes por pequenos cachos de Sr precipitados nas vizinhanças destes planos de maclas.



**Fig. 2.2** – Imagem HRTM para  $YBaCuO-Sr1\%$  mostrando os planos [100].<sup>[29]</sup>



**Fig. 2.3** - Diagrama  $J \times B$  para o cristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro (cristal A) e para o cristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dopado com 1% de Sr (cristal B).<sup>[29]</sup>

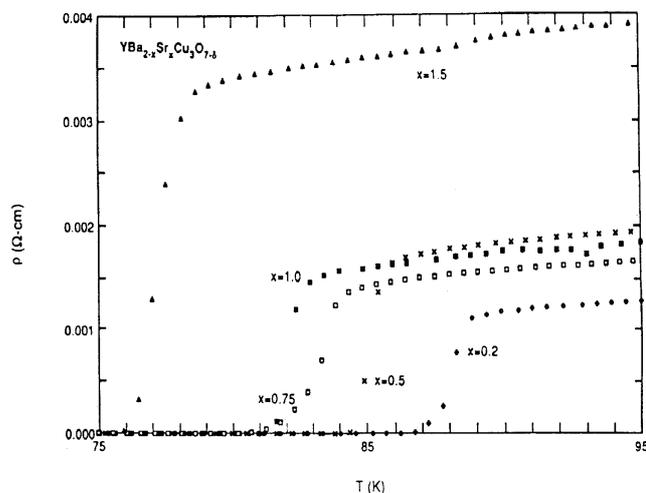
O aumento da eficiência do mecanismo de "flux pinning" do monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dopado com 1 % de Sr (cristal B) é mostrado na *fig. 2.3*. Nessa figura, as curvas de densidade de corrente crítica em função da intensidade de campo magnético aplicado,  $J_c(B // c)$  obtidas para o monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro (cristal A) e para o monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dopado com 1% de Sr (cristal B) são comparadas.

O valor de  $J_c(B = 1 \text{ T})$  apresentado pelo monocristal dopado é aproximadamente 80 vezes maior que o valor de  $J_c(B)$  obtido para o cristal puro. De acordo com Saito e colaboradores esta diferença deve-se não apenas ao aumento da densidade de maclas mas principalmente à formação de "clusters" de Sr isolados cercados por campos de tensão, os quais exercem importante "pinning" isotrópico.

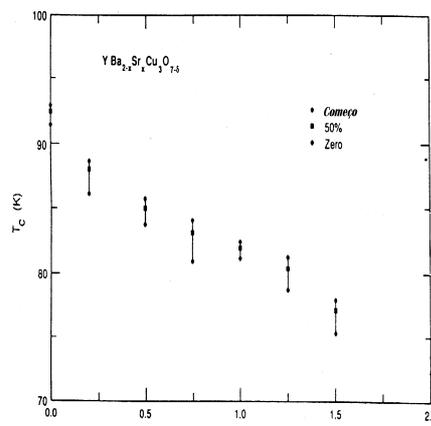
### 2.1.2 - O Comportamento de $T_c$

A transição normal-supercondutor do sistema  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  foi pesquisada a partir da realização de medidas de resistividade elétrica em função da temperatura,  $\rho(T)$ <sup>[23]</sup> e os resultados são ilustrados pela *fig. 2.4*.

Às curvas de  $\rho(T)$ , para valores de x compreendidos entre 0.2 e 1.5, são do tipo linear desde a temperatura ambiente até as proximidades de  $T_c$ . O elevado valor de resistividade apresentado pela amostra de x = 1.5, provavelmente, está relacionado com a presença de material isolante (inogeneidades). As curvas de  $\rho(T)$  são caracterizadas por uma transição supercondutora bem definida, exibindo uma largura de transição de aproximadamente 3 K. Os valores obtidos para  $T_c(x)$  são apresentados na *fig. 2.5*.



**Fig. 2.4** – Curvas de  $\rho(T)$  para o  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  [23]

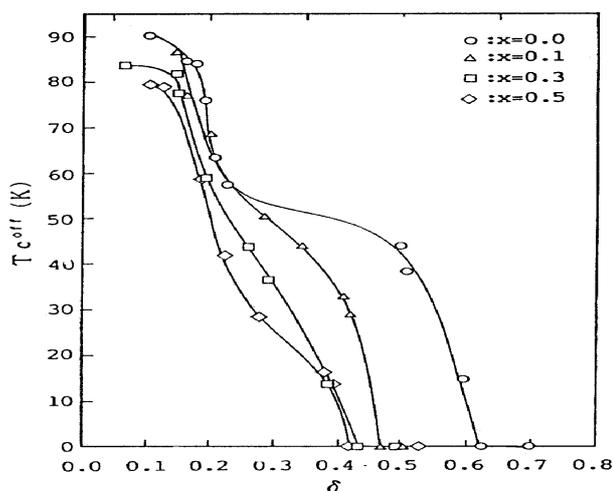


**Fig. 2.5** – Variação de  $T_c(x)$  no  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  [23]

O decréscimo inicial apresentado por  $T_c(x)$  é de aproximadamente  $-0.45$  K por centésimo de Sr, seguido, a partir de  $x \cong 0.25$ , de uma queda de  $-0.11$  K por centésimo de Sr até as proximidades de  $x = 1$ .

Em particular, a amostra de  $YBaSrCu_3O_{7-\delta}$  apresenta uma largura de transição resistiva de apenas 1.3 K. Esta pequena largura de transição pode estar associada a um ordenamento das impurezas de estrôncio contidas no composto.

No que diz respeito a concentração de  $O_2$ , [30] pode-se observar na *fig. 2.6* que o efeito, no valor da temperatura crítica, causado pela substituição por Sr, apresenta menor intensidade nas regiões onde  $\delta$  é pequeno.



**Fig. 2.6** – Correlação entre  $\delta$  e  $T_c$  para o  $Y(Ba_{1-x}Sr_x)_2Cu_3O_{7-\delta}$  para diferentes valores de  $x$ . [30]

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

O platô existente por volta de  $\delta \sim 0.4$  no composto  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , o qual é responsável pela formação da chamada fase orto-II,<sup>[31]</sup> caracterizada pelo ordenamento parcial das vacâncias de  $O_{(2)}$  nas cadeias de  $Cu-O_{(1)}$ , desaparece para as amostras dopadas com estrôncio. Este tipo de comportamento sugere que o ordenamento das vacâncias não ocorre para amostras de  $YBaSrCuO$ , o que, de certa forma, é suportado pelo deslocamento do limite de mudança da fase ortorrômbica para tetragonal para baixas concentrações de  $O_2$ .<sup>[30]</sup>

### **2.1.3 - O Mecanismo de Depressão para $T_c$**

A formulação de um modelo que aponte o mecanismo responsável pela supressão da supercondutividade no sistema  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  é ainda uma questão em aberto. Muitas hipóteses para tal comportamento são levantadas na literatura. No próximo parágrafo descreveremos algumas delas.

É bem conhecido que a substituição parcial do Ba por Sr provoca modificações na estrutura do sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Modificações como a contração da cela unitária, decréscimo da distância entre o plano formado por Ba(Sr) e os duplos planos de  $Cu-O_{(2)}$  e a insignificante variação na disposição dos planos  $Cu-O_{(2)} - Y - Cu-O_{(2)}$  provocam a distorção da estrutura local.<sup>[27]</sup> Tal distorção tem sido apontada como sendo o agente causador da depressão de  $T_c$ , desde que por esta razão vacâncias de oxigênio adicionais sejam introduzidas na estrutura, contribuindo assim para a deterioração da supercondutividade neste sistema.<sup>[23]</sup>

Cálculos de soma de valência de bandas (BVS) realizadas para o sistema  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ , em função de x por Licci et al,<sup>[32]</sup> revelaram que a substituição parcial do Ba por Sr proporciona um alívio na tensão existente nos planos de (Ba/Sr)-O. Esta diminuição da tensão evitaria uma transferência de cargas entre as cadeias de  $Cu-O_{(1)}$  e os planos supercondutores de  $Cu-O_{(2)}$  quando a estequiometria do oxigênio é fixa o que segundo os autores, seria responsável pelo decréscimo de  $T_c$  neste sistema.

Uma outra sugestão é apresentada por Chang et al<sup>[33]</sup> Este grupo pesquisou a estrutura eletrônica do sistema  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  para valores de x compreendidos entre 0 e 0.5, utilizando-se da técnica de absorção de raio-X. Particularmente, foram observados os espectros relativos a  $O1s$  e  $Cu2p_{3/2}$ . Eles propõem um modelo, segundo o qual, o desaparecimento da supercondutividade ocorre devido ao aprisionamento de buracos (portadores) junto aos átomos de oxigênio existentes no plano Ba/Sr, ( $O_{(4)}$ ). Isto ocorreria devido a uma possível redução da ligação covalente entre  $Ba_{5d}$  e  $O_{2p}$  induzida pela substituição do Ba por Sr. Além disso, os autores descartaram a hipótese de deficiência de  $O_2$  como uma das causas para o decréscimo do valor da temperatura crítica de transição. Levantam esta hipótese, fundamentados no fato de que a amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  apresentou uma menor intensidade no espectro de oxigênio, detectado para as bandas de valência e de condução do que os compostos dopados com estrôncio.<sup>[34]</sup>

Também devemos citar que para concentrações de  $x \geq 1.7$ , ocorre uma mudança da estrutura ortorrômbica para tetragonal no composto  $YBaSrCuO$ . Esta mudança, provavelmente é causada pela desordem implantada ao longo das cadeias  $Cu-O_{(1)}$  e planos de  $Cu-O_{(2)}$ , em virtude da substituição no sítio do Ba. Este comportamento levou Uglu<sup>[35]</sup> et al a acreditarem que uma certa porcentagem mínima

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

de Ba é necessária para manter o caráter supercondutor no sistema. Baseados neste raciocínio, os autores sugerem que a supressão do mecanismo supercondutor não está associado apenas às cadeias ou apenas aos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> separadamente, mas a um processo, que envolva ambos.

Ainda devemos ressaltar que os diversos modelos, empregados na explicação da supressão de  $T_c(x)$ , foram desenvolvidos a partir de resultados obtidos em amostras policristalinas. Os dados provenientes dessas amostras não são suficientes para a realização de um modelo teórico mais bem fundamentado. Por outro lado, muito pouco, ou quase nada, foi pesquisado em amostras monocristalinas para esse composto.<sup>[29,36]</sup>

### **2.2 - O Sistema $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$**

A elucidação do papel desempenhado pelo sítio do Cu na supercondutividade do sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é tida como crucial para a compreensão da natureza do mecanismo de acoplamento dos pares de Cooper nesse sistema.

Uma maneira experimental segura de investigar e compreender o verdadeiro papel desempenhado pelas cadeias de Cu-O<sub>(1)</sub> e planos de Cu-O<sub>(2)</sub> na supercondutividade do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é realizar substituições químicas no sítio do Cu por elementos metálicos de transição com a camada eletrônica d completa ou quase completa ou por elementos apresentando o nível d sem elétrons.

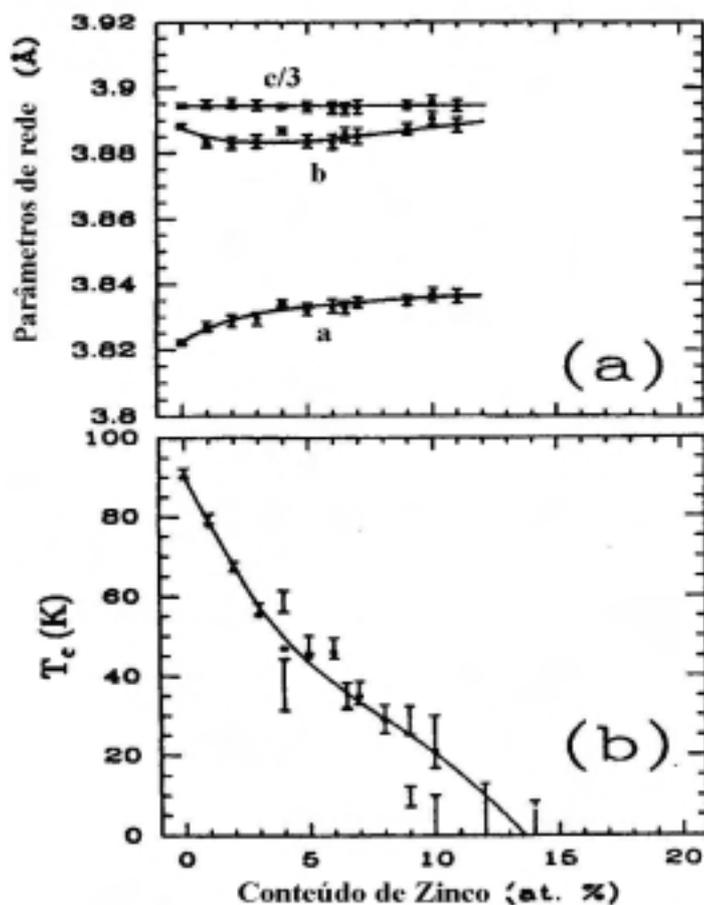
Desta forma, realizando substituições químicas parciais do Cu por íons apresentando diferentes estados de valência e estruturas eletrônicas intrínsecas torna-se possível pesquisar o balanceamento de carga, concentração de portadores e características magnéticas desempenhado pelos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> e a sua relação com o valor de  $T_c$ .

#### **2.2.1 - Propriedades Estruturais**

Entre tantos elementos utilizados na investigação do papel desempenhado pelo sítio do Cu nas propriedades supercondutoras do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , o Zn é um elemento que se destaca dos demais pelo fato de apresentar uma valência igual a +2, valor semelhante à valência apresentada pelos átomos de Cu e por possuir o nível 3d completo, portanto, não oferecendo complicações como a possível introdução de momentos magnéticos no sistema.

Alguns trabalhos<sup>[37-39]</sup> apontam para um limite de solubilidade dos átomos de Zn no sítio do Cu em torno de 10 % ( $x = 0.3$ ).

Xiao<sup>[37]</sup> observa que o sistema  $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$  conserva o caráter ortorrômbico da estrutura até atingir o limite de solubilidade, em torno de  $x \cong 0.3$ . Esse comportamento é descrito pela *fig. 2.7 a*, a qual destaca a variação dos parâmetros de rede  $a$ ,  $b$  e  $c$  em função do conteúdo Zn. A *fig. 2.7 b* apresenta o comportamento de  $T_c$  em função de  $x$  (%) obtido a partir de medidas de magnetização (símbolos fechados) e resistividade (barras).



2.7 - a) Variação dos parâmetros de rede e b) Variação de  $T_c$  em função da concentração de Zn.<sup>[37]</sup>

O parâmetro  $c$  não apresenta alteração significativa em função de  $x$  (%). O parâmetro que mede a distorção ortorrômbrica  $(b-a)/(a+b)$  apresenta valores muito próximos ao do sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro.

A supercondutividade desaparece completamente para percentuais de Zn em torno de 12-13 at. %. Isto ocorre enquanto o sistema mantém a estrutura ortorrômbrica peculiar do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  não dopado.

### 2.2.2 - O Comportamento de $T_c$

O comportamento da  $T_c$  em função da substituição parcial do Cu por Zn no sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  foi pesquisado por Zagoulaev et al. usando medidas de resistividade

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

elétrica,  $\rho(T)$ .<sup>[38]</sup> Apresentamos a seguir os resultados de  $\rho(T)$  em amostras policristalinas de  $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$  para diferentes concentrações de Zn, veja *fig. 2.8*. Por outro lado, a *fig. 2.9* ilustra o comportamento de  $T_c(x)$ , obtido a partir da análise dessas medidas.

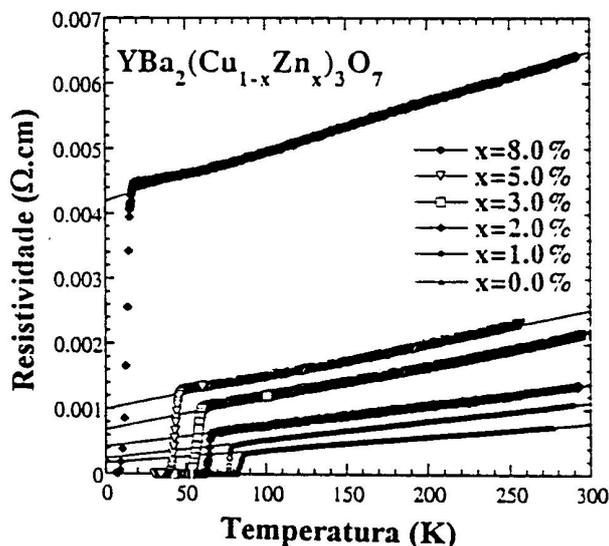


Fig. 2.8 – Curvas de  $\rho(T)$  para o  $YBaCu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$ .<sup>[38]</sup>

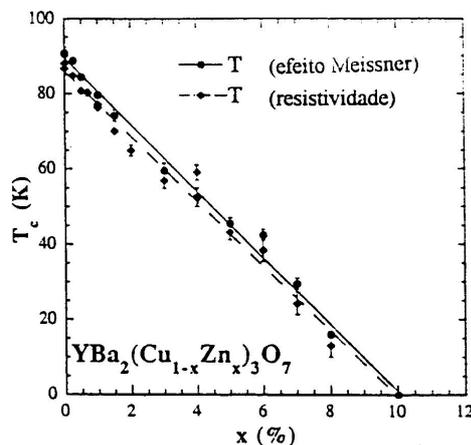


Fig. 2.9 – O comportamento de  $T_c(x)$ .<sup>[38]</sup>

Observamos que a resistividade normal,  $\rho_N(T)$  cresce com o aumento do conteúdo de Zn e que nessa região o comportamento é do tipo metálico ( $d\rho/dT > 0$ ) até 8 % de Zn. Contudo, segundo o autor, para valores de Zn superiores a 10 % a  $\rho_N(T)$  exibe uma inclinação negativa ou seja um comportamento não metálico. Isso mostra que uma pequena porcentagem de Zn é suficiente para suprimir completamente a supercondutividade e tornar o composto um isolante a baixas temperaturas.

A *fig. 2.9* ainda mostra que a temperatura crítica de transição decresce linearmente em função do aumento da concentração de Zn a uma taxa igual a  $-dT_c/dx = 10 \pm 2$  K para cada incremento de um por cento atômico de Zn. Resultados similares foram obtidos em amostras dopadas com átomos de Mg no sítio do Cu.<sup>[40]</sup> E esta taxa de decréscimo de  $T_c$  é, pelo menos, três vezes superior a do sistema dopado com Ni.

### 2.2.3 - O Mecanismo de Depressão para $T_c$

Uma explicação satisfatória para o mecanismo que explica a redução de  $T_c$  no supercondutor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  com a substituição parcial do Cu por Zn ainda encontra-se em debate. Contudo, algumas hipóteses são sugeridas na literatura.

A existência de um termo linear nos dados experimentais de calor específico em função da temperatura em amostras de  $YBa_2(Cu_{1-x}Zn_x)_3O_{7-\delta}$ , para temperaturas

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

inferiores a  $T_c$ , sugeriu inicialmente que o Zn provoca um efeito de quebra de pares no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .<sup>[41]</sup>

Alguns autores trabalham com a hipótese de que a indução de momentos magnéticos nos íons de Zn, devido a ação de sítios vizinhos, poderia originar espalhamento magnético, o que seria responsável pela depressão de  $T_c$ .<sup>[42,43]</sup> Esta hipótese vem sendo sustentada por estudos experimentais da contribuição de Curie à susceptibilidade magnética<sup>[42]</sup> e à análise da largura da linha de relaxação magnética nuclear (NMR) do  $^{89}Y$ .<sup>[43]</sup>

Segundo Sun e Maki<sup>[44]</sup> o parâmetro de ordem supercondutor é uniformemente suprimido devido à adição de impurezas. Ainda, segundo os autores, um decréscimo linear de  $T_c(x)$  deve ser esperado no limite de  $T_c(x)/T_c \sim 0.5$  acompanhando a elevação da razão de espalhamento. Entretanto, Uemura<sup>[45]</sup> propôs que o parâmetro de ordem torna-se espacialmente inhomogêneo devido a realização de substituições químicas e que sua amplitude é totalmente suprimida próximo das impurezas.

Por outro lado, estudos experimentais<sup>[46]</sup> atribuem a depressão de  $T_c$  no sistema  $YBa_2(Cu_{1-x}Zn_x)_3O_{7-\delta}$  a efeitos de desordem e a redução na densidade efetiva de portadores nos planos supercondutores de Cu-O<sub>(2)</sub> o que induziria um decréscimo de estados N(E). Este ponto de vista não foi bem aceito devido ao fato de que o Zn apresenta um estado fixo de oxidação +2 similar ao dos átomos de Cu localizados nos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> e também por que o valor dos seus respectivos raios iônicos são comparáveis. Então, em virtude disso, acredita-se que a dopagem com átomos de Zn não exerce grande influência sobre o balanço de cargas nos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Portanto, uma possível redução da concentração de lacunas não seria o fator responsável pela depressão do mecanismo supercondutor para este sistema.

Entretanto, Gupta<sup>[47]</sup> afirma que embora a adição de impurezas de Zn ao  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  não provoque alterações significativas na densidade de portadores, ela pode colaborar para a não uniformidade da distribuição destes o que por sua vez perturbaria consideravelmente a integridade eletrônica dos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> contribuindo assim para a degradação da supercondutividade neste composto. Gupta sugere que para pequenas concentrações de impurezas, as mudanças na estrutura eletrônica dos planos de Cu-O<sub>(2)</sub> estariam ligadas à possíveis modificações locais na densidade de portadores sem provocar uma mudança significativa da densidade de portadores como um todo.

### **2.3 - O Sistema $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$**

#### **2.3.1 - Propriedades Estruturais**

Diversos estudos experimentais realizados em amostras policristalinas de  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$  revelam que o limite de solubilidade do Mg no sítio do cobre é bem pequeno. Um dos estudos pioneiros realizados neste sistema,<sup>[48]</sup> aponta para um limite de solubilidade de até 20%. Contrapondo a este valor, Tiernam<sup>[49]</sup> defende um índice menor do que 1%. Entretanto, em recentes estudos, Raffo<sup>[40]</sup> e Figueiras<sup>[50]</sup> apontam respectivamente para um limite de solubilidade variando entre 2.5 %

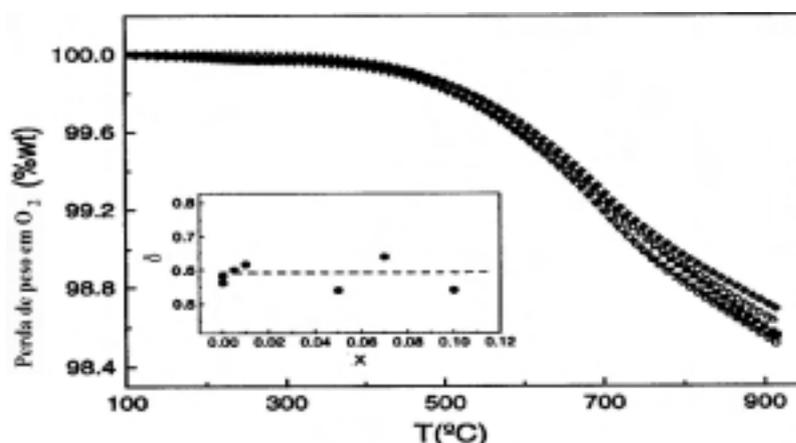
## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

( $x = 0.075$ ) e 5 % ( $x = 0.15$ ), ambos enfatizam a formação de fases espúrias para concentrações superiores a 5 % de Mg. A baixa solubilidade para os átomos de Mg no sítio do Cu é também verificada no processo de produção de amostras texturizadas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dopadas com Mg.<sup>[50]</sup> As amostras texturizadas foram crescidas utilizando-se o método de “top seeding” e utilizando a seguinte estequiometria:  $YBa_2Cu_3O_7 + 30 \text{ wt\% } Y_2BaCuO_5 + \alpha \text{ wt\% } MgO$ , onde  $\alpha$  representa a porcentagem de MgO empregada e varia entre os valores de 0.05 e 17 % do peso da amostra (wt). A partir de análises de mapeamento por microscopia eletrônica varredura (SEM) foi detectada a existência de segregações provenientes de partículas de MgO. Estas segregações foram observadas em amostras onde a concentração de MgO utilizada foi superior a 1 wt%. Particularmente, na amostra com 17 wt% verificou-se que a segregação de partículas de MgO mantém seus tamanhos e forma esférica habituais. Este estudo comprova a baixa solubilidade apresentada pelo Mg na estrutura do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .

No que tange ao comportamento dos parâmetros de rede<sup>[40]</sup> em função da dopagem com Mg, se observa que os eixos  $a$  e  $b$  do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  dopado com Mg não mudam seus valores de maneira drástica e nenhuma variação da distorção ortorrômbica  $(b-a)/(b+a)$  foi observada. No entanto, o parâmetro de rede  $c$  mostra um decréscimo significativo e tendência a um valor de saturação em função do aumento da quantidade de Cu substituída por Mg.

Segundo Raffo, a tendência de saturação apresentada pelo parâmetro  $c$  em função do aumento da concentração de Mg no  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$  juntamente com a observação do surgimento de fases espúrias para  $x > 0.075$  sugerem que os átomos de Mg entram na estrutura do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e substituem preferencialmente o sítio do Cu com o limite de solubilidade inferior a 2.5%.

Figueiras et al<sup>[50]</sup> confirmam esta hipótese por meio de análises termogravimétricas (TGA), realizadas em atmosfera de oxigênio (1 bar), de amostras policristalinas de  $YBa_2(Cu_{1-x}Mg_x)_3O_{7-\delta}$  para  $x \leq 0.1$ . A TGA permite a determinação da perda de oxigênio ( $\delta$ ) quando a temperatura é elevada a um valor acima da transição estrutural teragonal-ortorrômbica do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . A perda de oxigênio,  $\delta$  observada em 900°C é aparentemente independente do montante de átomos de Mg substituídos. Os resultados são apresentados na *fig. 2.10*.



**Fig. 2.10** - Análises termogravimétricas em atmosfera de  $O_2$  para o  $YBa_2(Cu_{1-x}Mg_x)_3O_{7-\delta}$ <sup>[50]</sup>

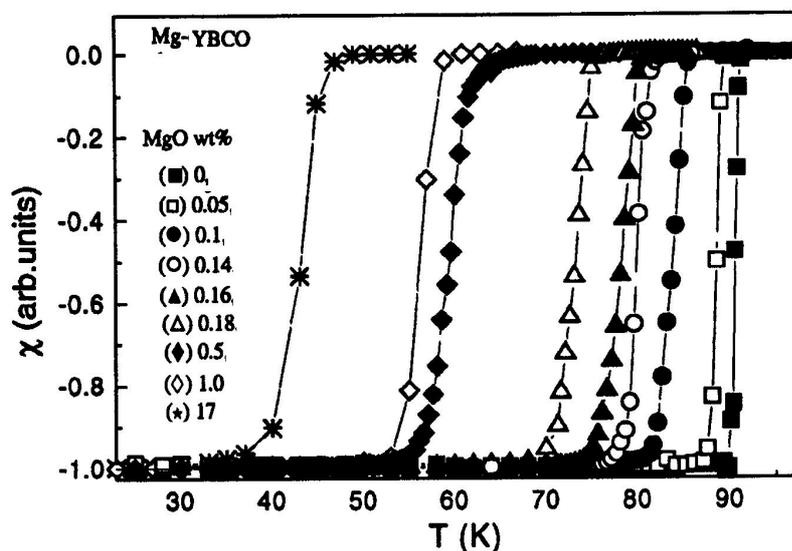
## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

De acordo com Figueiras, enquanto esse comportamento de  $\delta$  no  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$  é similar ao encontrado no sistema  $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$ , ele é muito diferente do obtido para outras substituições iônicas, como  $Fe^{3+}$  ou  $Al^{3+}$  nas quais é observado um decréscimo de  $\delta$  em função do montante substituído.<sup>[51]</sup> Partindo desta analogia, os autores sugerem que os átomos de  $Mg^{2+}$  substituem os átomos de Cu nos planos de  $Cu-O_{(2)}$  o que já fora constatado, por meio de difração de nêutrons, para o sistema dopado com Zn.<sup>[52]</sup>

### 2.3.2 - O Comportamento de $T_c$

O comportamento em função da dopagem do Cu com Mg para  $T_c$ , foi estudado em detalhes por Figueiras et al<sup>[50]</sup> em amostras policristalinas e texturizadas.

A *fig. 2.11* apresenta as curvas de suscetibilidade magnética DC em função da temperatura, para  $H = 0.003$  kOe // c, obtidas em amostras texturizadas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  para diferentes concentrações de MgO.



**Fig. 2.11** - Curvas de Magnetização para amostras de  $YBa_2Cu_3O_7 + 30$  wt%  $Y_2BaCuO_5 + \alpha$  wt% MgO. Os símbolos representam o conteúdo nominal de MgO em wt%.<sup>[50]</sup>

O valor de  $T_c$ , segundo os autores, foi definido como o ponto médio da transição magnética. Um decréscimo acentuado em  $T_c$  é observado mesmo para pequenas concentrações de MgO. Particularmente, para amostra com 17 wt% de MgO o valor de  $T_c$  foi reduzido para 45K. Devemos ressaltar a pequena largura da transição supercondutora apresentada por todas as amostras.

A análise dos resultados ilustrados pela *fig. 2.11* proporciona a obtenção do comportamento de  $T_c$  em função do conteúdo nominal de MgO presente no peso da amostra (wt%), representado por  $\alpha$  na *fig. 2.12 a*. O coeficiente  $\alpha$  é definido a partir da fórmula estequiométrica  $YBa_2Cu_3O_7 + 30$  wt%  $Y_2BaCuO_5 + \alpha$  wt% MgO empregada no processo de texturização. Por outro lado, a *fig. 2.12 b* representa o

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

desempenho de  $T_c$  em função da porcentagem real de átomos de Mg absorvida pela estrutura do composto  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$  representada pelo símbolo  $x$  (% at) onde uma comparação com o efeito produzido em  $T_c$  pela dopagem com átomos de Zn é justaposta.

A *fig. 2.12 a* apresenta dois regimes distintos para o comportamento de  $T_c(\alpha)$ , os quais podem ser separados em: Um regime onde  $T_c$  decresce linearmente em função do conteúdo de MgO para  $\alpha < 0.3$  wt% e um regime que mostra uma tendência à saturação do valor de  $T_c$  para  $\alpha > 0.3$  wt%, onde  $\alpha$  representa o valor da porcentagem de MgO.

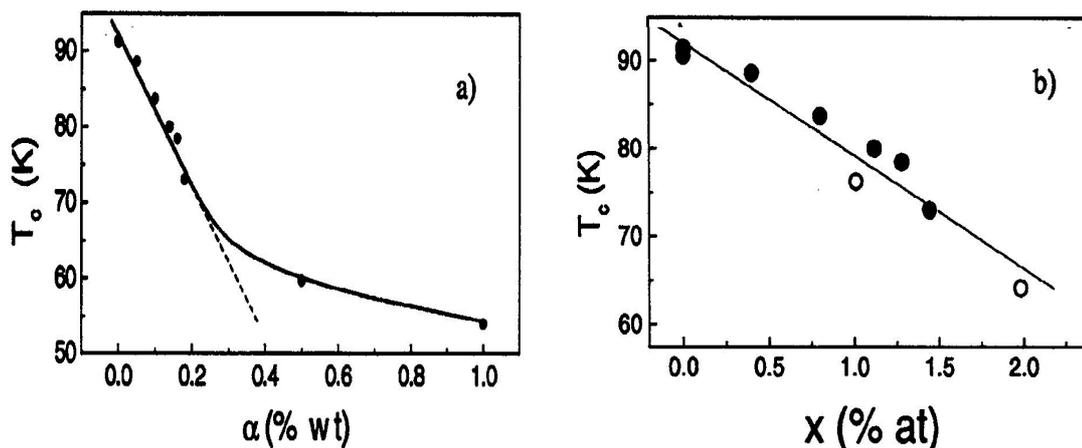


Fig. 2.12 a) -  $T_c(\alpha)$  em função do conteúdo de MgO em wt%.<sup>[50]</sup>

2.12 b) -  $T_c$  em função de  $x$  (% at).<sup>[50]</sup>

Analisando este comportamento de  $T_c$ , chegamos à conclusão de que o decréscimo linear apresentado por  $T_c$  reflete a região composicional onde todos os átomos de Mg são incorporados a estrutura do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  no sítio do Cu e o composto assume a forma estequiométrica de  $YBa_2(Cu_{1-x}Mg_x)_3O_{7-\delta}$ . Conforme ilustra a *fig. 2.12 b*, este ato permite estimar a porcentagem atômica de átomos de Mg que substituí os átomos de Cu no supercondutor  $YBa_2(Cu_{1-x}Mg_x)_3O_{7-\delta}$  para cada composição nominal de  $\alpha$  (wt%).

Na *fig. 2.12 b*, o decréscimo linear de  $T_c(x)$  segue a razão  $dT_c/dx \sim 12$  K/at% de Mg, símbolos fechados. Esta taxa  $dT_c/dx$  apresenta um valor similar ao obtido, a partir de medidas de resistividade elétrica, em uma amostra policristalina dopada com Mg<sup>[40]</sup> (11 K/at%) e com Zn.<sup>[53]</sup> Particularmente, os valores de  $T_c(x)$  para a amostra dopada com Zn (símbolos abertos) são comparados com os obtidos para amostra texturizada de Mg na *fig. 2.12 b*.

Por outro lado, é importante ressaltarmos a clara semelhança observada entre os sistemas dopados com Mg e Zn o que reforça a tese de que os átomos de  $Mg^{2+}$  substituem os átomos de Cu nos planos de  $Cu-O_{(2)}$ .

## Capítulo 2 - O Efeito da Adição de Sr, Zn e Mg na Supercondutividade do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

### **2.3.3 - O Mecanismo de Depressão para $T_c$**

Embora os átomos de Zn e Mg apresentem um nível de valência igual a +2 e ambos comportam-se como impurezas não magnéticas, que substituem preferencialmente os átomos de Cu nos planos de  $CuO_2$  na estrutura do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , é importante ressaltar que estes átomos apresentam algumas diferenças. Por exemplo, suas estruturas eletrônicas são diferentes (Zn  $4s^2d^{10}$  e Mg com  $3s^2$ ). No que tange a efeitos estruturais, verifica-se que a substituição parcial do Cu por Mg provoca uma maior diminuição no tamanho da cela unitária do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  do que o Zn, isso se deve ao menor tamanho do átomo de Mg em relação ao de Zn ( $r_{Mg}^{2+}=0.65\text{Å}$  e  $r_{Zn}^{2+}=0.75\text{Å}$ ).

Por outro lado, essas diferenças não impedem que a supressão das propriedades supercondutoras no composto dopado parcialmente com átomos de Mg apresentem resultados semelhantes aos obtidos em sistemas dopados com átomos de Zn. Baseado nessa peculiaridade, vários autores concluem que as teorias formuladas para explicar as causas responsáveis pela depressão do mecanismo supercondutor do sistema  $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$  podem ser estendidas ao composto  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$ .

No entanto, Raffo<sup>[40]</sup> atribui a depressão de  $T_c$  no sistema  $YBa_2Cu_{3-x}Mg_xO_{7-\delta}$  a um possível efeito de desordem no interior dos grãos supercondutores. Efeito esse, produzido pela dopagem com átomos de Mg. O aumento da interação Coulombiana reduziria a amplitude do parâmetro de ordem supercondutor e desta forma a temperatura crítica de transição,  $T_c$  assumiria valores menores. Este raciocínio está fundamentado no fato de que o átomo de Mg não apresenta elétrons no nível eletrônico d e, portanto, a supressão do mecanismo supercondutor não pode ser atribuída ao distúrbio dos orbitais de hibridização do cobre 3d e oxigênio 2p

## ***Capítulo 3 - Irreversibilidades Magnéticas nos HTSC***

Nesse capítulo, ilustraremos e discutiremos algumas propriedades magnéticas dos HTSC.

Inicialmente, abordaremos alguns conceitos básicos utilizados na caracterização da dinâmica de fluxo desses materiais.

Num segundo momento, nos deteremos à supercondutividade intergranular onde discutiremos as peculiaridades fenomenológicas inerentes à dinâmica de fluxo de Josephson em supercondutores granulares contrastando-a com a dinâmica de fluxo intragranular de Abrikosov.

Finalizaremos este capítulo descrevendo os principais aspectos teóricos empregados na interpretação da linha de irreversibilidade magnética, LIM nos HTSC.

### ***3.1 - Conceitos Fundamentais***

#### ***3.1.1 - Diagrama de Fase H-T***

As duas características necessárias para que um material seja denominado de supercondutor são resistividade nula e diamagnetismo perfeito (efeito Meissner). Essas propriedades ocorrem sempre abaixo da temperatura de transição normal-supercondutora  $T_c(H)$  chamada de temperatura crítica de transição.

Os HTSC são classificados como sendo supercondutores do tipo II, conforme discutido na seção 1.4.

Os supercondutores do tipo II apresentam diamagnetismo perfeito apenas para campos magnéticos aplicados menores que um determinado campo crítico denominado de  $H_{c1}(T)$ . Para campos maiores do que  $H_{c1}(T)$  a energia de superfície torna-se negativa, fato que favorece a penetração de campo no interior do supercondutor.

Um diagrama de fases de campo médio  $H-T$  para os supercondutores de alto  $T_c$  é ilustrado pela *fig. 3.1*.

O diagrama inicialmente é constituído por uma fase Meissner, caracterizada pela completa expulsão do fluxo magnético em campos aplicados  $H < H_{c1}$ .

Para campos  $H_{c1} \leq H \leq H_{c2}$  temos a fase mista, onde  $H_{c1}$  é o valor de campo crítico inferior o qual marca o início da penetração da primeira linha de fluxo no interior do supercondutor. Esta linha assume a forma de um fluxóide blindado por vórtices de supercorrentes. Na fase mista, o material é dividido entre regiões normais e supercondutoras ou seja, a fase mista é caracterizada pela existência de um efeito Meissner incompleto devido a penetração parcial do campo em forma de fluxóides.

À medida que o campo magnético aplicado torna-se mais intenso, a densidade de fluxóides no interior do material aumenta até atingir um ponto no qual os núcleos normais dos vórtices percolam. Isso ocorre quando  $H = H_{c2}$ , onde  $H_{c2}$  é denominado de campo crítico superior e delimita os estados supercondutor e normal. Para campos maiores que  $H_{c2}$  o material recupera o estado metálico normal.

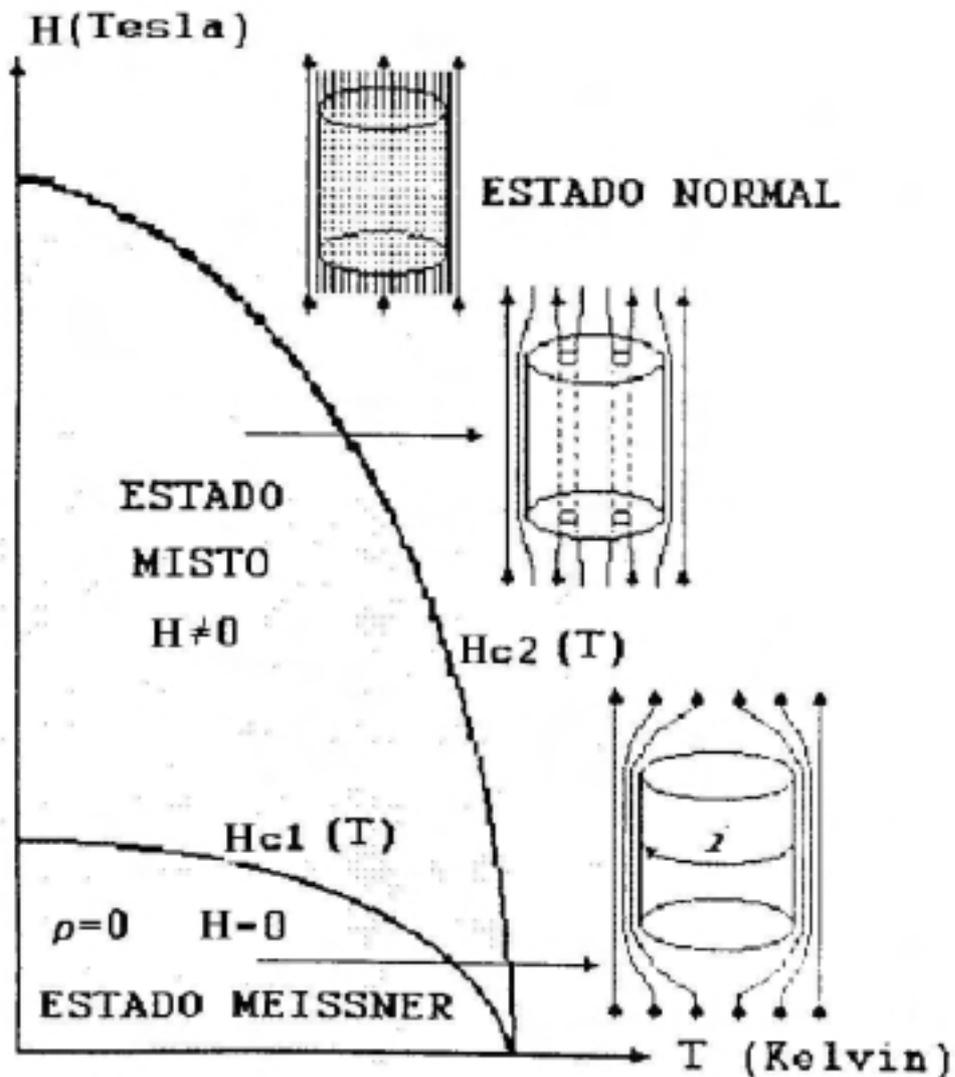


Fig. 3.1 - Diagrama H-T de fases de campo médio para um supercondutor do tipo II.

### 3.1.2 - Estrutura de Um Vórtice

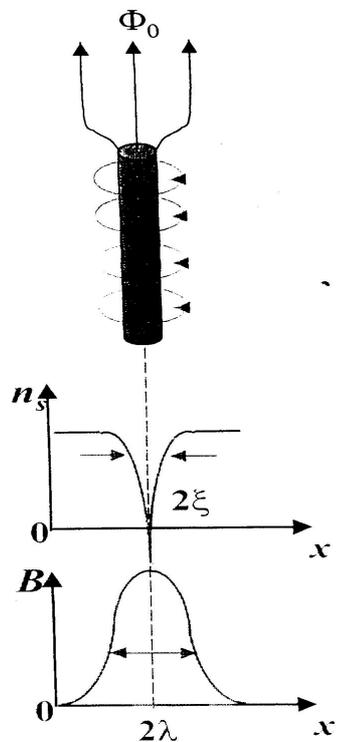
No estado misto a penetração do campo magnético no interior do supercondutor ocorre na forma de linhas de fluxo magnético quantizadas denominadas de fluxóides ou "fluxons", onde cada uma dessas linhas de fluxo contém um quantum de fluxo magnético,  $\Phi_0$ . A *fig. 3.2* ilustra a representação esquemática de um vórtice.

Conforme ilustra a figura, o fluxóide apresenta uma forma cilíndrica sendo constituído por um núcleo, no qual o condutor está no estado normal, de raio igual a  $\xi$  (comprimento de coerência de Ginzburg - Landau). Este núcleo é circundado por um vórtice de supercorrentes de blindagem cuja densidade diminui juntamente com o campo magnético local.

A amplitude do parâmetro de ordem supercondutor assim como a densidade de superpartículas,  $n_s$ , varia com a posição em relação ao núcleo do fluxóide, desde um

valor zero (no centro do vórtice) até o patamar  $n_s$  para  $x = \xi$ , conforme ilustra a *fig. 3.2*.

Ao longo deste trabalho, estaremos nos referindo aos fluxóides blindados por vórtices de supercorrentes apenas pela denominação de vórtices.



$\xi \rightarrow$  Comprimento de coerência, equivale ao raio do vórtice em torno de  $10-20 \text{ \AA}$ .<sup>[54]</sup>

$\lambda \rightarrow$  Comprimento de penetração, valores entre  $1000$  e  $2000 \text{ \AA}$ .<sup>[54]</sup>

$n_s \rightarrow$  Densidade de superpartículas

$\Phi_0 \rightarrow$  "Quantum" de fluxo magnético

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2.067 \cdot 10^{-15} \text{ Weber}$$

$h$  - Constante de Plank

$e$  - Carga do elétron

Fig. 3.2 - Estrutura do vórtice.

### 3.1.3 - Rede de Vórtices de Abrikosov: Supercondutividade Intragranular

Como foi dito nos itens anteriores, quando um supercondutor encontra-se no estado misto, o campo magnético se estabelece no seu interior na forma de vórtices. Estes vórtices interagem entre si por forças de Lorentz que atuam entre as supercorrentes e o campo magnético contido no vórtice, sendo assim, os vórtices apresentam um comportamento repulsivo a medida em que se aproximam.

Para um supercondutor homogêneo, a configuração de arranjo entre os vórtices, a qual corresponde ao estado de menor energia possível, é o de uma rede triangular ou hexagonal. Esta rede recebe a denominação de rede de Abrikosov e encontra-se ilustrada na *figura 3.3*.

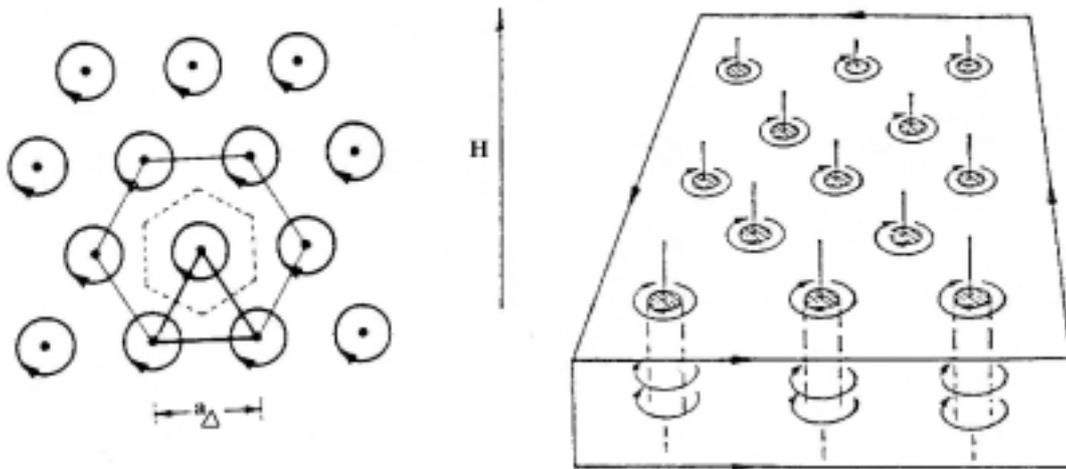


Fig. 3.3 - Rede de vórtices de Abrikosov para um supercondutor do tipo II homogêneo.

A distância de separação entre os vórtices no arranjo triangular é dada por:

$$a_{\Delta} = 1.075 \sqrt{\frac{\Phi}{B}} \quad (3.1)$$

onde  $a_{\Delta}$  é o valor do parâmetro de rede.

Em supercondutores granulares, os vórtices localizados no interior dos grãos, denominados de vórtices intragranulares, se arranjam em uma rede de vórtices de Abrikosov.

### 3.1.4 - O "Flux Pinning"

O aprisionamento de vórtices por defeitos existentes na rede cristalina do supercondutor é chamado de "flux pinning".

A existência de centros de "pinning" pode ser atribuída à variações locais de  $\xi$  e  $\lambda$  devido à defeitos. No centro de um vórtice o parâmetro de ordem deve ser localmente anulado. Assim, as regiões, nas quais o parâmetro de ordem é naturalmente deprimido, tornam-se energeticamente mais favoráveis para a criação do vórtice, razão pelo qual o mesmo tende a ser aprisionado pelos defeitos do material.

Quando a rede de vórtices existe, o "flux pinning" de apenas alguns dos vórtices é suficiente para que a rede seja aprisionada como um todo. A presença de tais centros de "pinning" dispostos numa configuração geométrica aleatória causa uma distorção da rede de vórtices, ou seja, deformações semelhantes às que ocorrem devidos a defeitos na rede cristalina, discutidos na seção 1.5. Dependendo da concentração desses defeitos, a distorção da rede de vórtices pode ser tão grande que falar em rede não faz mais sentido. Ocorre portanto, a perda da ordem translacional de longo alcance e a amorfização dessa rede. O tipo e a dimensão dos defeitos na rede de

vórtices depende da distribuição dos centros de "pinning" e sua interação com os vórtices.

Portanto, se um vórtice se situar num desses defeitos do material, o sistema ganhará um montante de energia de "pinning",  $U_P$  o qual será igual à energia de condensação do volume do vórtice,  $V$  aprisionado pelo defeito. Então e será dada por:

$$U_P = \Delta E \times V = \frac{1}{8\pi} H_c^2 V \quad (3.2)$$

onde  $V$  é o volume aprisionado do vórtice e  $\Delta E$  é a energia de condensação por unidade de volume a qual é igual a  $\Delta E = \frac{1}{8\pi} H_c^2$ , onde  $H_c$  é o campo crítico.

A força de "pinning" elementar,  $F_P$  a qual corresponde ao gradiente da energia do vórtice, será igual à razão entre a energia de "pinning",  $U_P$  e a extensão do defeito cristalino.

O mecanismo de "flux pinning" nos HTSC pode ser aprimorado artificialmente através da introdução de modificações microestruturais e composicionais. Entre elas destacam-se a irradiação, a precipitação de fases e a dopagem química.

### 3.1.5 - Efeitos Dissipativos

Quando uma densidade de corrente externa,  $J$  flui por um supercondutor no estado misto, os vórtices sofrerão a ação da Força de Lorentz, definida por:

$$\vec{F}_L = \vec{J} \times \vec{B} \quad (3.3)$$

Então, a  $F_L$  tende a colocar os vórtices em movimento com uma velocidade de deriva  $v_d$ .

O movimento de vórtices induz um campo elétrico,  $\vec{E}$  anti-paralelo a  $\vec{J}$  dado por:

$$\vec{E} = \vec{B} \times \vec{v}_d \quad (3.4)$$

Este campo elétrico atua como uma força contra-eletromotriz dissipando energia da densidade de corrente aplicada,  $J$ . Portanto, um supercondutor do tipo II, no estado misto, comporta-se como um condutor dissipativo quando percorrido por uma densidade de corrente  $J$ , a menos que o movimento dos vórtices seja impedido mediante o mecanismo de "flux pinning", discutido na seção anterior .

Assim sendo, quando a força de arraste dos vórtices,  $F_L$  é apenas compensada pela força de "pinning",  $F_p$ , se diz que o sistema está no estado crítico, no qual  $\vec{F}_L = -\vec{F}_P$ . Segundo o modelo de Bean,<sup>[55]</sup> existe um valor limite para a densidade de

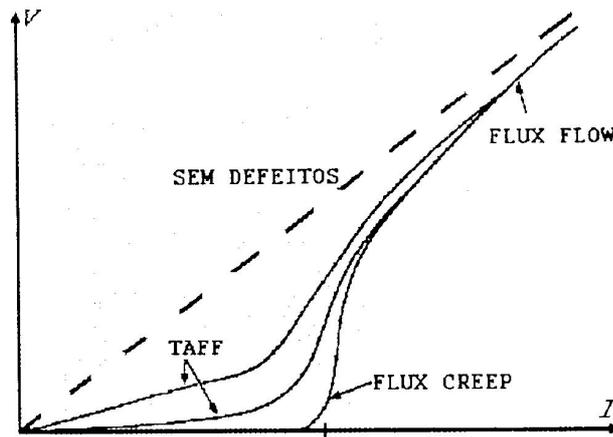
super corrente macroscópica,  $J_c(H)$ , a qual um supercondutor pode transportar. Esse valor é definido pela eq. (3.6):

$$F_L = F_P = J_c B \quad (3.5)$$

onde:

$$J_c = \frac{F_P}{B} \quad (3.6)$$

Dependendo do valor de  $J$  juntamente com o efeito de ativação térmica dos vórtices é possível ressaltar três regimes em relação a dinâmica de vórtices, que representamos pelas curvas  $V-I$  da *figura 3.4*.



**Fig. 3.4 -** Curvas  $V-I$  para os regimes "flux flow", "flux creep" e "flux flow" térmicamente assistido.

a) Regime de "Flux-Flow": Quando tivermos  $J > J_c$  e conseqüentemente  $F_L > F_P$ , os vórtices começarão a movimentar-se continuamente resultando em um regime dissipativo. Comportamento teórico representado pela linha pontilhada da curva  $V-I$ .

b) Regime de "Flux-Creep": Se  $J < J_c$  e  $F_L < F_P$  estaremos no regime denominado de "flux-creep", nesse regime, pacotes de vórtices térmicamente ativados saltam entre estados metaestáveis separados por barreiras de potencial. A resposta característica da curva  $V-I$  segue um comportamento exponencial dado pela equação:

$$V = V_0 \exp\left(-\frac{U}{k_B T}\right) \quad (3.7)$$

onde  $V_0$  é uma amplitude proporcional à probabilidade de ocorrência do salto,  $U$  é a energia necessária para pular a barreira em  $T \neq 0$  e  $k_B$  é a constante de Boltzmann.

c) Regime de "Flux-Flow" Térmicamente Assistido: Na situação,  $J \ll J_c$  e  $F_L < F_p$  teremos o regime conhecido como "flux-flow" termicamente assistido (TAFF). Este processo é semelhante ao de "flux-creep" e geralmente ocorre no limite de pequenas barreiras de potencial. De acordo com a *fig. 3.4* ele é caracterizado por uma resposta elétrica ôhmica com pequenos valores de  $J$  aplicados. A ativação térmica proporciona o salto sobre a barreira de potencial. O comportamento de  $V-I$  será dado segundo:

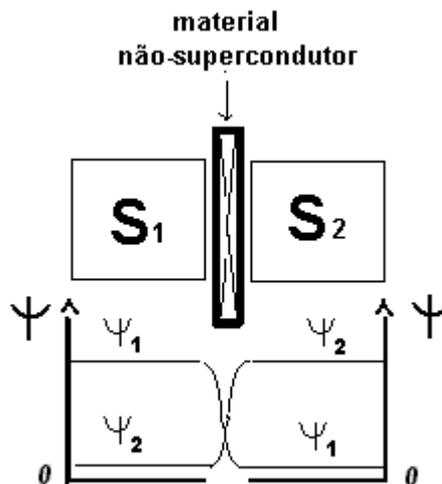
$$V = V_0 I \exp\left(-\frac{U_0}{k_B T}\right) \quad (3.8)$$

onde  $U_0$  representa a energia de ativação necessária para que a linha de fluxo supere a barreira de potencial em  $T = 0$ .

### 3.2 - Supercondutividade Intergranular: Vórtices de Joshepson

#### 3.2.1 - Introdução

O efeito Josephson ocorre quando há tunelamento de pares de Cooper entre dois supercondutores separados por uma fina barreira isolante (supercondutor-isolante-supercondutor, SIS) ou metal normal (supercondutor-metal normal-supercondutor, SNS) conforme propõe a *fig. 3.5*, onde  $\psi_1$  e  $\psi_2$  representam respectivamente a função de onda macroscópica do material supercondutor  $S_1$  e  $S_2$ .



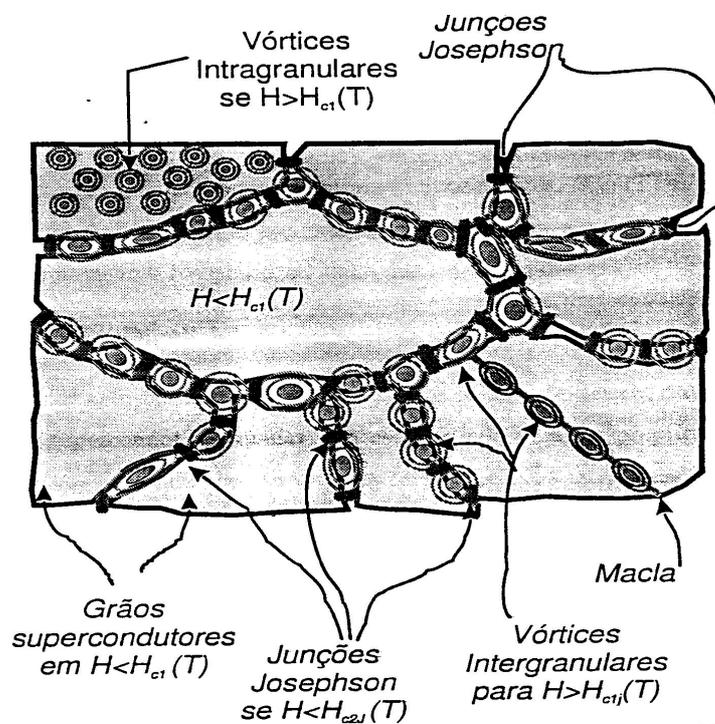
**Fig. 3.5** - Representação esquemática do efeito Josephson em dois materiais supercondutores separados por uma fina camada isolante ou metal-normal.

Esse tunelamento se dá devido a penetração de barreira e a transmissão do parâmetro de ordem do supercondutor  $S_1$  para o interior do supercondutor  $S_2$ . A ocorrência da penetração de  $\psi$  na barreira de isolante ou metal e a sua eventual transmissão ( $T\psi$ ) é denominado de efeito de proximidade.<sup>[56,57]</sup>

Um parâmetro importante é a máxima densidade de corrente efetiva  $J_{0J}$ , que uma junção pode transportar sem que ocorra dissipação de energia. Se uma densidade de corrente  $J > J_{0J}$  passa pela junção, então uma certa diferença de potencial, e por consequência, uma resistência elétrica aparecem na junção provocando dissipação de energia.

### 3.2.2 - Vórtices de Josephson - Vórtices Intergranulares

Como vimos anteriormente, na fase mista de um supercondutor isotrópico perfeito (sem defeitos), os vórtices arranjam-se na forma de uma rede hexagonal ou triangular denominada de rede de Abrikosov. Entretanto, na sua grande maioria, os HTSC são materiais granulares onde os vórtices de Abrikosov recebem a denominação de vórtices intragranulares e estão dispostos segundo uma rede triangular ou hexagonal no interior de grãos supercondutores conforme propõe a *fig. 3.6*.



**Fig. 3.6** - Representação esquemática para os vórtices intergranulares (vórtices de Josephson) e intragranulares (vórtices de Abrikosov).

Por outro lado, podemos pensar que o acoplamento entre esses grãos supercondutores ocorre através de "links" os quais podem transmitir a coerência de fases para o sistema. O "link" pode ser feito através de efeito de proximidade ou efeito Josephson conforme discutido na seção 3.2.1.

Seguindo esse raciocínio, Clem<sup>[58]</sup> elaborou um modelo teórico que trata o supercondutor como sendo um material constituído por uma matriz de grãos anisotrópicos, sendo que, os grãos vizinhos próximos nessa matriz são acoplados por junções Josephson idênticas de corrente crítica de Josephson  $J_{0J}$ .

Devido ao fato dos acoplamentos intergranulares serem fracos, o campo magnético penetra com maior facilidade e profundidade na região situada entre os grãos até atingir um certo comprimento de penetração  $\lambda_J$  ao longo das fronteiras de grão do que nas regiões intragranulares (representadas pelo comprimento de penetração  $\lambda_G$ ), uma vez que  $\lambda_J \gg \lambda_G$ . Portanto, no momento que tivermos  $H > H_{c1J}$  o campo magnético externo penetra o supercondutor granular na forma de vórtices intergranulares de Josephson onde a forma destes encontra-se relacionada às forças de "pinning" intergranulares e do gradiente de campo local na amostra, conforme revelam estudos da resposta diamagnética ZFC realizado em cerâmicas supercondutoras.<sup>[59]</sup>

Analogamente como ocorre para o vórtice intragranular, o vórtice intergranular de Josephson, idealizado na *fig. 3.6*, também transporta um "quantum" de fluxo magnético confinado em uma área seccional. A diferença básica existente entre os vórtices de Abrikosov e Josephson é que esse último passa através de regiões intergranulares, onde o parâmetro de ordem é fraco ou nulo, e não através do grão como o vórtice de Abrikosov.

O "pinning" desses vórtices tem origem no caráter discreto e inhomogêneo das junções intergranulares. O termo  $J_{cJ}(H, T)$  representa a densidade de corrente crítica de transporte intergranular em um supercondutor, a qual, apresenta um valor inferior à  $J_{0J}$ , definida como sendo a máxima densidade de corrente efetiva permitida pela junção de Josephson. Isto é possível porque além de transportar as supercorrentes dos vórtices intergranulares, tem de levar em consideração o valor da corrente de transporte aplicada ao material. Com o aumento do campo mais vórtices irão penetrar nas regiões intergranulares e,  $J_{cJ}$  será gradativamente suprimida, pois o aumento deste campo magnético irá enfraquecer e quebrar as junções suprimindo as  $J_{0J}$ .

Em campos mais altos ( $H > H_{c1}(T)$ ), dois processos ocorrem: Primeiro, o fluxo magnético penetra no grão na forma de vórtices de Abrikosov, deprimindo o parâmetro de ordem. Segundo, o acoplamento efetivo dos grãos é enfraquecido por causa da distorção de fase do parâmetro de ordem devida a aplicação de campo magnético.

Cada acoplamento entre supercondutores apresenta um campo crítico  $H_J(T)$  de desacoplamento. Podemos definir um campo crítico superior  $H_{c2J}(T)$  para o qual a supercondutividade intergranular como um todo sofre uma transição de fase. Analogamente existe uma temperatura crítica  $T_{cJ}(H)$ , que é determinada a partir do regime crítico da transição magnetoresistiva, e que se situa numa temperatura ligeiramente superior ao ponto onde a magnetoresistividade é zero.

Na situação ideal, quando  $T \rightarrow T_{cJ}(H)$  os vórtices intergranulares não podem permanecer aprisionados, pois a energia térmica pode facilmente excitar vórtices de um centro de "pinning" por sobre a barreira de potencial da junção Josephson para outro centro de "pinning" adjacente. Consequentemente  $J_{0J} \rightarrow 0$  efetivamente quando  $T \rightarrow T_{cJ}(H)$ .

Segundo Mohamed e Jung,<sup>[59]</sup> esses valores de campos críticos  $H_{c1J}(T)$  e  $H_{c2J}(T)$ , dependem de vários fatores como por exemplo, a geometria da amostra, dos grãos, da direção dos elos em relação ao  $H$  aplicado, da orientação relativa dos grãos devido ao caráter orbital de  $\psi$ , etc..

Por outro lado, muito pouco foi pesquisado sobre a existência e a relevância da dinâmica intergranular ou de Josephson em monocristais supercondutores granulares.

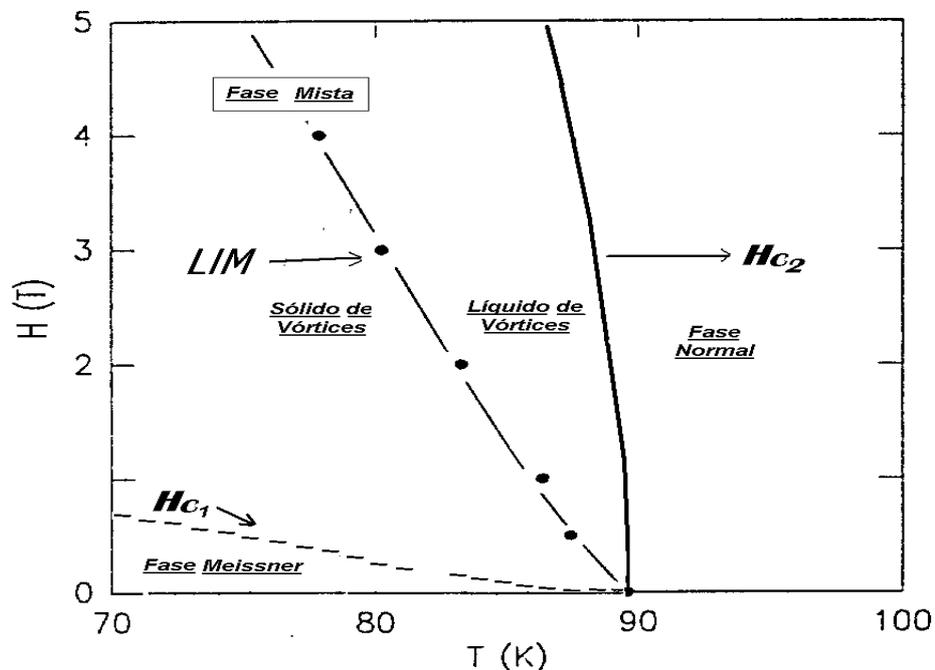
### 3.3 - A Linha de Irreversibilidade Magnética

#### 3.3.1 - Introdução

A irreversibilidade magnética em supercondutores do tipo II origina-se a partir do movimento viscoso do fluxo magnético sob a ação de uma força motriz. Este movimento ocorre devido a ativação térmica dos vórtices os quais conseguem superar as forças de "pinning".

Dentre as inúmeras propriedades magnéticas apresentadas pelos HTSC, a linha de irreversibilidades magnéticas, LIM apresenta-se como uma das mais pesquisadas. A sua interpretação, sob o ponto de vista teórico, ainda se encontra em aberto e é motivo de muitas controvérsias. A LIM caracteriza-se essencialmente por dividir a fase mista do diagrama  $H$ - $T$  desses materiais em duas regiões distintas. A região situada abaixo da LIM caracteriza-se pelo comportamento magnético irreversível, em outras palavras, imediatamente abaixo da LIM a mobilidade dos vórtices é restringida e em temperaturas mais baixas os vórtices encontram-se congelados numa fase sólida ou vidro de vórtices. Por outro lado, na região localizada acima da LIM o comportamento magnético é reversível, ou seja, os efeitos de aprisionamento de vórtices são inexistentes e os vórtices movimentam-se livremente.

A *fig. 3.7* ilustra um diagrama teórico caracterizando as regiões de comportamento magnético irreversível e reversível no plano  $H$ - $T$  de um HTSC.



**Fig. 3.7** - Diagrama  $H$ - $T$  genérico caracterizando as fases Meissner, mista e normal. A LIM apresenta-se como o limite de separação entre os regimes magnéticos reversíveis e irreversíveis conforme discutido no texto.

3.3.2 - Anisotropia Planar da LIM

A figura 3.8 ilustra as LIM para o supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  monocristalino.<sup>[60]</sup> Estas linhas foram definidas a partir de pontos experimentais  $T_{irr}(H)$  obtidos para campo magnético aplicado paralelo ao eixo  $c$  ( $H // c$ ) ou ao plano  $ab$  ( $H // ab$ ). A figura deixa clara a parte anisotropia planar da irreversibilidade magnética e do "pinning" que tem origem na estrutura planar intrínseca dos HTCS.

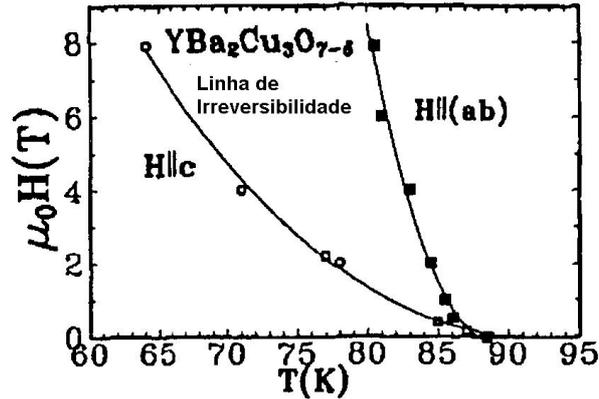


Fig. 3.8 - Linha de irreversibilidade magnética para um monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .<sup>[60]</sup>

Ilustramos hipoteticamente na fig. 3.9, o caso de campo magnético externo aplicado paralelamente aos planos de  $\text{Cu-O}_2$ , ( $H // ab$ ). Nessa configuração, os vórtices irão localizar-se nas camadas isolantes pois as mesmas apresentam espessura maior do que os planos de  $\text{Cu-O}_2$ . Na fig. 3.9,  $d_i$  e  $d_s$  representam a espessura da camada isolante e do plano supercondutor respectivamente. No  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,  $d_i \approx 8.5 \text{ \AA}$ <sup>[61]</sup> e  $d_s \approx 3.1 \text{ \AA}$ .<sup>[61]</sup> Então, quando tivermos  $H // ab$  e o supercondutor estiver sendo percorrido por uma densidade de corrente de transporte  $j$ , onde  $j // ab$  e  $j \perp H$ , a força de Lorentz atuará ao longo da direção  $c$ , conforme ilustra a figura, contudo, os vórtices terão seus movimentos restringidos ao plano  $ab$  permanecendo confinados às camadas isolantes que funcionarão similarmente à barreiras de Josephson colaborando assim para um efetivo mecanismo de "flux pinning" intrínseco para os vórtices ao longo do plano  $ab$ .<sup>[61]</sup>

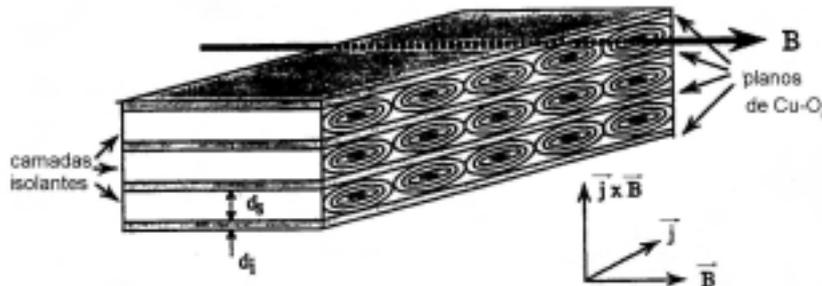
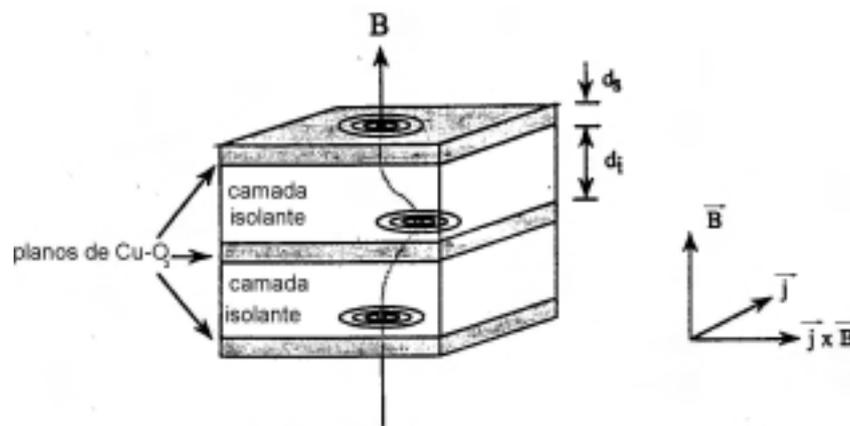


Fig. 3.9 - Representação para o mecanismo de "pinning" intrínseco para  $H // ab$ .<sup>[61]</sup>

Por outro lado, esse supercondutor estará sob a ação de uma força de Lorentz ao longo do plano  $ab$  quando estiver sendo percorrido, ao longo dos planos de  $Cu-O_2$ , por uma densidade de corrente  $j$  e igualmente estiver sendo aplicado um campo magnético externo ao longo do eixo  $c$ , ( $H // c$ ) conforme propõe a *figura 3.10*. Em supercondutores com elevados valores de anisotropia entre plano  $ab$  e eixo  $c$ , a estrutura do vórtice para  $H // c$  assume a forma de um empilhamento de vórtices panquecas bidimensionais confinados nos planos de  $Cu-O_2$  fracamente acoplados, *figura 3.10*. A repulsão dos vórtices panquecas no mesmo plano ocorre devido à força de Lorentz e o acoplamento em planos diferentes ocorre via atração dipolo magnético.<sup>[62]</sup> Em baixas temperaturas, este acoplamento fraco é o suficiente para estabilizar a rede de vórtices panquecas em um arranjo tridimensional  $3D$ . Contudo, na medida em que a temperatura é elevada, efeitos de "depinning" térmico passam a ser relevantes e o arranjo de vórtices muda de uma rede  $3D$  para um arranjo em uma rede bidimensional ( $2D$ ) de vórtices panquecas.<sup>[63]</sup>



**Fig. 3.10** - Representação esquemática dos vórtices panquecas desacoplados dentro dos planos de  $Cu-O_2$  e acoplados entre planos de  $Cu-O_2$  adjacentes, para  $H // c$ .<sup>[61]</sup>

### **3.3.2 - Modelos Teóricos**

Apesar da grande quantidade de informações e modelos existentes para a dinâmica de vórtices nos HTSC, intensos estudos do ponto de vista teórico e experimental vem sendo desenvolvidos com o principal objetivo de elucidar a dinâmica de vórtices existente nestes materiais.

No que tange a LIM, cinco modelos teóricos tem sido utilizados na interpretação dos resultados experimentais: o “flux creep” gigante,<sup>[64]</sup> a fusão da rede de vórtices,<sup>[65]</sup> os modelos de vidro supercondutor<sup>[66]</sup> ou vidro de vórtices<sup>[67]</sup> e o de vidro de Bose.<sup>[68]</sup>

O modelo de “flux creep” gigante fundamenta-se nos efeitos de ativação térmica na rede de vórtices de Abrikosov sob a ação de uma força motora e interpreta a LIM como sendo uma linha crítica do “flux creep” convencional ou seja, a LIM representaria um “crossover” entre uma região de “flux flow” de comportamento magnético reversível de uma região de comportamento magnético irreversível onde os efeitos de ativação térmica dos vórtices são predominantes.

Por outro lado, os outros quatro modelos fundamentam-se em fenômenos de transição de fase onde a LIM representaria a temperatura de ativação dos vórtices em relação ao centros de “pinning” do material em função da temperatura e do campo magnético aplicado. Sendo assim, a LIM comporta-se como uma fronteira entre as regiões líquido de vórtices e sólido de vórtices. Algumas interpretações teóricas para essa linha baseiam-se em similaridades com a teoria de vidros de “spin”, sugerindo que a LIM representa a ocorrência de uma transição de fase com quebra de ergodicidade.

A seguir, descrevermos detalhadamente cada um dos modelos listados acima.

#### **3.3.2.1 - “Flux Creep” Gigante (“Giant Flux Creep”)**

Uma das possíveis interpretações para a existência de uma linha de irreversibilidades magnéticas (LIM) nos HTSC, é dada por Yeshurun e Malozemoff, baseados nas idéias de Anderson e Kim para o mecanismo de “flux creep”.

O modelo proposto por Anderson e Kim,<sup>[69]</sup> para supercondutores do tipo II convencionais, prevê que as linhas de fluxo serão aprisionadas pelas várias imperfeições comuns à estrutura cristalina desses materiais, conforme descrito na seção 3.1.5. A concepção básica do mecanismo de “flux creep” encontra-se sedimentada no fato de que um vórtice pode ser termicamente ativado sobre uma barreira de “pinning”, mesmo que a força de Lorentz seja menor do que a força de “pinning”.

As particularidades que diferenciam o mecanismo de “flux-creep” gigante do “flux-creep” convencional são o elevado valor de  $T_c$  e a baixa energia de aprisionamento dos vórtices,  $U_0$  apresentados pelos HTSC.<sup>[64]</sup> Tal fato, se deve ao pequeno valor do comprimento de coerência  $\xi$  nos óxidos supercondutores de alto  $T_c$ .<sup>[5]</sup>

A *figura 3.11* ilustra o comportamento apresentado pela LIM em um monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .<sup>[64]</sup>

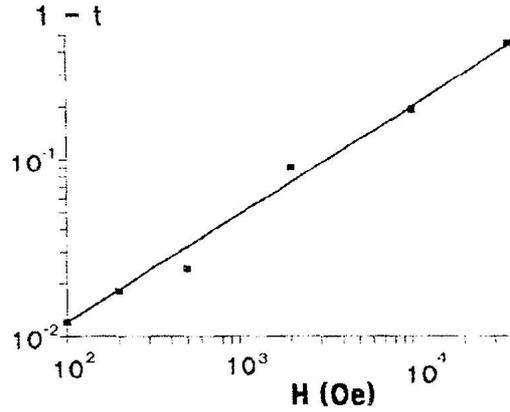


Fig. 3.11 - LIM obtida experimentalmente por Yeshurun e Malozemoff para um monocristal de YBaCuO para  $H // c$  onde  $t = T_{irr} / T_c$  é a temperatura reduzida.<sup>[64]</sup>

De acordo com Yeshurun e Malozemoff, o comportamento experimental apresentado pela LIM no diagrama  $H-T$ , obedece a seguinte lei de potências.

$$H^{2/3} \propto (1-t) \quad (3.9)$$

onde  $t = T_{irr} / T_c$  é a temperatura reduzida e  $T_{irr}$  é a temperatura de irreversibilidade. A eq. (3.9), foi obtida através das relações de escala que  $U_0$  mantém com  $H$  e  $T$ . Para isso, foi utilizada a fórmula de Anderson-Kim<sup>[69]</sup> para a energia de ativação térmica  $U_0$  a qual é dada por:

$$U_0 \approx \frac{H_c^2}{8\pi} a_0^2 \xi \quad (3.10)$$

onde  $(H_c^2/8\pi)$  é o termo referente a energia de condensação por unidade de volume e  $a_0^2 \xi$  representa o volume de excitação, no qual  $a_0 \sim (\phi_B)^{1/2}$  corresponde ao espaçamento existente entre as linhas de fluxo no campo  $B$  e  $\xi$  é o comprimento de coerência.

Por outro lado, Yeshurun e Malozemoff consideraram que nos HTSC o aprisionamento dos vórtices ocorre principalmente devido a efeitos coletivos. Isto se justifica, segundo esses autores, porque os óxidos supercondutores de alto  $T_c$  apresentam o parâmetro de Ginzburg-Landau,  $k \gg 1$  e possuem o parâmetro da rede de vórtices  $a_0 \ll \lambda$ .

Portanto, no limite  $T \sim T_c$ , esses autores utilizaram-se da relação de Anderson-Kim para  $U_0$  juntamente com as expressões de escala do tipo  $H_c \sim (1-t)$  e  $\xi \sim (1-t)^{1/2}$ , previstas pela teoria Ginzburg-Landau no limite limpo, obtendo assim a lei de potências da eq. (3.9) a qual ajusta os dados apresentados pela fig. 3.11.

Segundo o modelo de "flux creep" gigante, a LIM é interpretada como sendo essencialmente uma linha de "depinning" no plano  $H$ - $T$ . Acima desta linha, vórtices movimentam-se livremente, resultando em uma densidade de corrente crítica,  $J_c$ , nula ou próxima de zero. E para a região localizada abaixo desta linha,  $J_c$  apresentaria um valor finito, devido ao predomínio do aprisionamento do fluxo ("flux pinning").

### 3.3.2.2 - Fusão da Rede de Vórtices ("Vortex Melting")

Neste modelo, a LIM é discutida em termos da fusão da rede de vórtices de Abrikosov, devido à existência de flutuações térmicas.

A instabilidade demonstrada por qualquer rede bidimensional<sup>[70,71]</sup> frente a deslocamentos, devidos à efeitos de flutuações térmicas nas proximidades da temperatura de fusão da rede,  $T_M$ , resulta na ocorrência de uma transição de fase de segunda ordem por parte desta rede.

Os pequenos valores apresentados pelas constantes elásticas da rede de vórtices, devido ao pequeno valor de  $\xi$ , aliado ao elevado valor de  $T_c$ , o que implica em grande quantidade de energia térmica, são tidos como os principais responsáveis pela ocorrência do fenômeno de "flux melting" nos HTSC.<sup>[72,73]</sup>

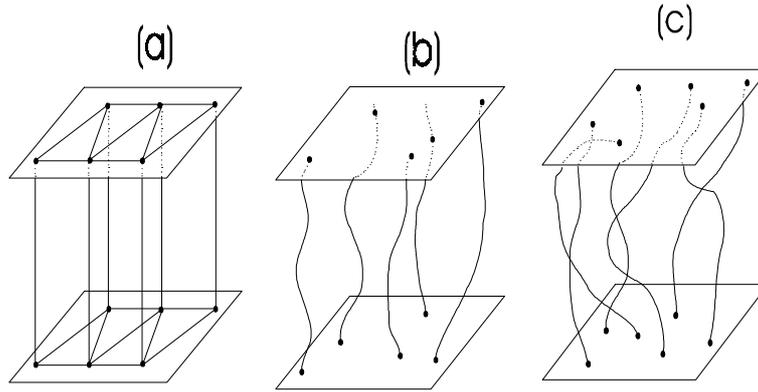
De acordo com esses fatos, as flutuações térmicas produzem deslocamentos aleatórios de grande amplitude a partir das posições de equilíbrio dos vórtices da rede de Abrikosov. Estes deslocamentos provocam uma possível perda das correlações existentes entre os mesmos. Um critério muito utilizado para determinar a ocorrência da fusão da rede de vórtices é o chamado critério de Lindemann.<sup>[74]</sup> Este critério utiliza como referência o valor do deslocamento quadrático médio,  $\langle u^2 \rangle^{1/2}$ . De acordo com o critério de Lindemann, a rede de Abrikosov fundirá quando  $\langle u^2 \rangle^{1/2} = \Lambda_L$  for igual a 10 % do parâmetro da rede de vórtices, onde  $\Lambda_L$  é dado por:

$$\Lambda_L = \left( \frac{2\pi L k_B T}{E} \right)^{1/2} \quad (3.11)$$

onde,  $k_B$  é a constante de Boltzmann,  $L$  é a espessura da amostra e  $E$  é a energia de formação por unidade de comprimento do vórtice.

A ocorrência destes deslocamentos pode provocar colisões entre os vórtices. Estas colisões são relevantes sempre que  $\Lambda_L$  assume um valor comparável ao espaçamento de linhas de vórtices,  $d_v \sim (\phi / B)^{1/2} = n^{-1/2}$ , onde  $n$  é o número de linhas de vórtice por unidade de área.

Segundo Nelson et al., quando este fenômeno ocorrer, dois novos regimes de fluxo deverão ocorrer. São eles: O líquido de vórtices desemaranhado ("disentangled flux liquid") e emaranhado ("entangled"), conforme ilustrado na *fig.3.12*.



**Fig. 3.12** - Representação das fases do modelo de fusão da rede de vórtices.<sup>[72]</sup> a) Rede de vórtices de Abrikosov, b) Líquido de vórtices não emaranhado e c) Líquido de vórtices emaranhado.

Então, quando  $\Lambda_L \ll n^{-1/2}$ , o regime predominante é o de “disentangled flux liquid” caracterizado por ocorrer em altas temperaturas e em baixas densidades de linhas de vórtices onde as linhas de vórtices não se interceptam (fig. 3.12b).

Por outro lado, quando a densidade de linhas de vórtice for tal que  $\Lambda_L \geq n^{-1/2}$ , o regime é denominado de “entangled flux liquid” e caracteriza-se por apresentar grandes amplitudes de deslocamento, culminando com uma configuração entrelaçada por parte das linhas de vórtices (fig. 3.12c).

Em 1989, Houghton et al.,<sup>[73]</sup> utilizando o critério de Lindemann, determinaram que a temperatura de fusão,  $T_M(H)$ , apresentava um valor ligeiramente menor que a temperatura crítica de transição,  $T_c(H)$ . Sendo assim, a curva de fusão estaria localizada logo abaixo da curva para  $H_{c2}(T)$ . Os autores ainda defendem que a curva de fusão apresenta um comportamento linear para uma ampla gama de campos. Entretanto, especificamente quando tivermos  $H \rightarrow 0$  e  $T \rightarrow T_c(0)$ , a curva, que descreve a fusão da rede de vórtices, obedece a seguinte lei de potências:

$$(1 - t)^2 \approx H \quad (3.12)$$

onde,  $t = T / T_c$ , é a temperatura reduzida.

Do ponto de vista experimental, Farrell et al.<sup>[65]</sup> utilizaram uma delicada balança de torção com o objetivo de medir a energia dissipada em monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  sem maclas, examinando o conjunto de temperaturas,  $T_{irr}(H)$ , obtidas para a LIM. O campo magnético foi aplicado na direção do eixo cristalográfico  $c$  dos monocristais.

O ajuste empregado por Farrell et al. para o conjunto de temperaturas,  $T_{irr}(H)$ , obtidas para a LIM foi o sugerido pela eq. (3.12), ou seja, dentro da teoria de fusão da rede de vórtices.

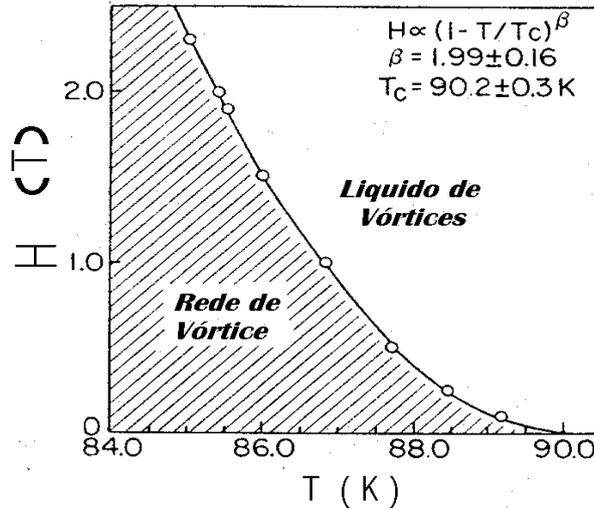


Fig. 3.13 - Diagrama de  $H \times T$  para o regime de "flux melting". A curva sólida, ajustada sobre os dados, obedece a eq. 3.12.<sup>[65]</sup>

### 3.2.2.3 - Vidro Supercondutor ("Superconducting Glass")

O estado de vidro supercondutor, baseado no modelo proposto por Ebner e Stroud<sup>[75]</sup> para a susceptibilidade em "clusters" supercondutores, foi empregado por Müller e colab.<sup>[66]</sup> para explicar o comportamento apresentado pela LIM em amostras cerâmicas supercondutoras de  $\text{La}_2\text{BaCuO}_{4-\delta}$ .

O modelo de vidro supercondutor, parte, inicialmente, do princípio da existência de um arranjo desordenado de grãos supercondutores, apresentando dimensões menores do que o comprimento de penetração,  $\lambda$  e fracamente acoplados via efeitos de proximidade ou por tunelamento Josephson.

O Hamiltoniano, utilizado para descrever o estado supercondutor para um sistema de grãos fracamente acoplados, é dado pela seguinte equação:

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij}(\vec{r}_{ij}, \vec{B}, T) \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij}) \quad (3.13)$$

onde  $J_{ij}$  é a energia de acoplamento entre os grãos  $i$  e  $j$  dada por:

$$J_{ij} = \frac{h}{2e} I_{ij} \quad (3.14)$$

sendo  $I_{ij}$  a corrente crítica supercondutora entre os grãos  $i$  e  $j$ .  $\theta_i$  e  $\theta_j$  são as fases do parâmetro de ordem nos grãos  $i$  e  $j$ , e os  $A_{ij}$  são dados pela equação:

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\Phi_0} \int \vec{H} \cdot d\vec{l} \quad (3.15)$$

onde,  $\Phi_0 = (hc/2e)$  é o quantum de fluxo, e os  $A_{ij}$  são os deslocamentos de fase entre os grãos  $i$  e  $j$ , devido à aplicação de campo magnético.

Algumas aproximações foram levadas em consideração na apresentação da eq. (3.13). Por exemplo, Ebner e Stroud consideram  $J_{ij} = J$  para os grãos primeiros vizinhos e zero para os demais e a possibilidade do termo  $J_{ij}$  depender de  $B$  ou de  $T$  não está sendo enfatizada. Ou seja, se o tamanho dos grãos for maior do que o comprimento de penetração, então o fluxo magnético será expulso da parte central dos grãos. Sendo assim, o campo magnético local,  $B$ , será menor que o aplicado,  $H$ . A situação se repete quando o comprimento de penetração não apresentar um valor superior ao da separação entre os grãos.<sup>[74]</sup>

Este modelo prevê a existência de uma fase de baixa temperatura, denominada de vidro supercondutor. Nesta fase, predomina a ocorrência do fenômeno de frustração, devida à existência de desordem e de acoplamentos de fase conflitantes.

A frustração de acoplamentos é introduzida pelo fator de fase  $A_{ij}$ , o qual causa deslocamentos de fase aleatórios entre os grãos, uma vez que, num sistema de grãos multiconectados, não é possível que se encontre uma configuração de fases que minimize simultaneamente as energias de acoplamento entre todos os pares de grãos.

Sendo assim, a LIM, determinada experimentalmente,<sup>[76]</sup> pode ser interpretada como uma linha de separação entre as fases vidro supercondutor e um sistema de grãos desacoplados.<sup>[130]</sup>

Do ponto de vista experimental, K. A. Müller e col.<sup>[66]</sup> verificaram que a lei de potência por eles utilizada na interpretação da LIM para a amostra cerâmica supercondutora de  $\text{La}_2\text{BaCuO}_{4-\delta}$  assemelha-se perfeitamente a funcionalidade utilizada para a interpretação da LIM em sistemas vidro de spin.<sup>[77]</sup> A partir dessa perfeita analogia, Müller e col. afirmam que o comportamento da LIM em supercondutores de alto  $T_c$ , na região de baixos campos magnéticos aplicados, é descrito por uma lei de potências do tipo de Almeida-Thouless (AT).<sup>[78]</sup> Esta lei foi originalmente proposta por J. R. L. de Almeida e D. J. Thouless a partir de cálculos de campo médio para um vidro de spin tipo Ising e é representada pela seguinte expressão:

$$H = H_0 \left( 1 - \frac{T_g(H)}{T_g(0)} \right)^\gamma \quad (3.16)$$

onde  $\gamma = 3/2$  e,  $T_g(H)$  é a temperatura de congelamento, a qual, pode ser interpretada como sendo  $T_{irr}(H)$  em supercondutores, conforme proposto por Müller e col. e ilustrado na *fig. 3.14*.

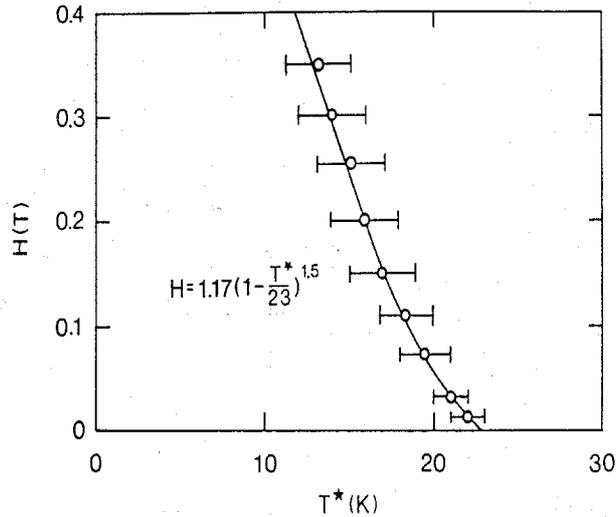


Fig. 3.14 – LIM para o LaBaCuO com um ajuste tipo de Almeida-Thouless para baixos campos.<sup>[66]</sup>

Além desta semelhança, verificada por Müller e col., entre os sistemas vidro de spin e supercondutores granulares, a LIM dos supercondutores de alto  $T_c$  granulares<sup>[79,80]</sup> apresenta, em campos magnéticos um pouco mais elevados, um crossover do regime  $AT$  para um regime tipo Gabay-Toulouse ( $GT$ ),<sup>[81]</sup> onde o comportamento da LIM é descrito pela seguinte lei de potência:

$$H = \beta \left( 1 - \frac{T_{irr}(H)}{T_{irr}(0)} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (3.17)$$

onde  $\beta$  é uma constante que apresenta dimensões de campo magnético e  $T_{irr}(H)$  juntamente com  $T_{irr}(0)$  são as temperaturas de irreversibilidade obtidas com a aplicação de campo e em campo nulo, respectivamente. Este comportamento também foi observado experimentalmente em sistemas vidro de spin do tipo ligas de Cu:Mn.<sup>[77]</sup> Além dessas semelhanças, podemos ainda ressaltar comportamentos similares no que diz respeito à relaxação magnética nos dois sistemas, como por exemplo, a remanência e a relaxação logarítmica da magnetização observada em alguns sistemas supercondutores de alto  $T_c$ .<sup>[66]</sup>

#### 3.2.2.4 - Vidro de Vórtices (“Vortex Glass”)

A maioria das amostras dos cupratos supercondutores caracteriza-se pelo forte caráter inhomogêneo. As inhomogeneidades atuam como centros de “pinning” para as linhas de fluxo magnético, deformando a rede de fluxóides e quebrando a ordem translacional de longo alcance da rede  $2D$  de vórtices.

Um modelo de vidro de vórtices, desenvolvido por M. P. A. Fisher,<sup>[82]</sup> é utilizado para descrever o “crossover” reversível-irreversível do estado misto dos supercondutores óxidos de alto  $T_c$  incorporando os efeitos da desordem, descritos no parágrafo anterior.

O modelo prevê a ocorrência da fase vidro de vórtices na região do diagrama de fase  $H-T$ , *fig. 3.15*,<sup>[67,82]</sup> situada entre a fase Meissner e a linha de congelamento  $T_G(H)$ . Nessa região, a rede de vórtices de Abrikosov não apresenta simetria de translação de longo alcance, ou seja, o sistema de vórtices congela em uma rede  $2D$  que exhibe somente ordem de curto alcance. Porém, na fase vidro de vórtices, o parâmetro de ordem supercondutor ainda mantém a correlação de longo alcance. Além disto, a ocorrência de uma transição para a fase vidro de vórtices em supercondutores assemelha-se à ocorrência de uma transição para fase vidro de spin em sistemas magnéticos.<sup>[83]</sup> Sendo assim, no modelo vidro de vórtices a desordem e a frustração encontram-se diretamente relacionadas à distribuição aleatória dos centros de aprisionamento. A frustração, no limite extremamente sujo, é analisada aplicando-se o modelo vidro supercondutor com base no Hamiltoniano dado pela eq. (3.13).

Por outro lado, o aumento da temperatura faz com que a fase vidro de vórtices se torne instável frente a flutuações térmicas podendo vir a fundir ao longo da linha  $T_G(H)$  tal como acontece com a rede de vórtices de Abrikosov.

Acima da linha de  $T_G(H)$  e abaixo de  $H_{c2}$  ocorre uma fase magneticamente reversível denominada de líquido de vórtices.

Segundo mostra a *fig. 3.15*, no modelo de vidro de vórtices, o estado misto é constituído por duas regiões, as quais são determinadas pela competição entre as interações intervórtices e o “pinning” aleatório e as flutuações térmicas. Estas duas regiões são separadas pela linha de congelamento,  $T_G(H)$  aqui identificada como sendo essencialmente a linha de irreversibilidade magnética, LIM.

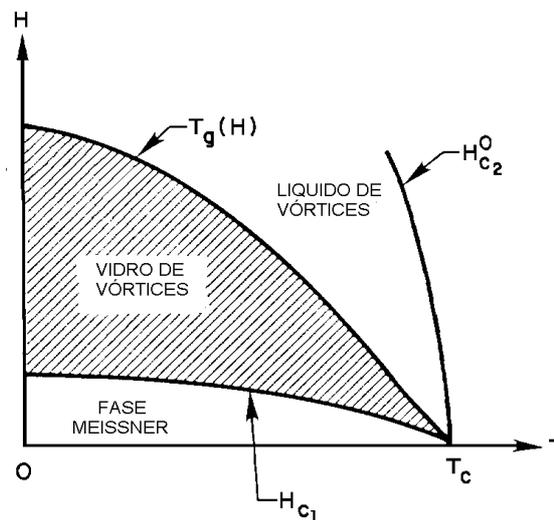


Fig. 3.15 - Diagrama de fases para o modelo vidro de vórtices.<sup>[82]</sup>

3.2.2.5 - Vidro de Bose - "Bose glass"

Nelson e Vinokur<sup>[84]</sup> desenvolveram uma teoria para tratar os efeitos produzidos sobre a dinâmica de fluxo, devido ao aprisionamento das linhas de vórtices por defeitos correlacionados (defeitos colunares, planos de maclas (PMCs), fronteiras de grão e etc.) dispostos em linhas ou planos. Esta teoria fundamenta-se no mapeamento das linhas de vórtices como um problema de localização de Bósons  $2D$ , sujeitos a desordem estática,<sup>[85]</sup> em analogia com vórtices nos sistemas puros, proposta anteriormente por Nelson.<sup>[86]</sup>

Segundo esses autores, o diagrama  $H-T$  para um HTCS, exibindo fortes efeitos de desordem correlacionada, seria dividido em três fases: Líquido de fluxo ("superfluid"), vidro de Bose e um isolante de Mott ("Mott insulator"), conforme ilustra a *fig. 3.16*, a qual ainda destaca, esquematicamente, o aprisionamento das linhas de vórtices pelos defeitos de natureza correlacionada em cada uma das fases.

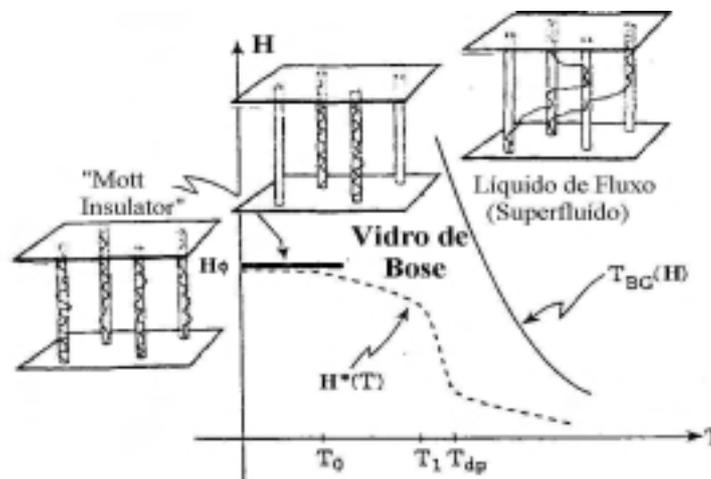


Fig. 3.16 - Diagrama de fases  $H-T$  proposto pela teoria do vidro de Bose.<sup>[84]</sup>

A fase, líquido de fluxo ou superfluida, localizada na parte de mais altas temperaturas do diagrama  $H-T$ , é caracterizada pelo movimento viscoso dos vórtices, ou seja, pela existência de linhas de vórtices não localizadas as quais saltam livremente de um defeito correlacionado para outro através da amostra.

Segundo o diagrama  $H-T$ , a fase situada logo abaixo da linha de  $T_{B_g}(H)$  recebe a denominação de vidro de Bose e é essencialmente caracterizada pelo "pinning" fortemente anisotrópico das linhas de vórtices devido a defeitos estendidos, esquematicamente representados por tubos retos e alinhados na *fig. 3.16*. Na fase vidro de Bose o módulo de "tilt",  $c_{44}$  diverge, a resistividade linear se anula e o comportamento corrente-voltagem ( $I-V$ ) é fortemente não linear.

Por outro lado, a estabilidade da fase vidro de Bose mostra-se dependente do grau de alinhamento entre o campo magnético aplicado e os defeitos de "pinning" estendidos e correlacionados. Tal comportamento em geral é reconhecido por uma variação muito aguda da força de "pinning" com a orientação do campo em torno da

direção dos defeitos. Foi observado experimentalmente em um monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ <sup>[87]</sup> que esta fase desaparece para deslocamentos angulares superiores a  $5^\circ$  de desalinhamento entre o campo magnético aplicado e a direção dos defeitos estendidos.

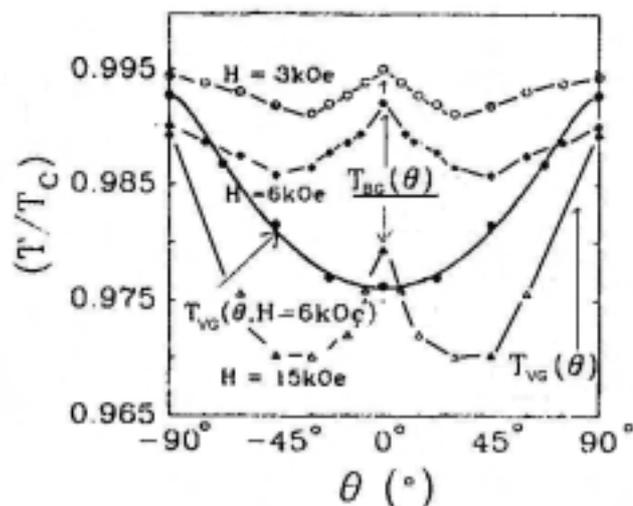
Em temperaturas ainda mais baixas,  $0 < T < T_1$ , ocorre a fase denominada de "Mott insulator". Nesta fase, representada por uma linha espessa no diagrama  $H-T$  da *fig. 3.16*, a densidade de vórtices na amostra é igual à densidade de centros de "pinning" correlacionados. Em outras palavras, cada centro de "pinning" aprisiona uma linha de vórtice quando  $H = H_\phi$ , onde  $H_\phi$  é o chamado "matching field" o qual apresenta um valor bem definido que depende da amostra, caracterizando assim um regime de "single vortex pinning". Ambos os módulos, o de "tilt",  $c_{44}$  e de compressão,  $c_{11}$  divergem. A dinâmica de vórtices nesse regime também se particulariza por ser altamente não linear e assemelhar-se às propriedades de transporte da fase Meissner.

A linha pontilhada  $H^*(T)$ , onde  $H^*(T)$  é o campo de interação, separa a região onde os vórtices encontram-se aprisionados individualmente pelos centros de "pinning" da região onde as propriedades de vidro de Bose são governadas por interações intervórtices e o mecanismo de "pinning" fortemente direcional dos defeitos colunares.

De acordo com o diagrama  $H-T$ , a transição entre as fases vidro de Bose e líquido de vórtices entrelaçado ocorre em  $T_{Bg}(H)$ . A linha  $T_{Bg}(H)$  é identificada experimentalmente como a LIM. De acordo com Nelson e Vinokur, a teoria de vidro de Bose não permite a elaboração de um formalismo analítico para a LIM, contudo a discussão da mesma é realizada a partir da parametrização em termos de uma teoria de escalonamento apresentando dois expoentes críticos,  $\nu$  e  $z$ , de forma análoga ao observado no modelo de vidro de vórtices.<sup>[67]</sup>

Apesar da semelhança entre o formalismo teórico de "scaling", proposto pelos modelos de vidro de vórtices e de Bose, estes diferem significativamente em outras características. Por exemplo, em contraste com a fase vidro de vórtice, onde a desordem pontual devida ao "pinning" isotrópico facilita a movimentação das linhas de vórtices ocasionando o seu entrelaçamento, a fase vidro de Bose é marcada pela direcionalidade dos defeitos estendidos, causando assim "pinning" fortemente anisotrópico o qual é responsável pela inibição da movimentação dos vórtices e promove a localização destes em formas de feixes ao longo dos defeitos. Estas diferenças resultam em diferentes temperaturas de congelamento para a fase vidro de Bose,  $T_{Bg}$  e a fase vidro de vórtices,  $T_{vg}$ .

A partir do diferente comportamento das temperaturas de transição  $T_{Bg}$  e  $T_{vg}$  em função do ângulo  $\theta$  entre o campo magnético aplicado e o eixo  $c$  de monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  com e sem defeitos colunares ao longo do eixo  $c$ ,<sup>[88]</sup> tornou-se mais clara a distinção entre o comportamento tipo vidro de vórtices e o vidro de Bose e vice-versa. A dependência da  $T_{Bg}$  e da  $T_{vg}$  em função de  $\theta$  é ilustrada pela *fig. 3.17* onde o comportamento apresentado por  $T_{vg}$  é representado pela linha sólida e  $T_{Bg}$  pelas linhas tracejadas.



**Fig. 3.17** - As temperaturas reduzidas de transição  $T_{Bg}$  (linhas tracejadas) e  $T_{vg}$  (linha cheia) em função de  $\theta$  e  $H$  para monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  não-irradiados (linha cheia) e irradiados (linhas pontilhadas).<sup>[88]</sup>

O comportamento muito agudo, tipo "cusp", apresentado pela  $T_{Bg}(\theta)$  em  $\theta = 0$  no monocristal irradiado é a assinatura de uma transição vidro de Bose, contrastando fortemente com o aumento suave apresentado por  $T_{vg}(\theta)$  em função da elevação de  $\theta$  no monocristal não irradiado e seu comportamento também não singular em torno de  $90^\circ$  onde é modulada pelo pinning intrínseco da supercondutividade planar.

As diferenças obtidas entre os comportamentos apresentados por  $T_{vg}(\theta)$  e  $T_{Bg}(\theta)$  podem ser interpretadas da seguinte maneira. Para desvios angulares do campo magnético aplicado suficientemente pequenos em relação aos defeitos colunares, esses mantêm a sua eficácia em confinar os vórtices ao longo ou ao redor dos defeitos. Na medida em que o campo magnético é desalinhado em relação aos defeitos colunares e, portanto, ao eixo  $c$  do monocristal irradiado, a  $T_{Bg}(\theta)$  para esse monocristal decresce rapidamente. Porém, quando os valores de  $\theta$  são suficientemente elevados, conforme ilustra a *fig. 3.17*, a eficácia do mecanismo de "pinning" devido aos defeitos colunares é superada e então, o mecanismo de "pinning" intrínseco, proveniente da anisotropia eletrônica intrínseca do supercondutor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , que é mais forte, passa a determinar o comportamento de  $T_{vg}(\theta)$ .

#### 4.3.3 - Efeitos Direcionais de "Pinning" Devido aos Planos de Maclas na LIM

A observação de uma elevação considerável no valor do limite de irreversibilidade e das correntes críticas em amostras supercondutoras onde defeitos correlacionados predominam mostra que o "pinning" dos vórtices por esse tipo de defeitos pode ser considerado como um eficiente mecanismo de "flux pinning". Isto se deve ao fato de que o vórtice é aprisionado nesses defeitos ao longo de um comprimento considerável e não apenas em um ponto como ocorre no "pinning" isotrópico.

O "pinning" dos vórtices devido a defeitos colunares e deslocamentos, quando estiverem alinhadas em relação a plicação de campo, são apontados como exemplos clássicos de defeitos correlacionados ou estendidos. Entretanto, os planos de maclas, (PMcs) que, no supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  se estendem ao longo de planos  $[110]$  ou  $[\bar{1}\bar{1}0]$ , também atuam como defeitos correlacionados de natureza desordenada. Os PMcs são defeitos que se originam especialmente durante o crescimento de monocristais da família YBCO-123. Eles podem estender-se sobre todo o cristal ou podem aparecer em forma de pequenos domínios contendo alternadamente uma e outra direção de PMcs.

Por outro lado, o papel desempenhado por esses defeitos, como centro de "pinning", pode ser estudados sem que seja necessário modificar-se as propriedades supercondutoras do material. O papel desempenhado pelos PMcs no mecanismo de "flux pinning" e na dinâmica de vórtices de materiais supercondutores monocristalinos, texturizados e filmes finos tem sido investigado a partir do emprego de diferentes técnicas experimentais.<sup>[89]</sup> Particularmente, medidas de magnetoresistividade-DC,<sup>[88]</sup> corrente-voltagem ( $I-V$ )<sup>[90]</sup> e de magnetização<sup>[91]</sup> revelam que a presença de PMcs, ou de defeitos colunares, proporciona a coexistência de duas fases de vórtices distintas na dinâmica de vórtices dos HTCS. As fases vidro de vórtices e vidro de Bose, ambas discutidas nas seções 3.2.2.4 e 3.2.2.5 desse capítulo, são produzidas respectivamente pela existência de "pinning" isotrópico e anisotrópico com forte direcionalidade.

Particularmente, no que tange a irreversibilidade magnética, o efeito do "pinning" isotrópico é o de deslocar a LIM para  $T$  e  $H$  mais altos ao passo que o efeito devido ao "pinning" anisotrópico é o de introduzir uma dependência angular na LIM.<sup>[89]</sup>

O diagrama  $H-T$  da *fig. 3.18* ilustra o comportamento da LIM obtido por Sanfilippo et al.<sup>[89]</sup> em uma amostra monodomínio texturizada de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  cujas dimensões do eixo  $c$  são maiores do que o plano  $ab$ .<sup>[89]</sup> Estes autores estudam o comportamento da LIM para campos aplicados perpendicularmente ao eixo  $c$ , ( $H // ab$ ) onde os PMcs são direcionados  $0$  e  $45^\circ$  em relação ao campo magnético aplicado dentro do plano  $ab$ , sendo que para  $\Phi = 0$ , teremos  $H // \text{PMcs}$  onde  $\Phi_c = 8^\circ$  recebe a denominação de ângulo crítico.

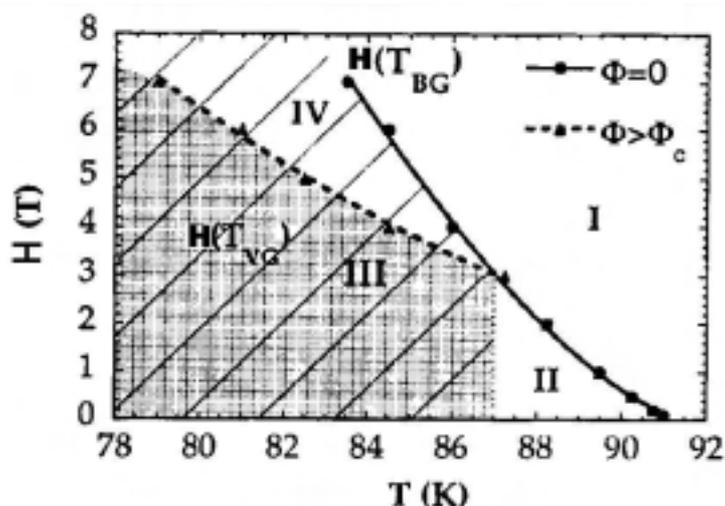


Fig. 3.18 - Dependência angular da LIM para  $H // ab$  onde  $H$  é direcionado ao longo e a  $45^\circ$  dos PMcs. Quando  $\Phi > \Phi_c = 8^\circ$  a LIM apresenta um comportamento independente de  $\Phi$ .<sup>[89]</sup>

De acordo com o diagrama  $H$ - $T$  da *fig. 3.18*, observa-se que para  $H > 3$  T e  $T < 87$  K a LIM apresenta um comportamento distinto em função de  $H$ . Para  $T > 87$  K e  $H < 3$  T, o comportamento observado pela LIM é isotrópico em função de  $\Phi$ . Porém, para  $T < 87$  K e  $H > 3$  T o comportamento apresentado pela LIM é fortemente anisotrópico em função de  $\Phi$ . Também foi verificado que as LIM obtidas para valores de  $\Phi < \Phi_c$  alinham-se à LIM obtida para  $H // ab //$  PMcs, ou seja,  $\Phi = 0$  e obedecem a uma lei de potências do tipo  $H \propto (1 - T / T_c)^{3/2}$  ao longo de todo o diagrama  $H$ - $T$ .

Por outro lado, quando  $\Phi > \Phi_c$ , a LIM apresenta uma dobra ("kink") reproduzível em torno de  $T = 87$  K e  $H = 3$  T, que significa a ocorrência de uma mudança no mecanismo de "flux pinning" e na dinâmica dos vórtices.

A justificativa para esse comportamento apresentado pela LIM, ilustrado na *fig. 3.17*, foi dada por Sanfilippo et al.. Eles propuseram a coexistência de duas fases distintas de vórtices em função de  $\Phi$  para  $H // ab$ : A fase vidro de vórtices para  $\Phi > \Phi_c$  (região achuriada da *fig. 3.18*, denominada de III) e a fase vidro de Bose quando  $\Phi \leq \Phi_c$  (região listrada da *fig. 3.18*, denominada de IV a qual engloba a região III) onde  $H(T_{VG})$  e  $H(T_{BG})$  delimitam essas fases com a região reversível, denominada de I na *fig. 3.18*.

Na região III ( $\Phi > \Phi_c$ ) a fase vidro de vórtices é induzida por desordem pontual (vacâncias de oxigênio, impurezas e etc.) e caracterizada pela configuração aleatória de vórtices.<sup>[92]</sup>

Na região denominada de IV ( $\Phi \leq \Phi_c$ ), os centros de "pinning" devido aos PMcs aprisionam os vórtices ao longo de sua extensão longitudinal os fixando de maneira eficiente e assim estabelecendo a fase denominada de vidro de Bose.

A região II apresenta um comportamento isotrópico para a LIM ou seja, isto ocorre quando os fluxóides não são mais aprisionados pela ação individual dos defeitos planares e sim pela ação coletiva de muitos planos de maclas tornando o "pinning" nesta região do diagrama  $H$ - $T$  isotrópico, análogo à uma fase vidro de vórtices.

Por outro lado, Civale et al.<sup>[93]</sup> utilizando medidas de magnetização DC em monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  com defeitos colunares paralelos ao eixo  $c$ , também observaram fortes efeitos direcionais de "pinning" na LIM. A LIM nessas amostras apresentou uma dobra ("kink") o qual foi associada a um problema de casamento entre o número de rastros de íons (irradiação) e o número de vórtices aprisionados em dado campo magnético aplicado.

## **Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC.**

Os HTSC diferem dos supercondutores convencionais principalmente por apresentarem uma elevada temperatura crítica de transição, uma forte anisotropia planar e um pequeno comprimento de coerência. Essas diferenças contribuem para o aumento dos efeitos de flutuações supercondutoras nas propriedades de magnetocondutividade desses sistemas e onde esses efeitos podem começar a ser observados a algumas dezenas de graus acima de  $T_c$ .

Esses efeitos manifestam-se ainda durante o estado normal desses materiais através da formação de pares de Cooper fora do equilíbrio termodinâmico. Esses pares de Cooper altamente instáveis dão origem a efeitos precursores da fase supercondutora. Algumas propriedades de equilíbrio e de transporte dos HTSC podem ter seus comportamentos modificados nas proximidades de  $T_c$  em virtude da contribuição significativa desse tipo de flutuações.

A transição normal-supercondutora em supercondutores convencionais é descrita pela teoria de Ginzburg-Landau (GL) na qual o estado supercondutor é representado por um parâmetro de ordem GL denominado de  $\Psi$ . Nesses materiais, as flutuações térmicas na amplitude de  $\Psi$  são normalmente pequenas, isso se deve principalmente ao baixo valor de  $T_c$ . Essas flutuações são interpretadas utilizando-se a aproximação Gaussiana onde as flutuações do parâmetro de ordem são individuais e portanto não correlacionadas, ou em outras palavras, apenas o termo proporcional a  $|\Psi|^2$  é considerado na expressão da energia livre GL a qual será apresentada no próximo item.<sup>[94]</sup>

Por outro lado, nos HTSC granulares os fortes efeitos de flutuações térmicas provocam não somente a variação da amplitude mas também da fase do parâmetro de ordem dos grãos supercondutores num intervalo apreciável de temperaturas em torno de  $T_c$ . A variação da amplitude é comprovada experimentalmente pela observação do regime de flutuações genuinamente críticas, isto é, flutuações correlacionadas nas vizinhanças de  $T_c$ . Perante esta circunstância, termos de ordem mais elevada no parâmetro de ordem supercondutor devem ser consideradas na expressão da energia livre de GL.

### **4.1 – A Teoria Fenomenológica de Ginzburg-Landau**

Em 1950, Ginzburg e Landau<sup>[94,95]</sup> desenvolveram uma teoria fenomenológica para supercondutores, fundamentada nas transições de fase de segunda ordem, onde o estado supercondutor é descrito em termos do parâmetro de ordem supercondutor complexo,  $\Psi$ . Esse parâmetro de ordem apresenta valor nulo para  $T > T_c$  e valor finito para  $T < T_c$  e constitui-se numa função de onda efetiva para os pares de Cooper sendo sensível à temperatura e a campos magnéticos e assume a seguinte representação:

$$\Psi(\vec{r}) = |\psi(\vec{r})| e^{i\phi(\vec{r})} \quad (4.1)$$

**Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC**

onde  $\Psi(\vec{r})$  é a amplitude e  $\phi(\vec{r})$  é uma fase. O módulo quadrado desta função nos fornece a densidade de pares de Cooper ou seja,  $|\Psi(\vec{r})|^2 = n_s$ .

Segundo a teoria GL, nas proximidades de  $T_c$  de um supercondutor homogêneo e na ausência de campo magnético aplicado,  $\Psi(\vec{r})$  é pequena e a expressão para a densidade de energia livre pode ser expandida em uma série de potências do tipo:  $f_s(|\Psi|) = f_n(T) + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \gamma|\nabla\Psi|^2$  onde  $f_n$  e  $f_s$  são os termos referentes aos estados normal e supercondutor e os coeficientes  $\alpha, \beta$  e  $\gamma$  são parâmetros fenomenológicos.

Os efeitos causados pela aplicação de campo magnético externo implicam em adicionar novos termos de energia associados ao campo magnético, ao potencial vetor e à variação espacial de  $\Psi(\vec{r})$  na expressão para a densidade de energia livre GL a qual, assume a seguinte forma:

$$f_s(|\Psi|) = f_n(T) + \alpha|\Psi|^2 + \frac{\beta}{2}|\Psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left( -i\hbar\vec{\nabla} - \frac{e^*}{c}\vec{A} \right) \Psi \right|^2 + \frac{\vec{B}^2}{8\pi} \quad (4.2)$$

onde o termo  $\vec{B}^2$  encontra-se relacionado à energia do campo magnético ao passo que  $m^* = 2m_e$  e  $e^* = 2e$  são respectivamente a massa e a carga do par de superelétrons.

A minimização da energia livre GL, dada pela eq. (4.2), em relação ao parâmetro de ordem,  $\Psi(\vec{r})$  e ao potencial vetor  $\vec{A}$ , fornece as equações fundamentais da teoria GL.

A primeira equação é dada por:

$$\frac{1}{2m^*} \left( -i\hbar\vec{\nabla} - \frac{e^*}{c}\vec{A} \right)^2 \Psi + \beta|\Psi|^2\Psi + \alpha\Psi = 0 \quad (4.3)$$

A eq. (4.3) descreve a variação de  $\Psi(\vec{r})$  no interior da amostra uma vez conhecido o potencial vetor  $\vec{A}$ . A aplicação desta equação numa situação unidimensional e na ausência de campo magnético, fornece uma certa quantidade, a qual apresenta dimensão de comprimento ao quadrado, dada por:

$$\xi(T) = \left( \frac{\hbar^2}{2m^*|\alpha|} \right)^{\frac{1}{2}} = \xi(0)|\varepsilon|^{-\frac{1}{2}} \quad (4.4)$$

onde  $\xi(0)$  é uma amplitude e  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  é a temperatura reduzida. A quantidade  $\xi(T)$  é chamada de *comprimento de coerência* GL e representa a escala de variação

**Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC**

espacial do parâmetro de ordem e diverge quando  $T \rightarrow T_c$ .

A segunda equação da teoria GL é dada por:

$$\vec{j} = \frac{i e^* \hbar}{2m^*} (\Psi^* \vec{\nabla} \Psi - \Psi \vec{\nabla} \Psi^*) - \frac{(e^*)^2}{m^*} |\Psi|^2 \vec{A} \quad (4.5)$$

Esta equação caracteriza-se por apresentar a expressão quantum-mecânica para a densidade de corrente de partículas com carga  $e^*$ , massa  $m^*$  na presença de um campo eletromagnético, representado pelo potencial vetor  $\vec{A}$ .

A partir da consideração dos efeitos provocados pelo campo na eq. (4.5), podemos obter um parâmetro característico da teoria GL. Desta maneira, levando em consideração que  $|\Psi|^2$  é a densidade local de superpartículas, temos que:

$$\lambda(T) = \left( \frac{\mu_0 e^* |\Psi|^2}{m^*} \right)^{-\frac{1}{2}} \quad (4.6)$$

onde  $\mu_0$  é a constante de permissividade do meio e  $\lambda(T)$  corresponde ao *comprimento de penetração* do campo magnético no interior de um supercondutor.

Para  $T > T_c$ , a densidade de superpartículas torna-se muito pequena. Por isso, podemos desprezar o termo de quarta ordem na expressão para densidade de energia livre (eq. (4.2)) e, quando tivermos a situação  $\vec{A} = 0$ , o parâmetro de ordem pode ser expandido em uma série de Fourier. Portanto, levando em consideração estes fatos na eq. (4.2) e calculando a média térmica da densidade de pares de Cooper, obtemos a probabilidade de ocorrência de um dado valor de  $\Psi(\vec{r})$  no espaço de Fourier. A probabilidade de ocorrência de uma dada componente de Fourier,  $\Psi_{\vec{q}}$  é expressa por:

$$W(\Psi_{\vec{q}}) \propto \exp \left\{ - \frac{|\Psi_{\vec{q}}|^2}{2 \langle |\Psi_{\vec{q}}|^2 \rangle} \right\} \quad (4.7)$$

onde o símbolo  $\langle \dots \rangle$  indica média termodinâmica.

De acordo com a expressão (4.7), a distribuição de probabilidades das amplitudes de Fourier,  $\Psi_{\vec{q}}$  é Gaussiana. Por esta razão, as flutuações termodinâmicas não correlacionadas, descritas dentro do contexto da teoria GL, são denominadas de *flutuações Gaussianas*.

## Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC

Por outro lado, a aplicação de campo magnético causa a diminuição do tamanho das flutuações termodinâmicas que antecedem à  $T_c$  reduzindo assim a sua dimensionalidade efetiva.

Uma das principais características dos supercondutores óxidos é a de apresentarem fenômenos genuinamente críticos quando a temperatura se aproxima de  $T_c$ . Esta região genuinamente crítica é marcada por comportamentos singulares das diversas propriedades de equilíbrio e dinâmicas.

A aproximação Gaussiana, derivada da teoria GL, permite a descrição de efeitos de pequenas flutuações não-correlacionadas. No entanto, quando a temperatura se aproxima de  $T_c$ , as flutuações passam a interagir. Nesta situação, a teoria GL deixa de ser válida e as diversas propriedades físicas passam a se comportar segundo uma termodinâmica genuinamente crítica.

O intervalo crítico é definido a partir da utilização do *critério de Ginzburg*, segundo o qual,  $\varepsilon_G$  considerando o limite limpo em três dimensões é expresso como:<sup>[96]</sup>

$$\varepsilon_G = \left( \frac{k_B}{8\pi^2 (\delta c)^{\frac{1}{3}}(0)} \right)^2 = \left| \frac{T_G - T_c}{T_c} \right| \quad (4.8)$$

onde  $\delta c$  é a descontinuidade no calor específico em  $T_c$  e  $\varepsilon_G = \left| \frac{T_G - T_c}{T_c} \right|$  também denominado de número de Ginzburg, define a temperatura limite  $T_G$ , abaixo da qual, cessa a validade da teoria GL. Então, a região genuinamente crítica é definida por:

$$\varepsilon \leq \varepsilon_G \quad (4.9)$$

Por outro lado, Gorkov,<sup>[97]</sup> em 1959, mostrou que as equações propostas pela teoria GL podem ser obtidas, sob condições limite de temperatura e campo magnético, a partir da teoria microscópica da supercondutividade, BCS,<sup>[98]</sup> criada em 1957.

### **4.2 – Flutuações na Condutividade Elétrica na região $T > T_c$**

Efeitos, causados por flutuações supercondutoras acima da temperatura crítica, podem ser evidenciados em experiências de condutividade e magnetocondutividade elétrica, onde é presenciado um aumento da condutividade na fase normal, em temperaturas próximas a  $T_c$ . Este excesso de condutividade é também denominado de paracondutividade. A manifestação das flutuações na condutividade, ou paracondutividade, acima de  $T_c$  é descrita basicamente por quatro diferentes efeitos:

- O aparecimento de pares de Cooper fora do equilíbrio apresentando um tempo de flutuação característico,  $\tau_{GL}$  nas proximidades de  $T_c$  onde  $\tau_{GL} \sim \hbar / (T - T_c)$ . Dependendo da faixa de temperatura em relação a  $T_c$ , um certo número desses pares estarão sempre presentes em um dado volume unitário da fase normal. Então, a

## Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC

presença de pares de Cooper metaestáveis na região paracondutora contribui para o surgimento de um novo canal de transferência de cargas não dissipativo na condutividade destes materiais. Esta contribuição é tratada pela teoria de campo médio de *Aslamazov-Larkin (AL)*.<sup>[99]</sup>

- A formação de pares de Cooper evanescentes provoca uma correção indireta na contribuição das flutuações à condutividade elétrica, que é denominada de *contribuição da densidade de estados*. Esta diminuição da densidade de estados eletrônicos no nível de Fermi ocorre uma vez que alguns elétrons envolvidos no processo de pareamento não podem participar simultaneamente na transferência de carga e no calor específico como excitações de uma partícula. O número total de estados eletrônicos não pode ser mudado pela interação de Cooper e somente pode haver uma redistribuição de níveis ao longo do eixo. Então, poder-se-ia falar a respeito da abertura de um "pseudo gap" de flutuações do nível de Fermi.<sup>[100]</sup> A diminuição da densidade de estados de elétron único no nível de Fermi dá origem a uma redução da condutividade elétrica do metal normal. A contribuição da densidade de estados deve ser levada em conta juntamente com a contribuição AL. Porém, a contribuição da densidade de estados tem sinal oposto à contribuição AL e em geral é pequena se comparada à contribuição AL. Desta maneira, ela pode ser omitida nas vizinhanças da transição. Em particular, para materiais que apresentem anisotropia, como os HTSC, torna-se necessária a aplicação do modelo proposto por *Lawrence-Doniach, (LD)*<sup>[101]</sup> que é uma extensão do modelo AL e será discutido mais adiante.

- A *contribuição anômala de Maki-Thompson, (MT)*<sup>[102]</sup> manifesta-se como um efeito de natureza puramente quântica e a sua contribuição para a condutividade devido às flutuações nas proximidades de  $T_c$ , pode ser significativa. A contribuição MT origina-se nas flutuações geradas por espalhamento coerente de elétrons formando pares de Cooper. Portanto, ela é extremamente sensível a processos que alterem a função de onda eletrônica. Assim, o tempo de vida das quase-partículas é limitado por processos de espalhamento inelástico, como o espalhamento elétron-fónon, que destrua a coerência de fase do par de elétrons ou o espalhamento por impurezas magnéticas, que causam o despereamento dos spins do par de elétrons. Portanto, o tempo de vida destas quasi-partículas correlacionadas é, em geral, extremamente curto e portanto, sua contribuição à paracondutividade é pequena.<sup>[105]</sup>

- A confirmação experimental da existência de um *regime genuinamente crítico* o qual pode ser descrito através do modelo 3D-XY,<sup>[103, 104]</sup> particularizam a quarta contribuição das flutuações para a condutividade. Estas flutuações caracterizam-se por serem correlacionadas e aparecem imediatamente acima de  $T_c$ . Segundo o modelo 3D-XY, o parâmetro de ordem supercondutor é formado por duas componentes (uma real e outra imaginária) tal como a função de onda correspondente a um condensado. Este fato sugere que a termodinâmica do supercondutor apresente um comportamento do tipo XY tridimensional, semelhante ao do He superfluido.

### **4.2.1 – A Contribuição Aslamazov-Larkin (AL)**

A primeira teoria da paracondutividade foi proposta por Aslamazov e Larkin (AL).<sup>[99]</sup> A formulação original é baseada na teoria microscópica da supercondutividade, porém, seus resultados podem também ser derivados a partir do uso da teoria GL.<sup>[105]</sup>

**Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC**

O modelo AL assume que o excesso de condutividade,  $\Delta\sigma$  é dependente da dimensionalidade das flutuações supercondutoras do sistema em questão. Correspondentemente propõe que  $\Delta\sigma$  varia com a temperatura,  $T$  segundo as seguintes leis de potência:

$$\Delta\sigma_{AL}^{3D} = \frac{e^2}{32 \hbar \zeta(0)} \varepsilon^{-\frac{1}{2}} \quad (4.10)$$

$$\Delta\sigma_{AL}^{2D} = \frac{e^2}{16 \hbar s} \varepsilon^{-1} \quad (4.11)$$

$$\Delta\sigma_{AL}^{1D} = \frac{\pi}{16} \frac{e^2 \zeta(0)}{\hbar a} \varepsilon^{-\frac{3}{2}} \quad (4.12)$$

onde  $3D$ ,  $2D$  e  $1D$  representam as dimensionalidades das flutuações,  $s$  é a espessura do filme para o caso  $2D$ ,  $a$  é a área da seção transversal do filamento no caso unidimensional,  $\varepsilon$  é a temperatura reduzida e  $\zeta(0)$  é o valor do comprimento de coerência GL em  $T = 0$ . Em particular, os expoentes críticos são dados por  $\lambda = 2 - (d / 2)$ , onde  $d$  é a dimensionalidade.<sup>[99]</sup>

**4.2.2 – O Modelo de Lawrence-Doniach (LD)**

Para um supercondutor óxido de alto  $T_c$ , constituído por uma sequência de planos supercondutores  $2D$  fracamente acoplados via tunelamento Josephson, o excesso de condutividade paralelamente às camadas é dada pela expressão de Lawrence-Doniach:<sup>[101]</sup>

$$\Delta\sigma_{LD}^{par} = \frac{e^2}{16 \hbar s \varepsilon} \left\{ 1 + \left( \frac{2 \zeta_c(T)}{s} \right)^2 \right\}^{-\frac{1}{2}} \quad (4.13)$$

onde  $s$  é o espaçamento entre as camadas e  $\zeta_c(T)$  é o comprimento de coerência na direção perpendicular às camadas.

Lawrence e Doniach mostraram que a equação (4.13) descreve um “crossover” de um comportamento bidimensional, quando  $T \gg T_c$ , para um regime tridimensional a medida que  $T$  se aproxima de  $T_c$ . Quando o espaçamento entre  $s$  for maior do que o  $\zeta_c(T)$  os planos supercondutores estarão efetivamente desacoplados, ou seja a razão  $(2 \zeta_c(T)/s)$  assume valores pequenos. Então, a eq. (4.13) torna-se idêntica à expressão (4.11) para filmes de espessura  $s$  dentro da teoria AL. Por outro lado, na medida em

## Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC

que nos aproximamos de  $T_c$ ,  $\xi(T)$  cresce, o que torna a razão  $(2\xi_c(T)/s)$  suficientemente grande para que os planos supercondutores se acoplem, levando o sistema a um regime  $3D$ . Nesta aproximação, a expressão (4.13) acompanha a expressão (4.10) para  $3D$  prevista pela teoria AL onde  $\xi_c(T)$  substitui a quantidade isotrópica  $\xi(0)$ . Dentro do formalismo AL ou LD, a dependência do comprimento de coerência em função da temperatura ocorre conforme previsto pela teoria GL ou seja,  $\xi \sim \varepsilon^{-1/2}$ .

### 4.2.3 – Flutuações em Sistemas Inomogêneos

O formalismo teórico para interpretação das flutuações na condutividade em supercondutores descrito até o presente momento aplica-se à materiais homogêneos. No entanto, os HTCS, na sua grande maioria, são sistemas inomogêneos e, portanto, são melhor tratados dentro do modelo proposto por Char e Kapitulnik (CK).<sup>[106]</sup> Neste "approach", a teoria AL foi modificada e aplicada ao modelo de percolação. Sendo assim, para  $T > T_c$ , o supercondutor inomogêneo é visto como um problema de percolação no limite de agregado infinito, o qual é considerado homogêneo para escalas de comprimento  $L$  maiores do que o comprimento de correlação do problema de percolação,  $\xi_p$ .

Por outro lado, se o comprimento de correlação no sistema de percolação  $\xi_p$  for maior do que  $L$ , deve-se considerar o material inomogêneo como fractal aleatório com dimensão espectral  $\tilde{d}$  em substituição a dimensão euclidiana  $d$ . Neste caso, a contribuição direta do tipo AL para a paracondutividade depende da temperatura reduzida como:

$$\Delta \sigma_{CK} \approx \varepsilon^{-\tilde{\lambda}} \quad (4.14)$$

onde:

$$\tilde{\lambda} = 2 - \frac{\tilde{d}}{2} \quad (4.15)$$

Este resultado é geral para uma fractal. No caso de um agregado de percolação,  $\tilde{d} \approx 4/3$ . Nesse caso, espera-se  $\tilde{\lambda} \approx 1.33$ .

### 4.2.4 – As Flutuações Críticas

A medida em que  $T$  se aproxima de  $T_c$  as flutuações interagem de forma a se tornarem correlacionadas e o alcance de correlação destas flutuações correlacionadas aumenta progressivamente até se tornar infinito em  $T = T_c$ . A região onde ocorre este

fenômeno é denominada de genuinamente crítica e é delimitada de acordo com a aplicação do critério de Ginzburg. Nesta região, a teoria GL perde a sua validade e a termodinâmica do supercondutor se torna muito diferente do comportamento tipo campo médio observado na região dominada por flutuações Gaussianas.

O estudo do comportamento genuinamente crítico é feito com a aplicação da teoria de “scaling” estático e dinâmico.<sup>[107]</sup> Isso se dá expandindo-se a energia livre em séries de potência do comprimento de coerência, o qual comanda toda a fenomenologia nas proximidades da temperatura supercondutora. Na região crítica, esta teoria prediz que a paracondutividade diverge em  $T_c$  como:

$$\Delta \sigma \approx \varepsilon^{-\nu(2+z-d-\eta)} \quad (4.16)$$

onde  $\eta$  é um pequeno expoente crítico relacionado à função de correlação para o parâmetro de ordem (em geral supõe-se  $\eta = 0$ ),  $d$  nos fornece a dimensionalidade do sistema,  $z$  é o expoente crítico dinâmico e  $\nu$  é o expoente crítico relativo ao comprimento de coerência.

A descrição mais simples da transição normal-supercondutor supõe que as propriedades de supercondutores do tipo II, na região crítica e na ausência de campo magnético aplicado são aquelas previstas pelo modelo 3D-XY<sup>[67]</sup> para o qual  $\nu \approx 0.667$ . Segundo Lobb,<sup>[108]</sup> dois regimes podem ser definidos na região crítica, o *regime crítico estático* e o *regime crítico dinâmico*. No regime crítico estático,  $\nu \approx 2/3$ , porém  $z$  e  $\eta$  conservam seus valores de campo médio ( $z = 2$  e  $\eta = 0$ ), resultando num expoente igual a  $\lambda = \nu(2 + z - d - \eta) = 0.67$ . Em regimes de temperaturas mais próximos a  $T_c$ , onde efeitos de “scaling” dinâmico se tornam importantes, deve ocorrer uma mudança para o regime crítico dinâmico, no qual  $z = 3/2$ . Neste caso o expoente crítico previsto para a condutividade em sistemas 3D é  $\lambda = 0.33$ .

### 4.3 – Flutuações na Magnetocondutividade Elétrica na região $T > T_c$

Medidas de magnetoresistividade, realizadas em temperaturas superiores a  $T_c$ , são de extrema relevância para a análise das flutuações supercondutoras, bem como para o estudo do mecanismo do transporte intrínscio no estado normal.

A aplicação de campo magnético,  $H$  é responsável pela produção de vários efeitos na transição resistiva de um supercondutor. Dois deles são visíveis: o alargamento da transição e o seu deslocamento para uma temperatura  $T_c(H)$  mais baixa ao longo da linha  $Hc_2(T)$ . Além destes efeitos, a presença de campo causa a diminuição do volume característico das flutuações, redução da dimensão efetiva do sistema e o efeito de quebra de pares.<sup>[103]</sup>

A fenomenologia crítica para estes sistemas é discutida através de dois modelos: a aproximação LLL (“lowest Landau level”) da teoria GL e o 3D-XY. Na literatura encontramos alguns trabalhos condizentes com o comportamento de “scaling” do tipo LLL<sup>[109,110]</sup> e outros sustentando a aplicabilidade do modelo 3D-XY.<sup>[111,112]</sup>

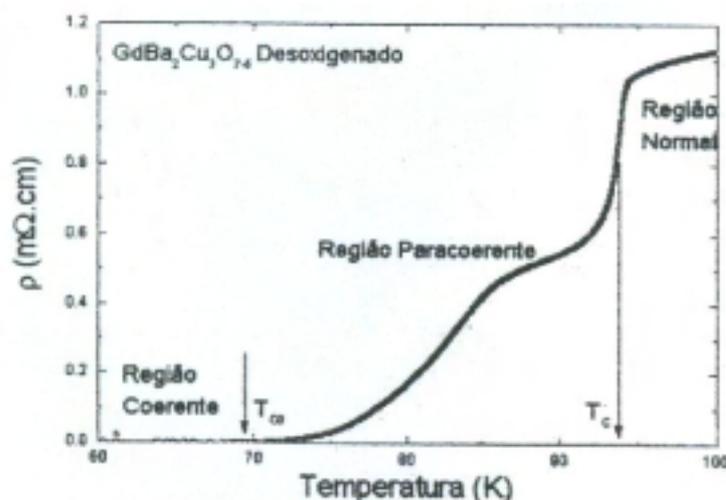
## Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC

A observação do comportamento LLL em supercondutores óxidos encontra-se condicionado a aplicação de elevados valores do campo magnético, tipicamente  $H > 1T$ . Este valor não é fixo e apresenta variações de amostra para amostra.<sup>[109,111]</sup>

Por outro lado, o comportamento crítico do tipo 3D-XY pode ser observado apenas em campos magnéticos aplicados de muito baixa intensidade.

### **4.4 – Flutuações na Condutividade Elétrica na região $T < T_c$**

Os modelos que interpretam o excesso de condutividade, apresentados nas seções anteriores, são aplicados à região paracondutora, ou seja, na região situada na fase normal. Estes modelos estão fundamentados nas flutuações da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor. Entretanto, como os supercondutores óxidos de alto  $T_c$ , na sua grande maioria, são sistemas inhomogêneos do tipo granular, o fenômeno de acoplamento entre os grãos supercondutores em  $T < T_c$  é parte relevante da transição resistiva. Ali, os processos de ativação e desativação de junções fracas entre os grãos supercondutores serão responsáveis pela transição paracoerente e pela resistividade em temperaturas inferiores à temperatura crítica de pareamento,  $T_c$ . Estes processos podem ser evidenciados através da transição resistiva, conforme ilustra a *fig. 4.1*<sup>[113]</sup> e exemplifica na *fig. 4.2*.



**Fig 4.1** – Regiões normal, paracoerente e coerente na transição resistiva.<sup>[113]</sup>



## Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC

A transição paracoerente-coerente, na ausência de campo magnético e para baixos valores de densidade de corrente de medida (auto-campo) aplicados, é teoricamente descrita como um fenômeno de transição de fase. Para descrever tal aglomerado de grãos supercondutores foi proposto o Hamiltoniano de tunelamento de pares<sup>[116]</sup> dado pela seguinte equação:

$$H = - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j) \quad (4.17)$$

onde  $J_{ij}$  representa a energia de acoplamento entre os grãos  $i$  e  $j$  e  $(\theta_i - \theta_j)$  é a diferença de fase entre os grãos  $i$  e  $j$ . A eq. (4.17) particulariza-se por ser idêntica a de um sistema de spins XY acoplados por meio de energia de troca  $J_{ij}$ . No caso dos HTSC a frustração é introduzida via distribuição aleatória dos acoplamentos  $J_{ij}$  ou via coexistência aleatória de junções normais e junções do tipo  $\pi$ .<sup>[75]</sup> Portanto, a transição de fase paracoerente-coerente em  $T_{c0}$  será de segunda ordem, seguindo a analogia ao modelo magnético.

A largura para esta região crítica pode ser estimada por meio da utilização de um critério de Ginzburg renormalizado. O excesso de condutividade para a região paracoerente será devido às flutuações da fase do parâmetro de ordem dos grãos. E as quantidades físicas escalam com a temperatura reduzida  $\varepsilon_0 = (T - T_{c0})/T_{c0}$ . Os expoentes críticos que descrevem a transição da fase paracoerente para a fase coerente, na ausência de campo aplicado, serão correspondentes aos de um sistema ferromagneto 3D-XY desordenado.

De acordo com a ref.[115], o expoente crítico relativo ao excesso de condutividade para a região crítica paracoerente deve apresentar o mesmo valor que o da susceptibilidade paramagnética de um modelo 3D-XY desordenado, portanto:

$$\Delta\sigma(T) \sim \varepsilon_0^{-S_0} \quad (4.18)$$

onde  $S_0$  é o expoente crítico, o qual apresenta um valor em torno de 2,7 à 3 para o  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  na ausência de campo magnético aplicado.<sup>[103]</sup>

### **4.5 – Flutuações na Magnetocondutividade Elétrica na região $T < T_c$**

A presença de campos magnéticos origina efeitos sobre as flutuações termodinâmicas acima e abaixo da temperatura crítica de transição  $T_c$ . Na região paracoerente, o campo diminui significativamente o valor de  $T_{c0}(H)$ , proporcionando um alargamento considerável da transição. São vários os modelos propostos na tentativa de explicar o comportamento dos HTCS na fase mista. Dentre as diversas teorias, se destacam os modelos clássicos de "flux flow" e "flux creep", assim como os modelos de vidro supercondutor e vidro de vórtices, todos discutidos no capítulo 3. Os modelos de vidro supercondutor e vidro de vórtices são de particular interesse para

**Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC**

esse trabalho pois ambos podem ser utilizados na compreensão da transição de fase paracoerente-coerente de supercondutores granulares.

O modelo de vidro supercondutor, introduzido no item 3.2.3, é empregado na descrição do estado supercondutor de um sistema constituído por grãos fracamente acoplados e é descrito pelo Hamiltoniano da eq. (4.17).

Com a aplicação de campo magnético o parâmetro de ordem supercondutor sofrerá um deslocamento de fase entre os grãos  $i$  e  $j$ . Com isso, o Hamiltoniano de tunelamento de pares da eq. (4.17), adicionado de um termo referente aos efeitos causados pela aplicação de campo magnético, assume a forma do Hamiltoniano da eq. (3.13).

$$H = -\sum_{\langle ij \rangle} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij})$$

O modelo representado pelo Hamiltoniano de tunelamento intergrãos da eq. (3.13) pertence à classe de universalidade 3D-XY no caso desordenado. Isto é consistente com a ocorrência de uma transição de fase de segunda ordem paracoerente-coerente na temperatura crítica  $T_{c0}$ . Este Hamiltoniano também é análogo àquele que descreve um sistema desordenado de spins planares.

Por outro lado, o modelo vidro de vórtices, discutido na seção 3.2.4, foi proposto para descrever o comportamento dos supercondutores de alta temperatura crítica fortemente desordenados logo após atingida a temperatura crítica de transição, na qual é estabelecido o estado de vidro de vórtices,  $T_g$ . Conforme discutido na seção 3.2.4, a fase na qual a rede de vórtices de Abrikosov não possui ordem translacional de longo alcance é denominada de vidro de vórtices onde o efeito devido às flutuações térmicas desestabiliza esta fase.

O modelo vidro de vórtices é de particular interesse no presente trabalho, já que o estudo da transição de fase vidro de vórtices é efetuado com base na teoria de "scaling" dinâmico. O modelo propõe que o sistema em questão caracteriza-se por apresentar comprimentos divergentes em  $T_g$  e por leis universais de "scaling". Neste caso, o comprimento relevante é  $\xi_G$ , o qual representa a escala de comprimento na qual a fase do parâmetro de ordem permanece correlacionada (comprimento de correlação da fase de vidro de vórtices). A divergência de  $\xi_G$  nas proximidades da transição,  $T_g$  pode ser expressa como:<sup>[67,117]</sup>

$$\xi_G \propto (T - T_g)^{-\nu} \quad (4.19)$$

onde  $\nu$  é o expoente crítico. Associada a este comprimento de correlação há uma relaxação temporal,  $\tau_G$  cujo "scaling" pode ser escrito como:

$$\tau_G \approx \xi_G^z \quad (4.20)$$

onde  $z$  é o expoente crítico dinâmico.

**Capítulo 4 – Efeito de Flutuações Supercondutoras na Magnetocondutividade Elétrica dos HTSC**

As leis de "scaling" descrevem as propriedades de transporte nas vizinhanças de  $T_g$ . Uma densidade de corrente externa,  $j$  "testa" o sistema de dimensionalidade  $d$  em um comprimento característico de escala,  $L_{SC}$  definido por:<sup>[118]</sup>

$$L_{SC} = \frac{k_B T}{\phi_0 j^{d-1}} \quad (4.21)$$

Para temperaturas maiores do que  $T_g$ , em baixas correntes aplicadas, e quando  $L_{SC} > \xi_G$ , a fase do parâmetro de ordem é descorrelacionada por flutuações térmicas e espera-se que a resistência elétrica obedeça a lei de Ohm. Reduzindo-se a temperatura na direção de  $T_g$ , o comprimento de correlação vidro de vórtices,  $\xi_G$  cresce, diminuindo a resistividade até zero, segundo uma lei de potência do tipo:

$$\rho(T) = A(T - T_G)^S \quad (4.22)$$

onde  $S = \nu(z + 2 - d)$ . O valor de  $S$  encontrado experimentalmente no sistema  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  é aproximadamente 4.<sup>[119]</sup>

Se  $L_{SC} < \xi_G$  e  $T > T_G$ , a corrente aplicada quebra a correlação de fase, originando movimento das linhas de vórtice e um comportamento não-ôhmico na característica corrente contra tensão.

## ***Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais***

Nesse capítulo descreveremos os processos experimentais usados na produção de amostras monocristalinas e policristalinas bem como a caracterização estrutural das mesmas, empregando as técnicas de difração de raio-X e microscopia ótica de luz polarizada.

Em uma segunda etapa, apresentaremos os equipamentos empregados nas medidas de magnetometria e de transporte elétrico, bem como, os métodos de manipulação e procedimentos experimentais adotados para a realização das medidas experimentais com esses equipamentos.

### ***5.1 - Amostras Monocristalinas***

O crescimento de monocristais supercondutores de alto  $T_c$  de boa qualidade é incentivado por vários fatores. Primeiramente, a partir da obtenção desses materiais podemos medir as propriedades intrínsecas dos HTSC, tais como, os limites de campo crítico inferior,  $H_{c1}$  e superior,  $H_{c2}$ , os comprimentos de coerência  $\xi$  e penetração  $\lambda$  bem como o valor de  $T_c$ . A determinação dessas propriedades ajuda na compreensão da física envolvida no mecanismo supercondutor e permite a classificação do potencial tecnológico desses materiais.

Por outro lado, o estudo do crescimento de monocristais, pode favorecer o entendimento dos mecanismos de crescimento operante em outros tipos de processamento de materiais como a texturização ou crescimento de filmes finos.

#### ***5.1.1 - Técnicas de Crescimento - Técnica de Auto-Fluxo***

A técnica de auto-fluxo<sup>[120-122]</sup> ("flux-growth") é a mais empregada no crescimento de monocristais supercondutores e foi utilizada por nós nesse trabalho.

Esta técnica caracteriza-se pelo crescimento de monocristais em temperaturas abaixo da fase líquida. Inicialmente, uma mistura é preparada segundo uma estequiometria específica empregada para a obtenção dos monocristais supercondutores desejados. Nessa solução inicial, alguns dos componentes químicos de mais baixo ponto de fusão são adicionados em excesso comportando-se como fluxo. Além disso, o excesso desses elementos tem por objetivo compensar a evaporação de grandes quantidades dos mesmos durante o processo de crescimento. Tomando como exemplo o crescimento de monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$  puro, os elementos adicionados em excesso são o carbonato de bário ( $\text{BaCO}_3$ ) e principalmente o óxido de cobre ( $\text{CuO}$ ). Este fluxo excedente atuará como meio líquido onde os outros elementos são dissolvidos a partir da mistura estequiométrica onde os futuros monocristais serão nucleados.

Para desencadear o processo de auto-fluxo, eleva-se gradativamente a temperatura até atingir-se as temperaturas de fusão do  $\text{CuO}$  e do  $\text{BaCO}_3$ , os quais

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

formam o fluxo. A mistura deve permanecer nessa temperatura até que o fluxo se sature dos componentes e escorra da mistura.

Na terceira etapa, o fluxo evapora gradativamente tornando a concentração crítica. A medida em que a temperatura é diminuída lentamente se estabilizam os primeiros centros de nucleação que a seguir crescem na superfície do fluxo facilitando assim a remoção dos cristais durante o processo.<sup>[123,124]</sup>

Durante o processo de crescimento dos monocristais utilizamos um cadinho de zircônia em forma de uma gamela retangular, inclinado em um ângulo de aproximadamente 20 ° em relação a horizontal. A mistura de aproximadamente 5 g é compactada no lado superior da forma a partir de onde o fluxo normalmente escorre.

O próximo passo empregado é o decréscimo da temperatura até o valor ambiente. Durante esse procedimento, uma atenção especial deve ser dada a faixa de temperaturas em torno de 700 °C onde ocorre a transição estrutural tetragonal-ortorrômbica para o  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . A taxa de decréscimo escolhida deve permitir o sucesso desta transição.

Atingida a temperatura ambiente, removemos mecanicamente os monocristais do resíduo de fluxo sólido, que nunca evapora por completo durante o processo. A última etapa do processo é a de oxigenação dos monocristais, uma vez que a técnica de auto-fluxo fornece cristais com deficiência de oxigênio e que em geral não são supercondutores.

### **5.1.1 - Procedimentos Experimentais Utilizados no Crescimento de Monocristais**

Para a realização desse trabalho foram preparados inúmeros monocristais de monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  puro e dopados. Os monocristais dopados são aqueles nos quais o Ba foi substituído parcialmente por Sr nas proporções nominais de 5, 12.5, 18.75, e 25 % ou o Cu foi substituído por átomos de Mg ou Zn na proporção nominal de 1 %.

#### **5.1.2.1- Preparação Estequiométrica dos Ingredientes e Maceração**

Foram utilizados carbonatos e óxidos precursores de alta pureza no crescimento de monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ; ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ) e  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{M}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$ ; ( $M = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). Os óxidos e carbonatos utilizados foram os seguintes: óxido de ítrio ( $\text{Y}_2\text{O}_3$ ) com pureza de 99.999 %, carbonato de bário ( $\text{BaCO}_3$ ) com pureza de 99.999 %, carbonato de estrôncio ( $\text{SrCO}_3$ ) com pureza de 99.995 %, óxido de cobre ( $\text{CuO}$ ) com pureza de 99.9999 %, óxido de zinco ( $\text{ZnO}$ ) com pureza de 99.995 % e óxido de magnésio ( $\text{MgO}$ ) com pureza de 99.95 %.

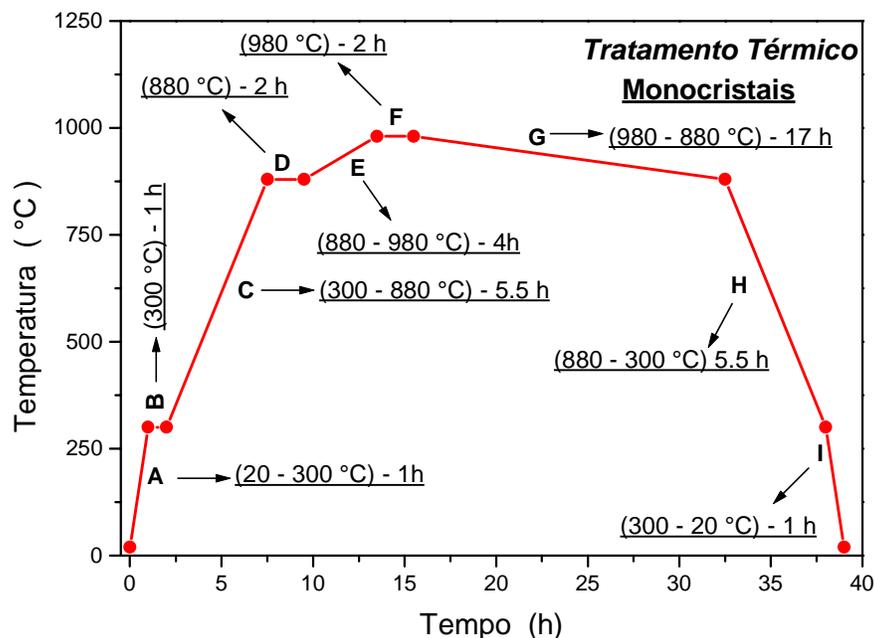
Primeiramente, foi feito um tratamento dos pós precursores, separadamente, a 300 °C por um período de 3 h, com o objetivo de eliminar alguma umidade eventualmente presente. Uma vez desumidificados, os pós foram pesados com precisão de centésimos de mg, para então serem misturados e macerados num almofariz de ágata até se obter uma mistura bastante homogênea. As proporções escolhidas para os compostos precursores correspondem às estequiometrias  $\text{YBa}_4\text{Cu}_{10}\text{O}_y$ ,  $\text{YBa}_{4-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_{10}\text{O}_y$ ; ( $x = 0.2, 0.5, 0.74$  e  $1$ ) e  $\text{YBa}_4\text{Cu}_{9.9}\text{M}_{0.1}\text{O}_y$ ; ( $M = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). A seguir, a mistura foi empilhada em um dos lados do cadinho de

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

zircônia estabilizada com ítrio. O cadinho, contendo a mistura, foi acomodado no interior do forno inclinado  $20^\circ$  em relação à linha horizontal, conforme explicado na seção anterior.

### 5.1.2.2- Tratamento Térmico

A *fig. 5.1* ilustra o ciclo térmico adotado durante a produção dos monocristais.



**Fig. 5.1** - Tratamento térmico utilizado na produção de monocristais.

A etapa A consiste na elevação da temperatura de  $20$  à  $300^\circ\text{C}$  obedecendo uma taxa de  $280^\circ\text{C}/\text{h}$ .

Na etapa B a temperatura é estabilizada em  $300^\circ\text{C}$  por uma hora, esta parada é estratégica e tem como objetivo a eliminação de alguma eventual umidade adquirida pela mistura durante os procedimentos de pesagem e maceração.

O passo C caracteriza-se pela elevação da temperatura de  $300$  a  $880^\circ\text{C}$  em uma taxa de  $105.45^\circ\text{C}/\text{h}$ . Durante esses passos espera-se que haja uma queima total dos carbonos existentes na reação.

No procedimento D, a temperatura é estabilizada em  $880^\circ\text{C}$  por um período de  $2$  h.

A lenta elevação da temperatura no passo E,  $880 - 980^\circ\text{C}$ , na razão de  $25^\circ\text{C}/\text{h}$ , proporciona a formação inicial do fluxo de BaO-CuO saturado de  $\text{Y}_2\text{O}_3$  e SrO, quando se tratar dos monocristais onde a substituição parcial ocorreu no sítio do Ba, de  $\text{Y}_2\text{O}_3$  e MgO ou  $\text{Y}_2\text{O}_3$  e ZnO, quando se tratar dos monocristais onde a substituição parcial ocorreu no sítio do Cu.

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

A etapa **F** apresenta a temperatura estabilizada em 980 °C por um período não inferior a duas horas. Nessa etapa ocorre a chamada dissolução iônica ou seja, as soluções saturadas formadas na etapa anterior, onde BaO e o CuO são os solventes e o Y<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, SrO, MgO e o ZnO são os solutos. A formação de uma solução saturada ocorre à medida que esta escorre para o lado inferior do cadinho juntamente com a evaporação do fluxo de CuO-BaO.

O passo **G** marca a etapa mais importante do processo de preparação de monocristais, ele ocorre entre 980 e 880 °C para uma taxa de decréscimo da temperatura em torno de 5.88 °C / h. Durante este período ocorre a evaporação do fluxo e o surgimento de muitos centros de nucleação que resultam no crescimento monocristais.

A entrada na etapa **H**, (880 à 300 °C) marca o fim do processo de crescimento dos cristais e dá início a transição estrutural tetragonal-ortorrômbica que ocorre nos supercondutores da família RE-123, onde RE representa elementos terra-rara. A taxa de redução de temperatura utilizada durante esta etapa foi de 105.45 °C / h.

O passo **I** marca o decréscimo da temperatura de 300 °C para temperatura ambiente a qual ocorre na razão de 280 °C / h.

A utilização da estequiometria 1:4:10 para a mistura inicial, juntamente com os processos de homogeneização e de tratamento térmico apropriado, proporcionaram a obtenção de uma grande quantidade de monocristais que na sua grande maioria apresentam a forma de plaquetas de aproximadamente 0.1 mm de espessura nos mais variados tamanhos e formas.

Por outro lado, outros cuidados experimentais foram essenciais para o sucesso da operação de crescimento dos monocristais em nosso laboratório. Por exemplo, a não incidência direta da radiação das resistências de aquecimento do forno sobre a mistura, o que evita a evaporação em demasia do fluxo. A configuração adequada do valor e a direção do gradiente de temperatura na região do cadinho durante o processo de crescimento foram fatores decisivos para o sucesso da operação.

### **5.1.2.3 - Oxigenação**

Uma etapa importante para obtenção de monocristais supercondutores de boa qualidade é a de oxigenação. Os monocristais de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> puro ou dopados, obtidos a partir da técnica de auto-fluxo são deficientes em oxigênio. Nesses monocristais a transição supercondutora, quando verificada experimentalmente, somente ocorre em temperaturas mais baixas. Portanto, para tornarem-se bons supercondutores esses monocristais devem passar por um processo adicional de oxigenação.

A oxigenação dos monocristais de YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> depende de vários fatores.<sup>[125-127]</sup> Entre eles, estão a temperatura em que a oxigenação ocorre (200 – 500 °C), a pureza e o valor da pressão da atmosfera de oxigênio (entre alguns décimos até algumas dezenas de atmosferas) e o tempo de oxigenação (10 – 30 dias). Descrevemos a seguir os procedimentos experimentais empregados durante a etapa de oxigenação dos monocristais utilizados nesse trabalho.

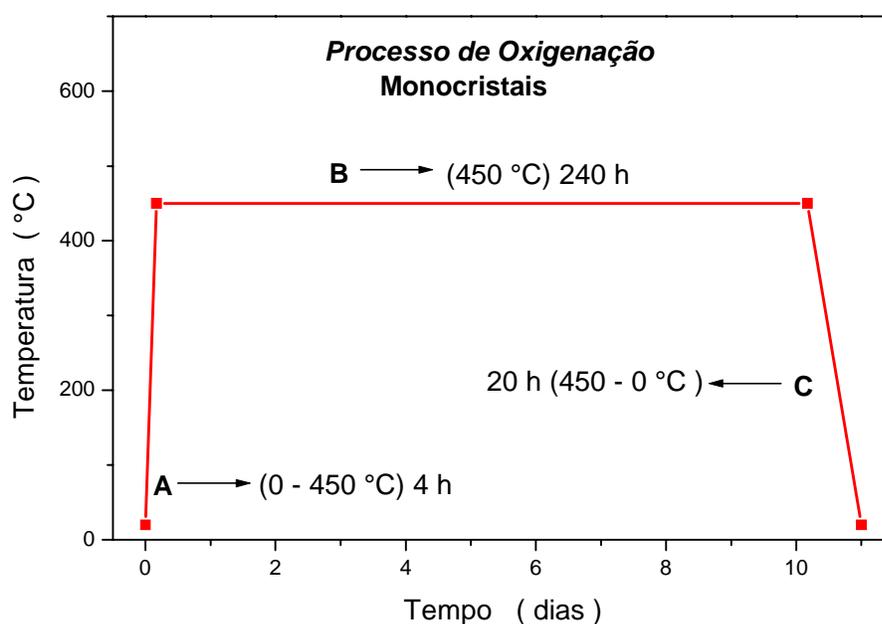
## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

Os monocristais minuciosamente selecionados para a etapa de oxigenação foram encapsulados entre duas pastilhas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  policristalino. O uso desta cápsula na etapa de oxigenação foi essencial para obtenção de uma atmosfera homogênea de oxigênio puro em torno da superfície dos monocristais. Tentativas anteriores de oxigenação dos monocristais sem o encapsulamento de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  levaram a resultados nada satisfatórios.

A cápsula envolvendo os monocristais foi acondicionada sobre um cadinho de alumina, apropriadamente moldado para este fim. Este conjunto, por sua vez, é colocado no interior de um tubo de quartzo do sistema de atmosfera controlada. O tratamento foi feito em fluxo de oxigênio de alta pureza a 1 atm, sendo que o conteúdo de oxigênio foi sendo renovado diariamente.

O controle da temperatura durante o processo de oxigenação foi realizado com um termopar de platina-rhodium distante 2 cm da capsula contendo os monocristais.

O tratamento térmico utilizado durante a etapa de oxigenação é ilustrado pela *fig. 5.2*.



**Fig. 5.2** - Tratamento térmico utilizado durante a etapa de oxigenação dos monocristais.

A etapa A resume-se na elevação da temperatura desde ambiente até 450 °C a uma taxa de 107,5 °C / h. O único cuidado que tomamos nessa etapa foi com o controle da pressão de  $\text{O}_2$  no interior do tubo de quartzo. O rápido aquecimento provoca elevação da pressão de  $\text{O}_2$  no interior do tubo e isso pode provocar rompimentos nas vedações do mesmo.

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

Atingida a temperatura de 450 °C inicia-se o passo B o qual se estende por dez dias onde durante este período de tempo ocorre a oxigenação dos monocristais.

Durante a etapa C a temperatura é decrescida de 450 °C até ambiente a uma razão de aproximadamente 21.5 °C / h.

### 5.1.2.4 - Caracterização dos Monocristais

Foram empregadas diversas técnicas experimentais na caracterização dos monocristais. Dentre elas, a de microscopia ótica de luz polarizada, para visualizar a presença de maclas, a difratometria de raio-X, para a identificação das fases cristalinas e para a determinação do valor do parâmetro de rede  $c$ . Por outro lado, as medidas de resistividade e de magnetização DC, mostram a largura e a natureza da transição supercondutora bem como a presença de diferentes fases supercondutoras, se houverem.

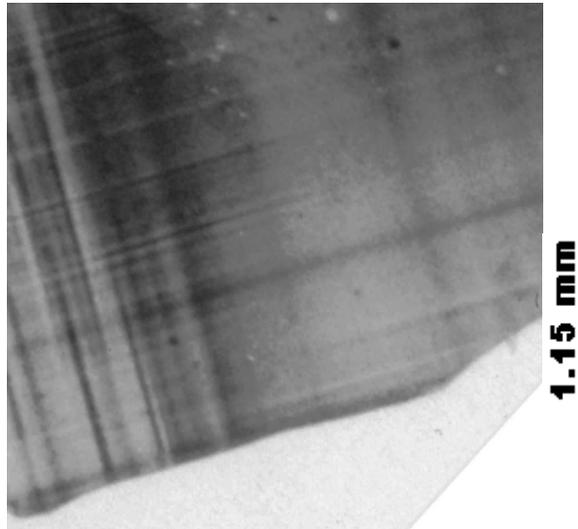
#### 5.1.2.4.1 - Microscopia Ótica

O exame a partir da microscopia de luz polarizada (MLP), tornou possível a análise da qualidade da superfície dos monocristais. A ocorrência de incrustações ou defeitos macroscópicos, bem como a visualização da direção e domínios de maclas nos monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  puro e dopados foram checados. Em particular, a superfície dos monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , em geral, apresenta mosaicos de regiões macladas ortogonalmente. Alguns desses monocristais eram claramente monodomínios de maclas. Com o auxílio do MLP, foi possível orientar a direção das maclas em relação ao campo magnético aplicado ao longo do plano  $ab$  dos monocristais ( $H // ab$ ). Sendo assim, realizamos medidas de magnetização DC orientando os monodomínios de maclas paralelamente ( $\phi = 0$ ) e diagonalmente ( $\phi = 45^\circ$ ) em relação a  $H$  aplicado ao longo do plano  $ab$  dos monocristais.

As *figuras 5.3 e 5.4*<sup>[128,129]</sup> foram obtidas a partir de fotografias tiradas incidindo luz polarizada sobre o plano  $ab$ , ao longo do eixo  $c$  dos monocristais e passando a luz refletida pelo analisador em posição de mínima transmissão da luz e então entrando na câmera fotográfica acoplada ao MLP. Portanto, as *figuras 5.3 e 5.4* ilustram respectivamente as superfícies dos monocristais de  $\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , (MCSr025A) com uma área de aproximadamente de 1.5 mm<sup>2</sup> e de  $\text{YBa}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , (MCSr05) apresentando uma área superficial de aproximadamente 0.12 mm<sup>2</sup>. Nestas figuras, é possível observar a presença de regiões com tonalidade xadrez, as quais, mostram a presença de microregiões densamente macladas ortogonalmente. A substituição parcial do Ba por Sr no  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , favorece a formação de maclas tal como observado por Saito e colaboradores, veja item 2.1.1.

Por outro lado, não observamos densidade relevante de maclas nos monocristais dopados com Zn ou Mg.

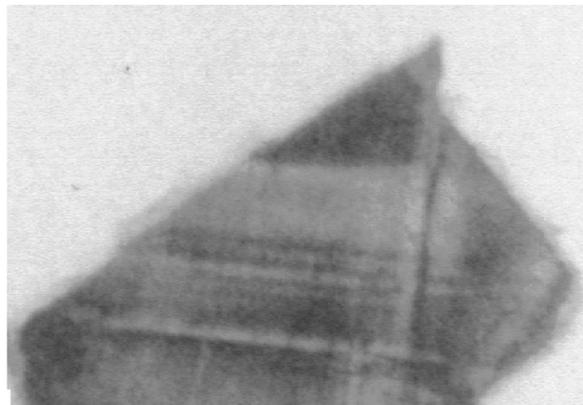
Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais



**1.15 mm**

**1.3 mm**

5.3 - Imagem da superfície do monocrystal de  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  obtida por MLP.<sup>[128]</sup>



**0.23 mm**

**0.52 mm**

5.4 - Imagem da superfície do monocrystal de  $YBa_{1.5}Sr_{0.5}Cu_3O_{7-\delta}$  obtida por MLP.<sup>[129]</sup>

**5.1.2.4.2 - Difratomogramas de Raio-X**

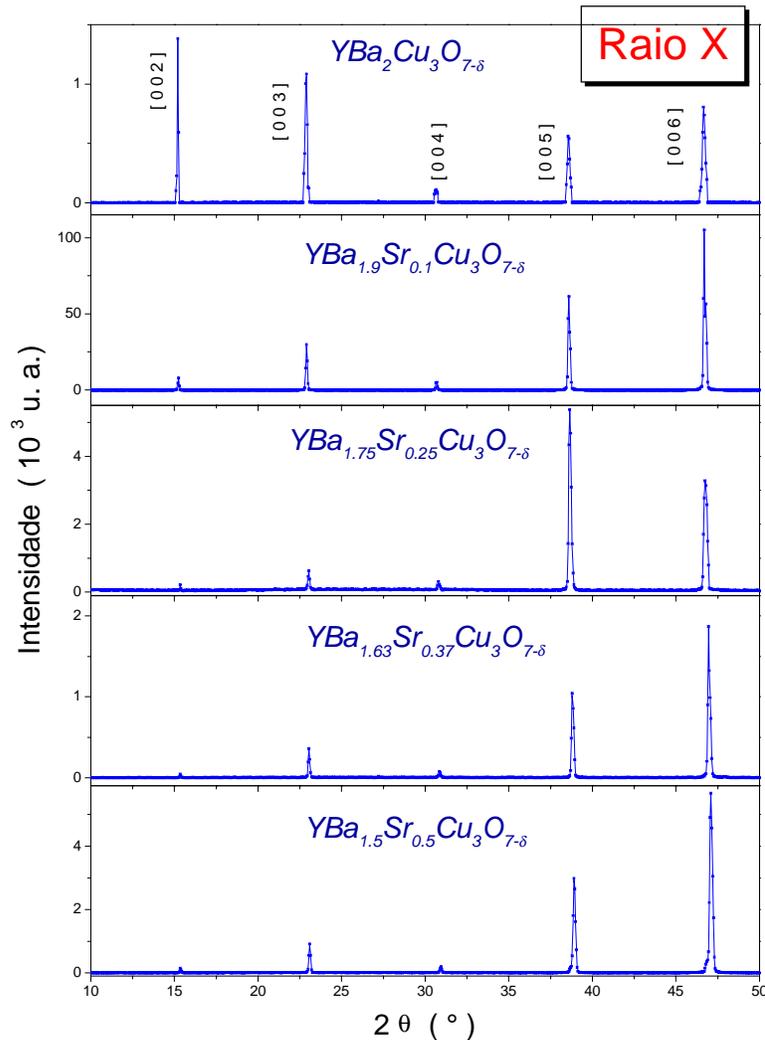
As amostras monocristalinas dopadas tiveram suas estruturas cristalográficas analisadas por meio de difração de raio-X, utilizando-se a radiação  $\text{CuK}\alpha$ , ( $\lambda_{\text{CuK}\alpha} = 1.54178 \text{ \AA}$ ). Usando a lei de Bragg,

$$n\lambda = 2d \sin \theta \quad (5.1)$$

juntamente com a equação:

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2} \quad (5.2)$$

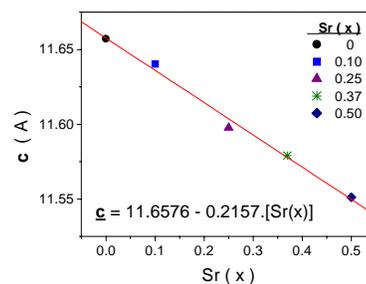
calculamos os valores dos parâmetros de rede, os quais estão relacionados nas tabelas 5.1 e 5.2. Nos difratogramas das *figuras* 5.5 e 5.7, obtidos para os monocristais, orientados ao longo do eixo  $c$ , pode-se observar a presença apenas das linhas  $[00l]$ , onde  $l = 1, 2, 3 \dots$ , mostrando que a superfície dos monocristais está orientada paralelamente ao plano  $ab$  onde as posições angulares dos picos estão relacionadas aos respectivos planos de difração, a partir dos quais o parâmetro  $c$  médio é calculado. A *fig.* 5.5 apresenta os difratogramas para os monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ; ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ). Comparando-se os difratogramas dos monocristais dopados com o obtido para o monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , observa-se que a substituição parcial do Ba, em até 25 %, por Sr não provocou a formação de multifases, conforme observado em amostras policristalinas pela literatura<sup>[19-25]</sup> e discutido no item 2.1. De acordo com a tabela 5.1, os valores para o parâmetro de rede  $c$  decrescem na medida em que elevamos a concentração de Sr. Segundo a *fig.* 5.6, este decréscimo ocorre de maneira linear<sup>[25]</sup> onde a variação obedece à relação destacada nesta figura.



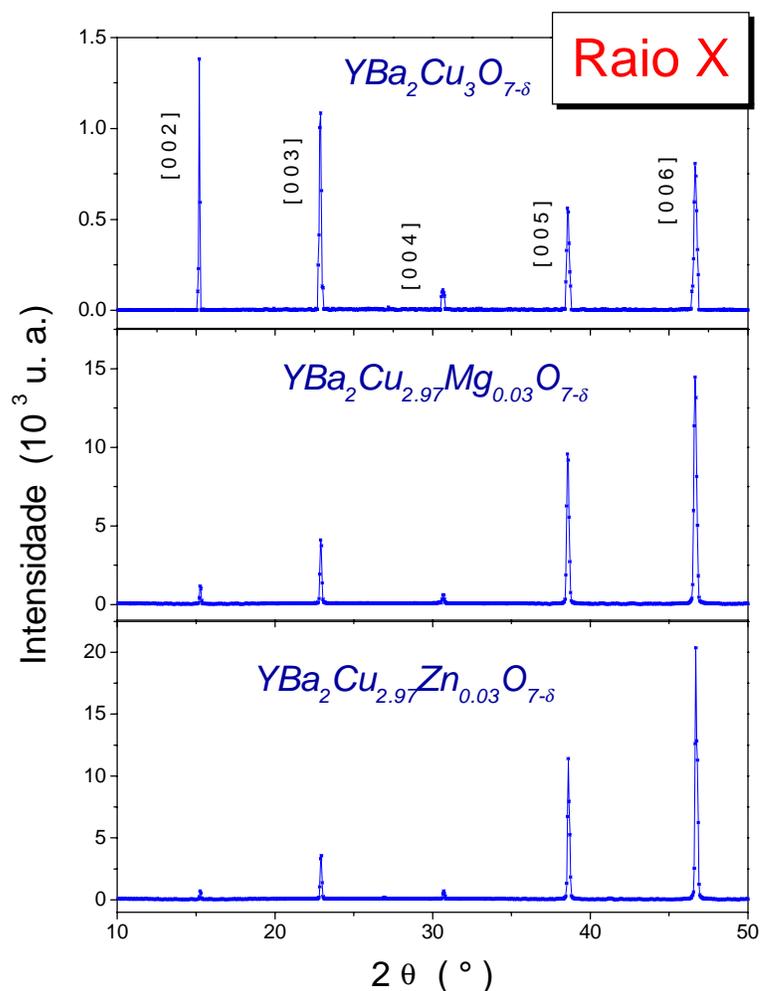
**Fig. 5.5** - Espectros de raio-X para os monocristais de  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ ; ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ).

Parâmetro de rede	
Amostras	$\bar{c}$ (Å)
$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	11.6569
$YBa_{1.9}Sr_{0.1}Cu_3O_{7-\delta}$	11.6404
$YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$	11.5977
$YBa_{1.63}Sr_{0.37}Cu_3O_{7-\delta}$	11.5760
$YBa_{1.5}Sr_{0.5}Cu_3O_{7-\delta}$	11.5511

**Tab. 5.1** - Valores determinados para o parâmetro de rede  $c$ .



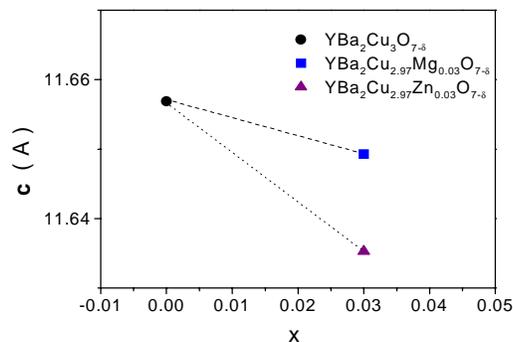
**Fig. 5.6** - Variação de  $c$  em função de  $Sr(x)$ .



**Fig. 5.7** - Espectros de raio-X para os monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e  $YBa_2Cu_{2.97}M_{0.03}O_{7-\delta}$ ; ( $M = Mg$  ou  $Zn$ ).

Parâmetro de rede	
Amostras	$\bar{c}$ (Å)
$YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	11.6569
$YBa_2Cu_{2.97}Mg_{0.03}O_{7-\delta}$	11.6404
$YBa_2Cu_{2.97}Zn_{0.03}O_{7-\delta}$	11.6353

**Tab. 5.2** - Valores determinados para o parâmetro de rede  $c$ .



**Fig. 5.8** - Variação de  $c$  em função da adição de  $Zn$  e  $Mg$ .

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

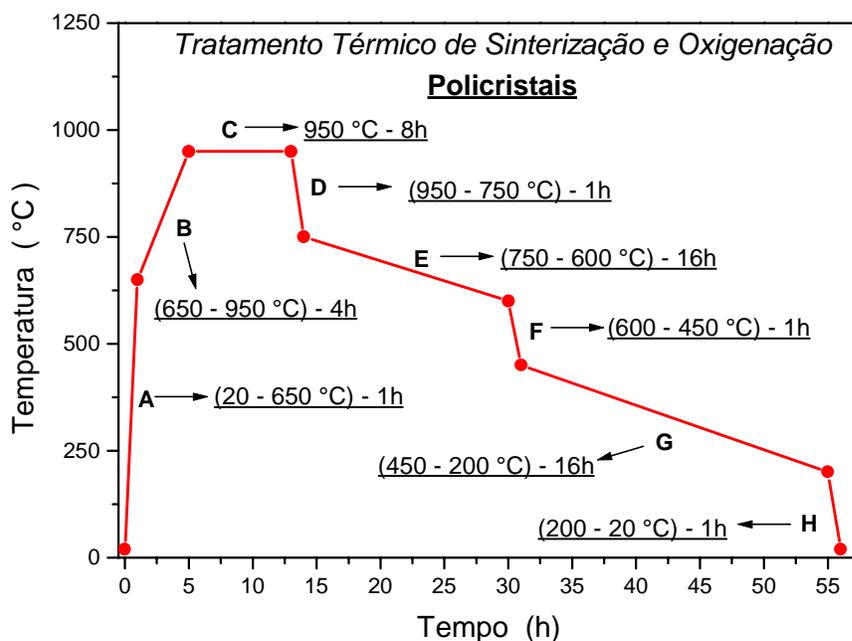
A *fig. 5.7*, da mesma forma que a *fig. 5.5*, ilustra os difratogramas de raio-X obtidos para os monocristais dopados com Zn e Mg comparados ao do monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Concluí-se que quando substituímos 1 % do Cu no monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  por átomos de Zn ou Mg, não verificamos a tendência de formação de fases espúrias pois as linhas observadas nos difratogramas dos monocristais dopados são as mesmas observadas para o monocristal puro.

Na *tab. 5.2* listamos os valores calculados para o parâmetro  $\bar{c}$  médio, os quais apresentam valores próximos aos apontados pela literatura.<sup>[37-39,40]</sup> De acordo com a *fig. 5.8*, a substituição de 1 % do Cu causou um leve decréscimo do parâmetro  $\bar{c}$ , porém, mais acentuado para a substituição com Zn do que com o Mg.

### 5.2 - Amostras Policristalinas

#### 5.2.1 - Produção de Amostras Policristalinas

Duas amostras policristalinas obedecendo as estequiometrias:  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , denominada de PY e  $\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , denominada de PSr, foram preparadas a partir de óxidos e carbonatos precursores de alta pureza pelo método usual de reação em sólido<sup>[130]</sup> a 930 °C com posterior prensagem e sinterização conforme programa da *fig. 5.9*.



**Fig. 5.9** - Tratamento térmico utilizado na produção de policristais.

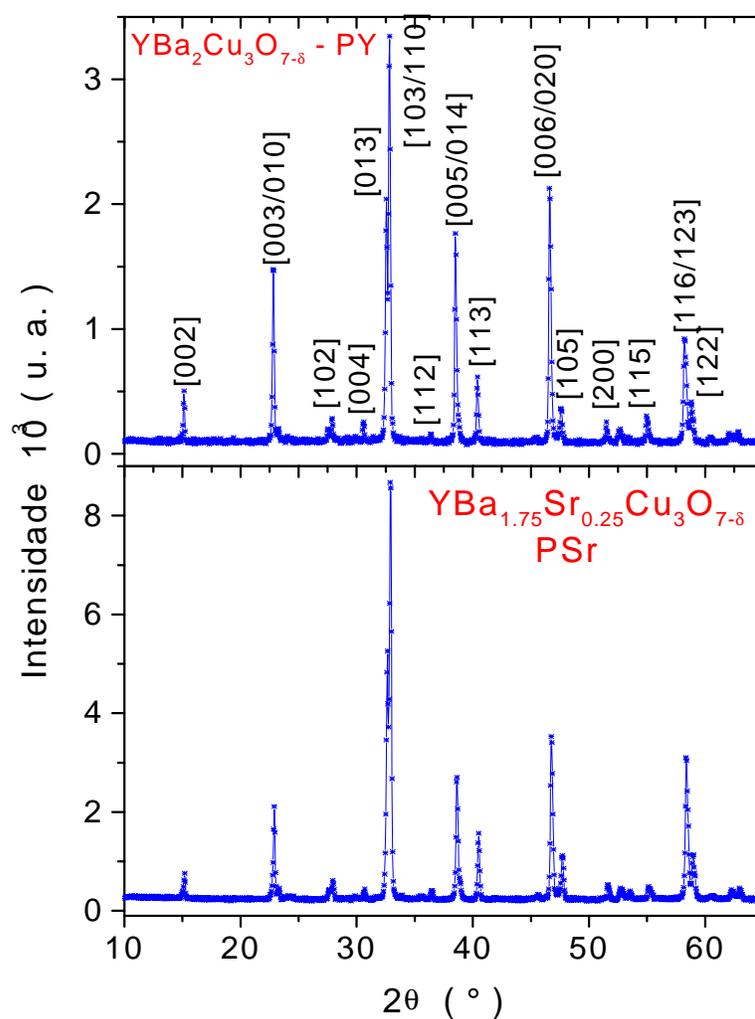
Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

Durante este processo, as amostras PY e PSr foram mantidas em fluxo constante de O<sub>2</sub> a uma pressão de 1 atm.

**5.2.2 - Caracterização Estrutural (Análise Raio - X)**

As amostras, tiveram suas estruturas cristalográficas investigadas por meio de difração de raio-X, utilizando-se o método do pó e fazendo-se uso da radiação CuK $\alpha$  conforme discutido para as amostras monocristalinas.

A *figura 5.10*, ilustra os respectivos difratogramas de raio-X para as amostras policristalinas conforme identificando os picos por seus índices de Mülher.



**Fig. 5.10** - Espectros de raio-X para para os policristais PY e PSr.

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

As posições das linhas coincidem com os da literatura<sup>[19-25]</sup> e as intensidades variam dentro dos limites estatísticos. A amostra PSr apresenta uma estrutura ortorrômbica característica, com valores de cela unitária devidamente reduzidos em relação à amostra PY conforme apresenta a tab. 5.3.

Amostras	Parâmetros de Rede (Å)		
	$\bar{a}$	$\bar{b}$	$\bar{c}$
$YBaCu_3O_{7-\delta}$ - PY	3,8189	3,8916	11,6799
$YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$ - PSr	3,8155	3,8774	11,6379

Tab. 5.3 - Relação dos parâmetros de rede para as amostras PY e PSr.

### 5.2.3 - O Processo de desoxigenação

A fim de atender os objetivos desse trabalho, as amostras policristalinas PY e PSr<sup>[130-131]</sup> foram submetidas a processo de desoxigenação, constituído em mantelhas em vácuo (~ 0.02 Torr), em temperaturas que variam entre 300 e 450 °C por períodos que variam entre alguns minutos e algumas horas. A perda de massa, presumidamente em oxigênio é monitorada por meio de sucessivas pesagens em balança de precisão antes e depois da realização do processo de desoxigenação.

Os tratamentos de desoxigenação e os valores de  $\delta$  calculados são descritos na tabela 5.4.

	Tratamentos	$\delta$
$YBaCu_3O_{7-\delta}$ - PY	380 °C - 45 min	0 → 0.15
$YBaCu_3O_{7-\delta}$ - PY	400 °C - 60 min	0 → 0.43
$YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$ - PSr	380 °C - 15 min	0 → 0.30

Tab. 5.4 - Processos de desoxigenação e os valores de  $\delta$  para as amostras PY e PSr.

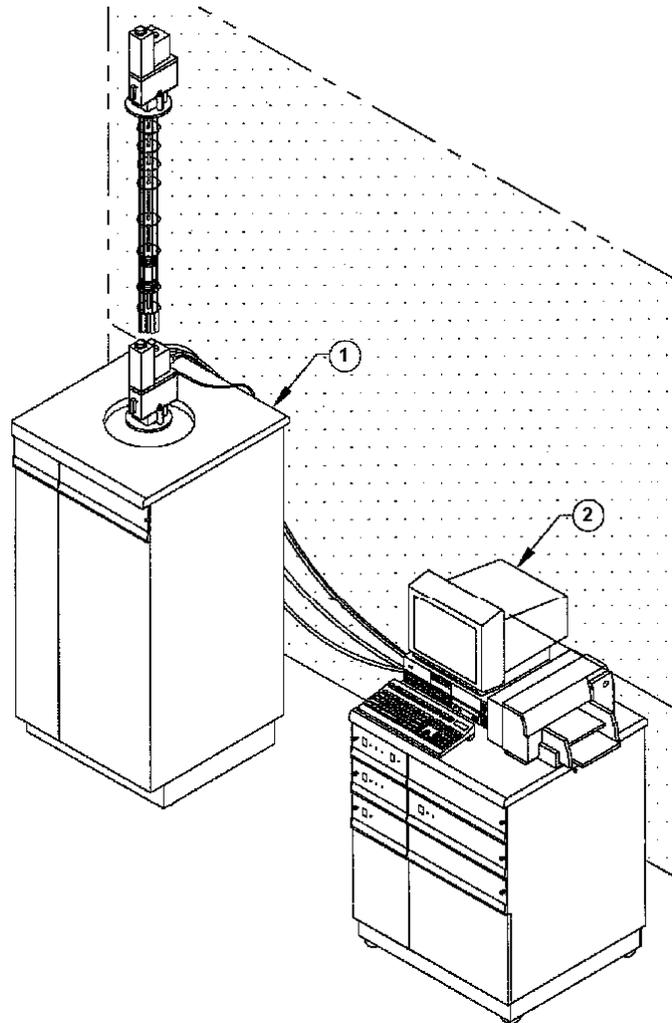
Verifica-se por estes resultados que a saída de oxigênio da amostra PSr ocorre mais rapidamente do que a observada na amostra PY. Este fato é de suma importância na programação do processo.

### 5.3 - A Técnica de Magnetização DC

Neste item caracterizaremos as medidas de magnetometria DC e detalharemos os equipamentos, procedimentos e técnicas experimentais empregados nas medidas.

### 5.3.1 - O Magnetômetro de SQUID

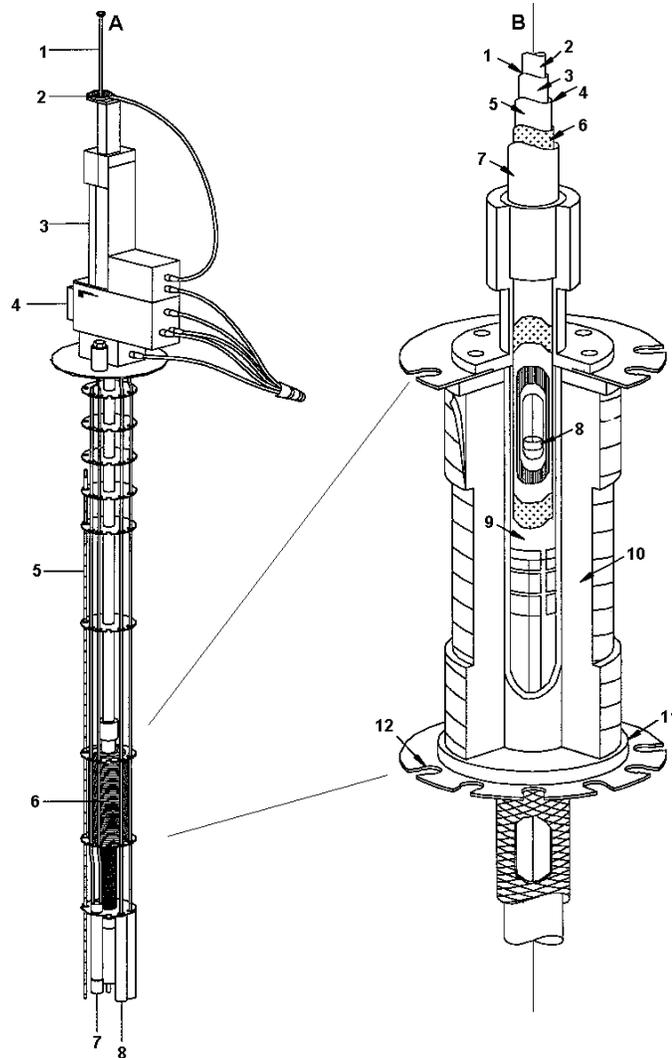
As medidas de magnetização em função da temperatura e campo magnético,  $M(T,H)$  foram efetuadas com o uso de um magnetômetro de SQUID, ou MPMS ("Magnetic Properties Measurement System"), modelo 2000 fabricado pela "Quantum Design". Neste equipamento, a susceptibilidade magnética pode ser medida com uma precisão de até  $5.10^{-7}$  e.m.u. e em campos magnéticos aplicados de até 50 kOe. O sistema opera em uma faixa de temperatura compreendida entre 1.9 e 400 K, onde a taxa de variação de temperatura pode ocorrer desde 0.01 até 10 K/min e pode ser lida com uma precisão de 0.01 K. As *figuras 5.11 e 5.12* mostram uma representação para o sistema, o qual é constituído pelas partes criogênica e eletrônica.



**Fig. 5.11** - Visualização do magnetômetro de SQUID: a parte (1) corresponde a etapa criogênica e a parte (2) representa o sistema de controle do equipamento.

**Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais**

A parte criogênica é constituída por um criostato superisolado no qual se encontra inserido um "inset", *fig. 5.12*, contendo o magneto supercondutor (6), o sensor SQUID (8), o sistema de termometria e válvulas do controle de temperatura, etc., *fig. 5.12A*. O interior do tubo suporte do magneto também serve de compartimento para a amostra, contendo o sensor de temperatura, bobinas de captação de sinal magnético, a haste de transporte, etc. conforme ilustra a *fig. 5.12B*.



**Fig. 5.12 - O "inset" de medidas. A) 1-cana, 2-rotor, 3-transporte DC da amostra, 4-sonda, 5-Sensor de nível de He, 6-Solenóide supercondutor, 7-Impedância para fluxo de He, 8-cápsula do Squid. B) 1-Câmara da amostra, 2-Compartimento da amostra, 3-Folha isotérmica com aquecedor, 4-Região de isolamento térmico, 5-Parede de vácuo interno, 6-Superisolamento, 7-Parede de vácuo externo, 8-Amostra, 9-Parede interna da bobina supercondutora, 10- Solenóide supercondutor multifilamentar, 11-Parede externa da bobina, 12-Culote.**

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

O sistema é todo comandado por computador através de uma interface IEEE-488. A operação do magnetômetro de SQUID é feita por três controladores comandados pelo computador através de um programa desenvolvido pela "Quantum Design" para ambiente Windows 95, programa esse que vem sendo periodicamente atualizado.

O controlador modelo 1822 é responsável pelo funcionamento de todos os mecanismos ilustrados pela *fig. 5.12A*, como a translação e transporte da amostra, o acoplamento do aquecedor interno, a detecção do sinal SQUID, a fonte de corrente para a bobina supercondutora, a chave para a operação em modo persistente, a impedância e o sensor de nível de hélio líquido. O segundo controlador comanda a chave de fluxo de gás e o aquecedor, a chave do fluxo de ar e a bomba de vácuo. Uma ponte R/G modelo 1802 desempenha o papel de terceiro controlador e é responsável pelo sensor de temperatura e aquecimento de gás hélio.

O magnetômetro de SQUID apresenta a opção RSO ("Reciprocating Sample Option"), a qual consiste num método alternativo ao método DC (extração da amostra) para a determinação do momento magnético das amostras. Quando são feitas medidas através do RSO, a amostra move-se senoidalmente dentro da bobina de detecção. O RSO utiliza um "servo motor" de alta qualidade que permite o movimento da amostra durante a leitura de dados, além de um processador de sinais digital (DSP).

O método DC convencional utiliza o método de extração da amostra. O equipamento RSO tem duas grandes vantagens em relação ao DC. Primeiramente, a amostra não pára em cada posição de leitura, permitindo que os dados sejam obtidos mais rapidamente. Além disso, as técnicas de "lock-in" empregadas no DPS, reduzem a contribuição de ruídos de baixa frequência durante as medidas, resultando em uma medida a qual pode apresentar sensibilidade de até  $5 \cdot 10^{-9}$  e.m.u.. A opção RSO é compatível com muitas das outras opções do magnetômetro SQUID.

### **5.3.2 - Montagem das Amostras**

Os monocristais cuidadosamente selecionados para as medidas de magnetização, foram fixados com o uso de graxa de vácuo à superfície de um disco de teflon para aplicação de campo paralelo ao eixo  $c$ , ( $H // c$ ) e à superfície de uma placa de teflon para as medidas realizadas com aplicação ao longo do plano  $ab$ ,  $H // ab$ .

O porta-amostra de teflon, com a amostra, é inseridos por pressão no interior de um tubo cilíndrico de plástico preso à haste de transporte da amostra. É importante mencionarmos que o sinal do momento magnético produzido pelo conjunto teflon, graxa de vácuo e canudo de plástico é diamagnético e praticamente constante em função da temperatura.

### **5.3.3 - Procedimento de Medida**

As medidas de magnetização em função da temperatura foram realizadas para um grande número de valores de campos magnéticos DC aplicados entre 0.002 e 50 kOe e para faixas de temperatura compreendidas entre 10 e 100 K.

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

Antes de efetuarmos as medidas de magnetização DC precisamos determinar o valor do campo residual na bobina supercondutora. Para isso, usamos um padrão paramagnético de paládio cuja magnetização é medida ao longo de um ciclo de histerese. A determinação do valor do campo residual é especialmente importante nas medidas de magnetização em baixos valores de campo magnético e em operações de anulamento do campo magnético na bobina.

Logo após conhecermos o valor do campo residual na bobina, instalamos a amostra no equipamento, anulamos o campo magnético nas bobinas e decrescemos a temperatura até atingirmos um valor onde  $T < T_c$ . Atingida esta temperatura, aplicamos um campo magnético e partimos para o procedimento de centragem da amostra em relação as bobinas de "pick-up". Uma vez centrada a mostra, anulamos o valor do campo magnético e elevamos a temperatura a um valor superior ao  $T_c$  da amostra.

Após executar esses dois procedimentos anteriores passamos as medidas de magnetização em função da temperatura com a aplicação de diferentes intensidades de campo às amostras. Dois procedimentos de medida distintos foram utilizados, ZFC e FC. Estes são empregados para que possamos obter o ponto de irreversibilidades, o qual é determinado a partir da realização de medidas das curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  em sequência, o que implica na realização de mínimos ajustes na programação do equipamento, resultando assim em uma maior precisão do ponto experimental obtido.

O procedimento ZFC consiste inicialmente em campo magnético nulo resfriar a amostra a partir de uma temperatura situada acima de  $T_c$  à uma taxa de 10 K/min até atingir uma temperatura  $T$  onde obrigatoriamente  $T \ll T_c$ . Feito isso, aplica-se campo magnético DC desejado e durante o aquecimento lento da amostra (0.02 - 0.4 K/min), mede-se a magnetização  $M_{ZFC}(T)$ , até um limite ligeiramente acima de  $T_c$ . Atingido este limite, a amostra encontra-se em seu estado normal, onde é sabido que ela apresenta apenas um pequeno sinal paramagnético. Em seguida, sem efetuar qualquer ajuste no equipamento dá-se início ao procedimento FC, ou seja, a amostra volta a ser resfriada lentamente (mesma taxa utilizada durante a medida  $M_{ZFC}(T)$  (0.02 - 0.4 K/min)) só que, agora, sob campo magnético aplicado. Durante este resfriamento lento, a magnetização  $M_{FC}(T)$  é registrada pelo computador.

### **5.3.4 - Problemas Experimentais Durante as Medidas de Magnetometria DC**

Alguns problemas experimentais foram identificados principalmente durante as medidas de  $M(T)$  durante os procedimentos ZFC e FC. O primeiro deles decorre da existência de gradiente de temperatura entre os ramos de  $M_{ZFC}$  e  $M_{FC}$ . Este problema foi bastante amenizado com a utilização das menores taxas possíveis de variação de temperatura durante a execução dos procedimentos ZFC e FC. Outra medida adotada para amenizar os problemas relativos ao gradiente de temperatura foi a efetuar diversas perfurações no tubo plástico que contem a amostra e o porta-amostra proporcionando assim uma melhor circulação do gás He em torno da amostra. A Segunda dificuldade enfrentada foi o fato de que os monocristais devido a suas dimensões reduzidas, fornecem um sinal que varia entre  $10^{-4}$  e  $10^{-6}$  e.m.u.. Na

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

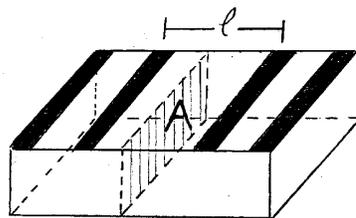
sua fase normal, os supercondutores apresentam um pequeno sinal paramagnético e quando se tornam supercondutores o sinal característico é de um diamagneto. A anulação do sinal da magnetização na temperatura de transição causa problemas ao sistema de centragem automático da amostra entre as bobinas de "pick-up", resultando em desvios, que são distintos nas curvas de  $M_{ZFC}$  e  $M_{FC}$ . Este problema torna-se fatídico quando coincide ou ocorre próximo ao limite de irreversibilidade. Para escaparmos deste problema usamos um artifício que provoque o deslocamento do sinal paramagnético da fase normal para o lado negativo, consistindo em aumentar o conteúdo de graxa de vácuo, a qual apresenta um sinal diamagnético quase constante em função da temperatura.

### **5.4 - A Técnica de Magnetoresistividade Elétrica**

Neste item descreveremos o processo de implementação de contatos elétricos nas amostras bem como os equipamentos, procedimentos e técnicas experimentais empregados nas medidas de magnetoresistividade.

#### **5.4.1 - Implementação de Contatos Elétricos**

Nas amostras selecionadas para a realização de medidas de magnetoresistividade elétrica foram implantados quatro contatos usando cola-prata ou epoxe, conforme ilustra a *fig. 5.13*. A fim de conseguir uma melhor deposição dos contatos, foi inicialmente depositado sobre a superfície das amostras um filme de cola-prata ou epoxe de aproximadamente 5  $\mu\text{m}$  de espessura sendo tratado a 240 °C durante 150 min com o objetivo de melhorar sua aderência à superfície da amostra.



**Fig. 5.13** - Esquemática da amostra para medida de resistividade indicando a distância entre os contatos de tensão,  $l$ , e a área,  $A$ , da seção transversal da mesma.

Após a determinação dos valores do caminho elétrico,  $l$  da área da seção transversal,  $A$  e da resistência elétrica em temperatura ambiente,  $R_{AMB}$  podemos determinar o valor da resistividade,  $\rho_{AMB}$  utilizando a seguinte relação:

**Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais**

$$\rho_{AMB} = R_{AMB} \frac{A}{l} \quad (5.3)$$

A tab. 5.5 mostra os valores de  $A$ ,  $l$ ,  $R_{AMB}$  e  $\rho_{AMB}$  obtido para as amostras.

AMOSTRAS	$l$ (mm)	$A$ (mm <sup>2</sup> )	$R_{AMB}$ (m $\Omega$ )	$\rho_{AMB}$ (m $\Omega$ cm)
YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> - PY	2.65	1.93	18.45	0.13
YBa <sub>1.75</sub> Sr <sub>0.25</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> - PSr	3.19	2.74	15.65	0.13
YBa <sub>2</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> - MCY2	0.21	0.07	15.86	0.06
YBa <sub>1.9</sub> Sr <sub>0.1</sub> Cu <sub>3</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> - MCSr01	0.22	0.39	27.96	0.06
YBa <sub>2</sub> Cu <sub>2.97</sub> Zn <sub>0.03</sub> O <sub>7-<math>\delta</math></sub> - MCZnB	0.12	0.05	20.7	0.08

Tab. 5.5 - Valores determinados para  $A$ ,  $l$ ,  $R_{AMB}$  e  $\rho_{AMB}$ .

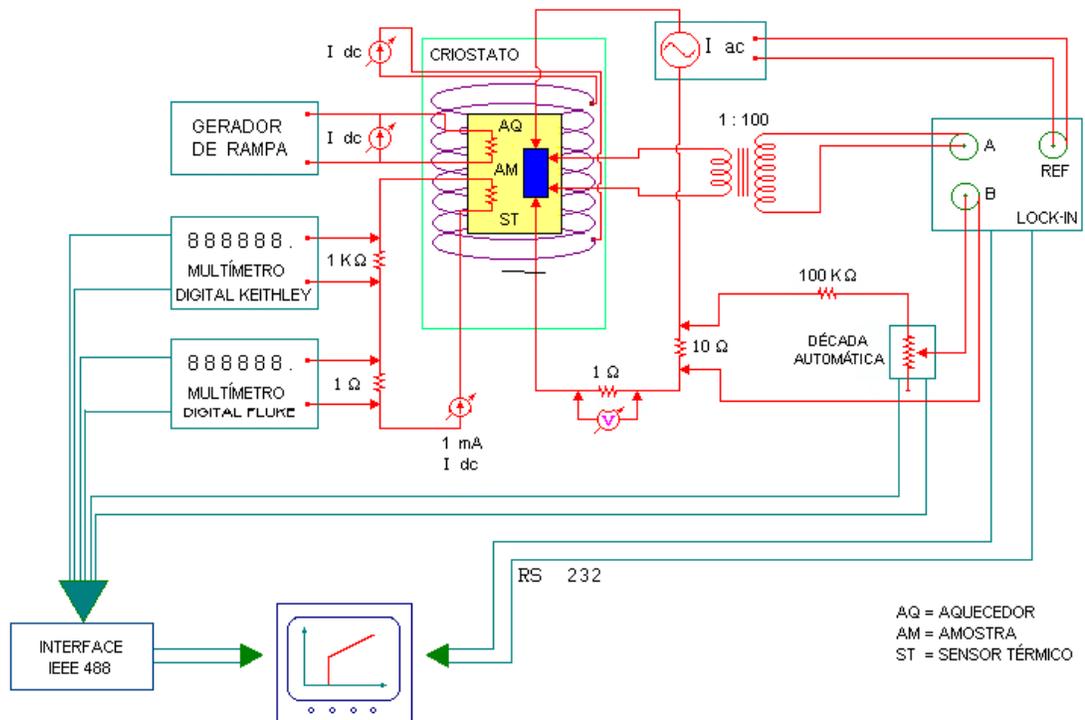
#### 5.4.2 - O RESISTÔMETRO - AC

O aparato experimental usado nas medidas de magnetoresistividade é constituído basicamente por um resistômetro-AC, semi-automatizado, podendo operar entre 60 e 300 K e utilizando a técnica de tecção de nulo onde o "lock in" atua como detector. Um diagrama esquemático dos aparelhos envolvidos é mostrado na *fig. 5.14*.

As medidas são realizadas utilizando-se o sinal AC de tensão, produzido na amostra pela passagem da corrente elétrica, fornecida por uma fonte AC de 27 Hz. Este sinal é amplificado em até 100 vezes com a utilização de um transformador de baixo ruído e enviado ao canal A do "lock in" modelo SR380 da "Stanford Research Systems". Simultaneamente o canal B realiza a leitura de um sinal de compensação devido a tensão gerada por uma resistência ajustável mediante uma década resistiva automática. Este sinal de compensação ajustado em fase, atua como referência pré-estabelecido. As medidas são realizadas com o "lock-in" operado no modo A-B (técnica de zero). Quando o sinal A se iguala ao sinal B, a resistência na amostra é proporcional ao valor ajustado na década e o "lock in" detecta um sinal nulo. Quando a temperatura varia, o sinal produzido pela amostra varia também. No exato momento em que o sinal da amostra e o de referência se igualam, o computador registra o "valor de década", que é proporcional à resistividade da amostra. A temperatura também é registrada simultaneamente pelo computador, que armazena os valores do sensor de temperatura. Um programa computacional utilizando a linguagem Qbasic faz a leitura dos dados no momento em que o valor do sinal A-B é zero, armazenando os valores da década e da temperatura naquele instante e

## Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais

alterando o valor da década para a espera de um próximo sinal nulo. A precisão do sinal, nas medidas efetuadas com esta técnica, está entre  $1:10^5$  e  $1:10^6$ .



**Fig. 5.14** - Diagrama esquemático para montagem experimental utilizada nas medidas de resistividade.

A temperatura é medida através de um sensor de platina (para temperaturas acima de 70 K), ou de carbon glass (em temperaturas inferiores a 70 K). O controle da variação de temperatura é feito através de um gerador de rampa manual que permite variar a potência aplicada num aquecedor em contato com o porta-amostra. As medidas são realizadas com taxas de variação de temperatura de até 1 K/h, com precisão de leitura entre 1-2 mK. Essa facilidade nos permite obter uma curva de resistividade elétrica com pontos em intervalos de temperatura de até 0.01 K.

### **5.4.2.1 - Sistema Criogênico para Campos Magnéticos Baixos**

As medidas realizadas em campo magnético nulo e em campos magnéticos de até 1 kOe fora feitas no criostato ilustrado pela *fig. 5.15*.

Este criostato é formado por um “dewar” externo de material inox utilizado como reservatório de nitrogênio líquido e um “dewar” interno de vidro para uso de hélio líquido. Nas medidas desse trabalho, utilizou-se apenas nitrogênio líquido no “dewar” de vidro. Dentro do “dewar” de vidro, situa-se um anticriostato de parede dupla de inox à vácuo, no interior do qual localiza-se a cana da amostra juntamente com o aquecedor e sensores de temperatura. Durante o processo de medidas,

**Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais**

manteve-se o anticriostato de inox em vácuo constante, com o objetivo de manter o sistema isolado termicamente do ambiente.

O solenóide, responsável pela geração de campo é colocado sobre a extremidade inferior do anticriostato. Seu enrolamento é formado por um total de 14314 espiras de fio de cobre número 28, o que permite gerar campos magnéticos até 1kG.

O porta amostras é constituído de um suporte de cobre, no qual estão acoplados o sensor térmico, o qual consiste em uma resistência de platina Rosemount de 100  $\Omega$  em 273 K, calibrada de 70 K até temperatura ambiente com precisão relativa de 1mK e um aquecedor permitindo controlar a temperatura da amostra. O porta amostras é envolvido por uma câmara de cobre no interior da qual é feito vácuo e que garante a homogeneidade da temperatura durante as medidas. O porta amostras é centralizado em relação ao solenóide na região de maior homogeneidade de campo magnético. O aquecimento é feito através do aquecedor, uma resistência de Ni-Cr de 28  $\Omega$  (100  $\Omega$ /m), instalada na parte posterior do porta amostras. Um gerador de rampa, conectado ao aquecedor, controla a taxa de variação de temperatura, aumentando ou diminuindo a potência do sistema.



**Fig. 5.15** - Sistema criogênico com bobina de cobre utilizado em medidas de magnetoresistividade.

**Capítulo 5 - Preparação e Caracterização Estrutural de Amostras, Aparato e Técnicas Experimentais**

**5.4.3 - A Sistemática de Medida**

Inicialmente, com o objetivo de obter o comportamento  $\rho(T)$  no estado normal, foi realizada uma medida, para cada amostra em campo aplicado nulo, desde a temperatura ambiente até  $T_{c0}$ , temperatura na qual a resistividade se anula.

No caso das amostras policristalinas, o campo magnético foi aplicado segundo a configuração  $H // J$ , utilizando-se os procedimentos de medida ZFC e FC, detalhados na seção 5.3.3, com o objetivo de estudar irreversibilidades magnéticas com medidas de magnetoresistividade juntamente com as flutuações térmicas.

Para os monocristais, foi empregado o procedimento de medida FC nas seguintes configurações,  $H // ab // J$  e  $H // c \perp J$ . Adotando a sistemática FC, obtém-se um estado de quase equilíbrio para a amostra em temperaturas inferiores a  $T_c$ .

A precisão das medidas de resistividade depende da estabilidade da temperatura. Portanto, nas proximidades da transição supercondutora, a taxa de variação da temperatura adotada varia entre 2 e 4 K/h, o que garante o armazenamento de uma alta densidade de pontos de medida, um a cada 0.02 K, em média.

Como foi dito anteriormente, os dados armazenados no computador são registrados em unidade de década. Essas unidades arbitrárias são convertidas em unidades de resistividade, relacionando os valores de década com o valor absoluto da resistividade a temperatura ambiente. Os valores para  $\rho_{AMB}$  estão relacionados na tab. 5.5.

## **Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

Neste capítulo, apresentaremos as linhas de irreversibilidade magnética (LIM) obtidas em amostras policristalinas e monocristalinas do supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  dopado com átomos de Sr, Mg e Zn. A discussão à respeito do comportamento apresentado pelas LIM será realizado de acordo com os modelos teóricos apresentados no cap. 3.

### **6.1 – Identificação das Amostras**

Conforme descrito no capítulo 5, preparamos amostras monocristalinas e policristalinas para a realização desse trabalho. No estudo da irreversibilidade magnética foram utilizadas onze amostras, sendo nove monocristalinas e duas policristalinas. Estas, na sua essência, são amostras de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  onde o Ba foi substituído parcialmente por átomos de Sr nas concentrações de 5, 12.5, 18.7 e 25 % ou o Cu foi parcialmente substituído por 1 % de Zn ou Mg. As amostras monocristalinas selecionadas para as medições apresentam-se em forma de finas plaquetas com formato aproximadamente retangular e as policristalinas no formato de paralelepípedos. A tab. 6.1 apresenta as dimensões e a identificação para cada uma das amostras utilizadas nos experimentos de irrevesibilidade magnética.

<b>AMOSTRAS</b>	<b>Dimensões ( mm )</b>		
	<b>Comprimento</b>	<b>Largura</b>	<b>Espessura</b>
<b><i>Policristalinas</i></b>			
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - PY	1.80	0.60	0.52
$\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - PSr	2.20	0.75	0.55
<b><i>Monocristalinas</i></b>			
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCYI	1.50	0.90	0.10
$\text{YBa}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCSr01	1.60	0.77	0.05
$\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCSr025A	1.56	0.80	0.09
$\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCSr025B	1.15	1.30	0.12
$\text{YBa}_{1.63}\text{Sr}_{0.37}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCSr037	1.31	0.87	0.15
$\text{YBa}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ - MCSr05	0.75	0.60	0.05
$\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{Zn}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$ - MCZnA	1.20	0.90	0.09
$\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{Zn}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$ - MCZnB	0.97	0.62	0.08
$\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{Mg}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$ - MCMg	1.20	0.70	0.08

**Tab. 6.1 -** Relação das amostras e suas respectivas dimensões, as quais foram utilizadas em Experimentos de irreversibilidade magnética.

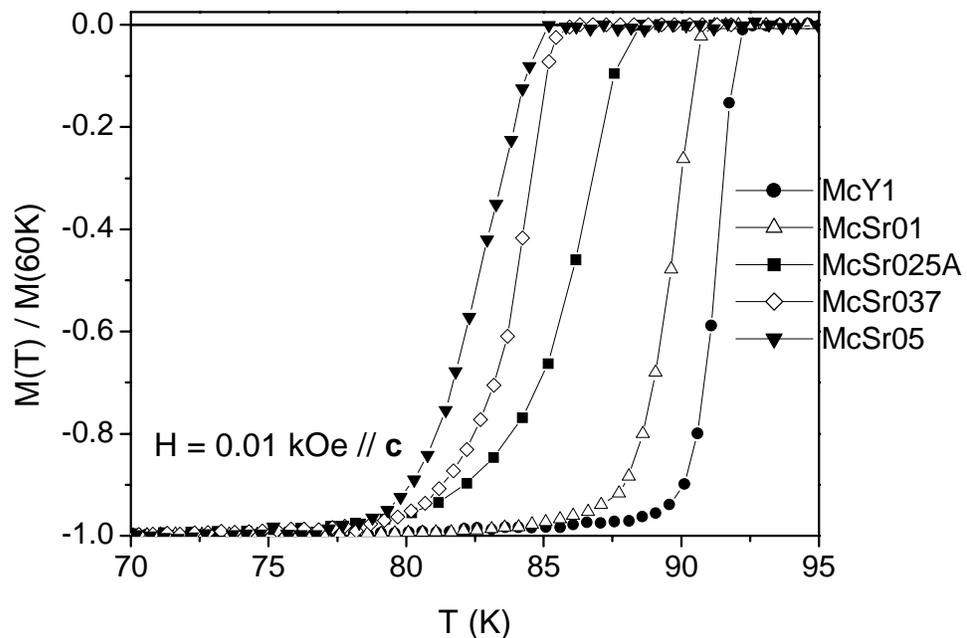
## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

O comportamento da LIM das amostras policristalinas PSr e PY juntamente com os monocristais MCZnA e McZnB foram também pesquisados para diferentes concentrações de oxigênio, conforme discutido no capítulo 5.

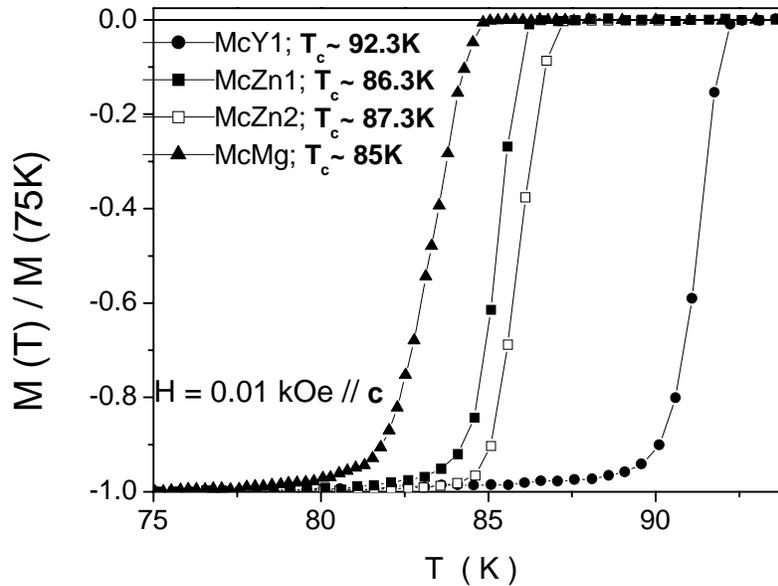
### 6.2 - Caracterização de $T_c$

As amostras monocristalinas e policristalinas tiveram a sua transição supercondutora caracterizada por medidas de magnetização DC e resistividade AC. Nesta seção, mostraremos a transição supercondutora das amostras monocristalinas a partir de medidas de magnetização DC em função da temperatura. Como temperatura crítica de transição,  $T_c$ , adotamos o ponto de desvio do comportamento linear da curva de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  para  $T$  crescente e em um campo magnético aplicado de 0.01 kOe.

A *fig. 6.1*<sup>[128]</sup> mostra curvas de  $M_{ZFC}(T)$  normalizadas para os monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . O valor e o comportamento apresentado por  $T_c$  em função da concentração de Sr é ressaltado no “inset” desta figura. O valor de  $T_c$  decresce linearmente com a concentração de Sr (até 25 %), resultado que está de acordo com a literatura.<sup>[19-25,29]</sup> A *fig. 6.2*<sup>[132]</sup> apresenta resultados análogos para os monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{M}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  ( $M = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). Os valores encontrados para  $T_c$  também estão de acordo com a literatura.<sup>[37-40]</sup>



**Fig. 6.1** - Curvas de  $M_{ZFC}(T)$  para as amostras de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ). o “inset” mostra o valor de  $T_c$  em função da concentração de Sr.<sup>[128]</sup>



**Fig. 6.2** - Curvas de  $M_{ZFC}(T)$  para as amostras de  $YBa_2Cu_{2.97}M_{0.03}O_{7-\delta}$  ( $M = Zn$  ou  $Mg$ ) o valor de  $T_c$  para cada amostra está indicado na figura.<sup>[132]</sup>

### 6.3 - A Obtenção de $T_{irr}(H)$ e da LIM

O limite de irreversibilidade magnética  $T_{irr}(H)$  foi obtido a partir da análise das curvas de  $\Delta M(T) = M_{FC}(T) - M_{ZFC}(T)$ . O ponto no qual os dados de  $\Delta M(T)$  abandonam a reta de base zero definida pelos dados na região reversível é tomado como sendo a temperatura de irreversibilidade magnética,  $T_{irr}(H)$  ou limite de irreversibilidade. Como um exemplo de aplicação desse método, a *fig. 6.3* apresenta várias curvas de  $\Delta M(T)$  e  $M_{FC}(T)$  e  $M_{ZFC}(T)$  (veja os “insets” desta mesma figura) para diversos campos magnéticos aplicados na amostra de  $PSr-\delta \approx 0$ . Os limites de irreversibilidade,  $T_{irr}(H)$  são indicados por uma seta em cada quadro das figuras.

A adoção do método  $M_{FC}(T) - M_{ZFC}(T)$  para a determinação de  $T_{irr}(H)$  tem se mostrado como um dos mais confiáveis. Extrair o limite de irreversibilidade  $T_{irr}$  diretamente da superposição das curvas de  $M_{FC}(T)$  e  $M_{ZFC}(T)$  introduziria muitas incertezas em virtude destas se aproximarem assintoticamente juntamente com a presença inevitável de gradiente de temperatura.

Normalmente, o valor do limite de irreversibilidade para cada um dos campos magnéticos aplicados foi obtido, dentro do erro experimental, em muitos casos, a partir da média de no mínimo duas seqüências de medidas nas condições FC e ZFC.

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

Plotando o conjunto de pontos experimentais de  $T_{\text{irr}}(H)$  em um diagrama de fase  $H$ - $T$ , obtemos a linha de irreversibilidade magnética, LIM.

### **6.4 – Resultados: Curvas de $M(T)$ , $T_{\text{irr}}(H)$ e LIM**

Nesta seção serão apresentados os resultados experimentais, obtidos a partir de medidas de magnetização DC realizadas em nossas amostras, os quais, serão analisados e discutidos detalhadamente nas seções 6.5 e 6.6 deste capítulo.

Os resultados serão apresentados individualmente amostra por amostra. A sequência de exposição é constituída pela apresentação, em conjunto, de algumas curvas de  $\Delta M(T)$ ,  $M_{\text{ZFC}}(T)$  e  $M_{\text{FC}}(T)$  obtidas para diferentes valores de  $H$ , seguida por tabelas listando os valores obtidos para os  $T_{\text{irr}}(H)$  e finalizando com o diagrama  $H$ - $T$  ilustrando o comportamento apresentado pela LIM. Primeiramente, serão expostos os resultados referentes as amostras policristalinas, seção 6.4.1 e em seguida os das amostras monocristalinas, seção 6.4.2.

Na seção 6.4.3 serão reunidos os resultados apresentados em função da concentração, respectivamente para a substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por Zn ou Mg no comportamento da LIM do supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

#### **6.4.1 – Amostras Policristalinas**

Conforme explicitado pela tabela 6.1, as amostras policristalinas PY e PSr apresentam a forma geométrica de paralelepípedos longos pouco espessos onde o campo magnético foi aplicado ao longo da maior dimensão.

Na amostra PSr o comportamento da LIM nessas amostras foi estudado em função da concentração de Sr e para ambas as amostras policristalinas as LIM foram estudadas para diferentes estequiometrias de oxigênio. Sabe-se que a retirada de oxigênio resulta em aumento da granularidade supercondutora, especialmente em amostras policristalinas.<sup>[79]</sup> As características estruturais das amostras e o processo de desoxigenação empregado bem como, os procedimentos experimentais, adotados na obtenção das curvas  $M_{\text{FC}}(T)$  e  $M_{\text{ZFC}}(T)$  foram discutidos de maneira minuciosa no capítulo anterior.

A LIM nessas amostras é obtida a partir do conjunto de 22 a 28 pontos de  $T_{\text{irr}}(H)$ , obtidos para valores de campo magnético aplicado entre 0.002 e 50 kOe.

De acordo com a sequência de apresentação dos resultados exposta na seção 6.4, as *figs. 6.3, 6.4, 6.6 e 6.7* ilustram um conjunto de curvas de  $\Delta M(T)$ , obtidas em diferentes valores de campo magnético aplicado. Os "insets" destas figuras apresentam as respectivas curvas de magnetização  $M_{\text{FC}}(T)$  e  $M_{\text{ZFC}}(T)$  a partir das quais são calculadas as curvas de  $\Delta M(T)$ . Nestas figuras, o limite de irreversibilidade,  $T_{\text{irr}}(H)$  apresenta-se indicado por uma seta. Os valores experimentais obtidos para  $T_{\text{irr}}(H)$ , com as respectivas barras de erro, são listados nas tab. 6.2 à 6.5 respectivamente. As *fig. 6.5 e 6.8* são uma representação gráfica dos dados de  $T_{\text{irr}}(H)$ , que ilustram o comportamento do limite de irreversibilidade em função de  $H$  nas

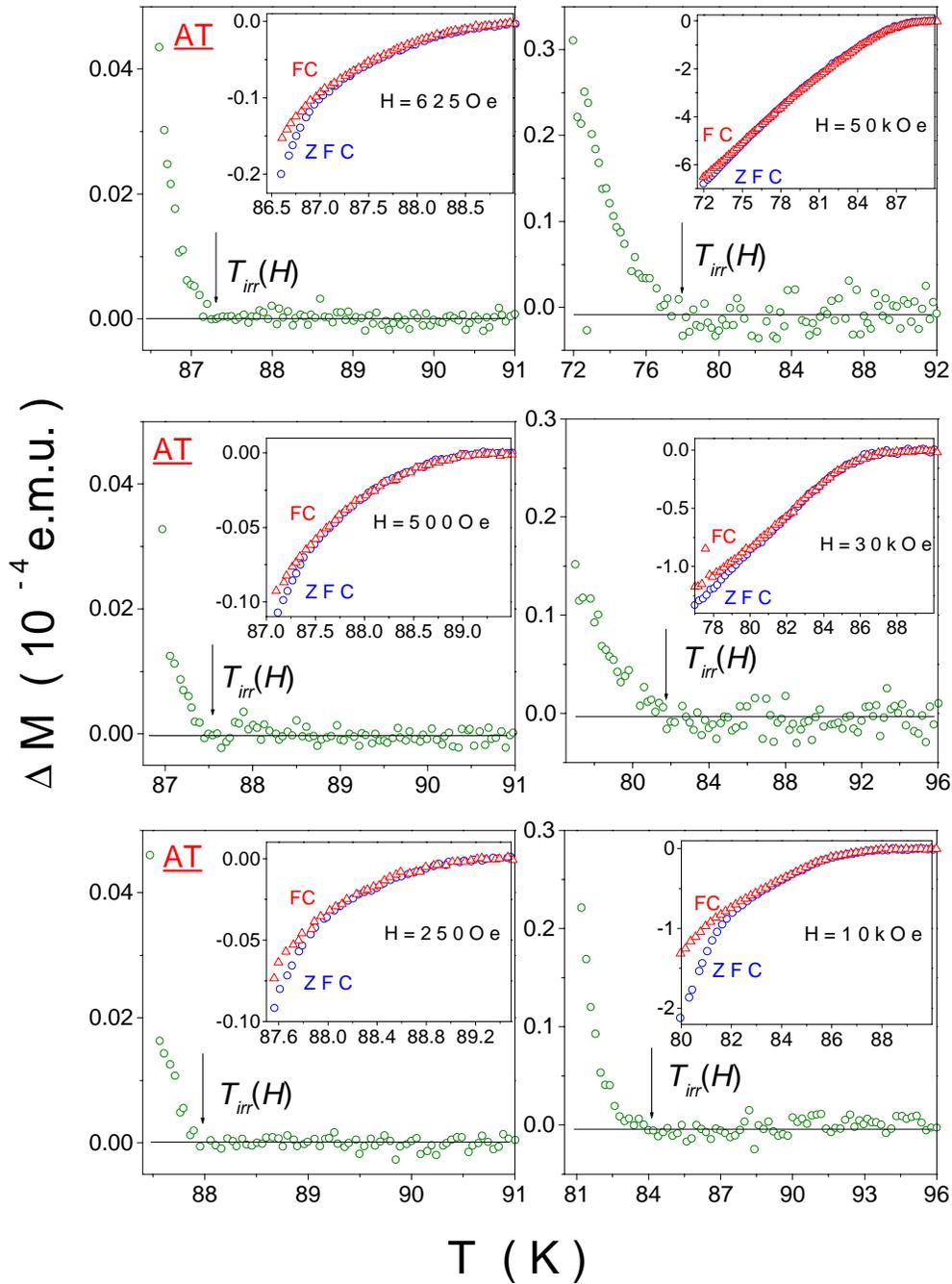
## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

amostras PSr e PY respectivamente. O "inset" destas figuras coloca em evidência os detalhes apresentados por  $T_{\text{irr}}(H)$  na região de baixos campos magnéticos.

Nas *figs. 6.5 e 6.8*<sup>[130, 131, 133]</sup> podemos verificar claramente que a disposição dos pontos de  $T_{\text{irr}}(H)$  obedece a três funcionalidades distintas ao longo do diagrama  $H-T$  as quais denominamos de *fc*, *GT* e *AT* em virtude das respectivas leis de potência por elas seguidas. A região *fc* recebe esta denominação devido ao fato de obedecer a uma lei de potência prevista pelo modelo de "flux creep" gigante, discutido na seção 3.3.2.1. Por outro lado, analisando a região de baixos campos magnéticos, destacada no "inset" das *figs. 6.5 e 6.8*, constatamos que o comportamento dos dados de  $T_{\text{irr}}(H)$  é descrito segundo uma lei de potências do tipo de Almeida-Thouless (*AT*) mudando em campos intermediários para um comportamento tipo Gabay-Toulouse (*GT*). Todas estas leis de potência 3.2.2. Na seção 6.5 será apresentada uma análise detalhada para estes resultados ao passo que na seção 6.6 discutiremos uma possível interpretação para o comportamento da LIM a partir destes resultados.

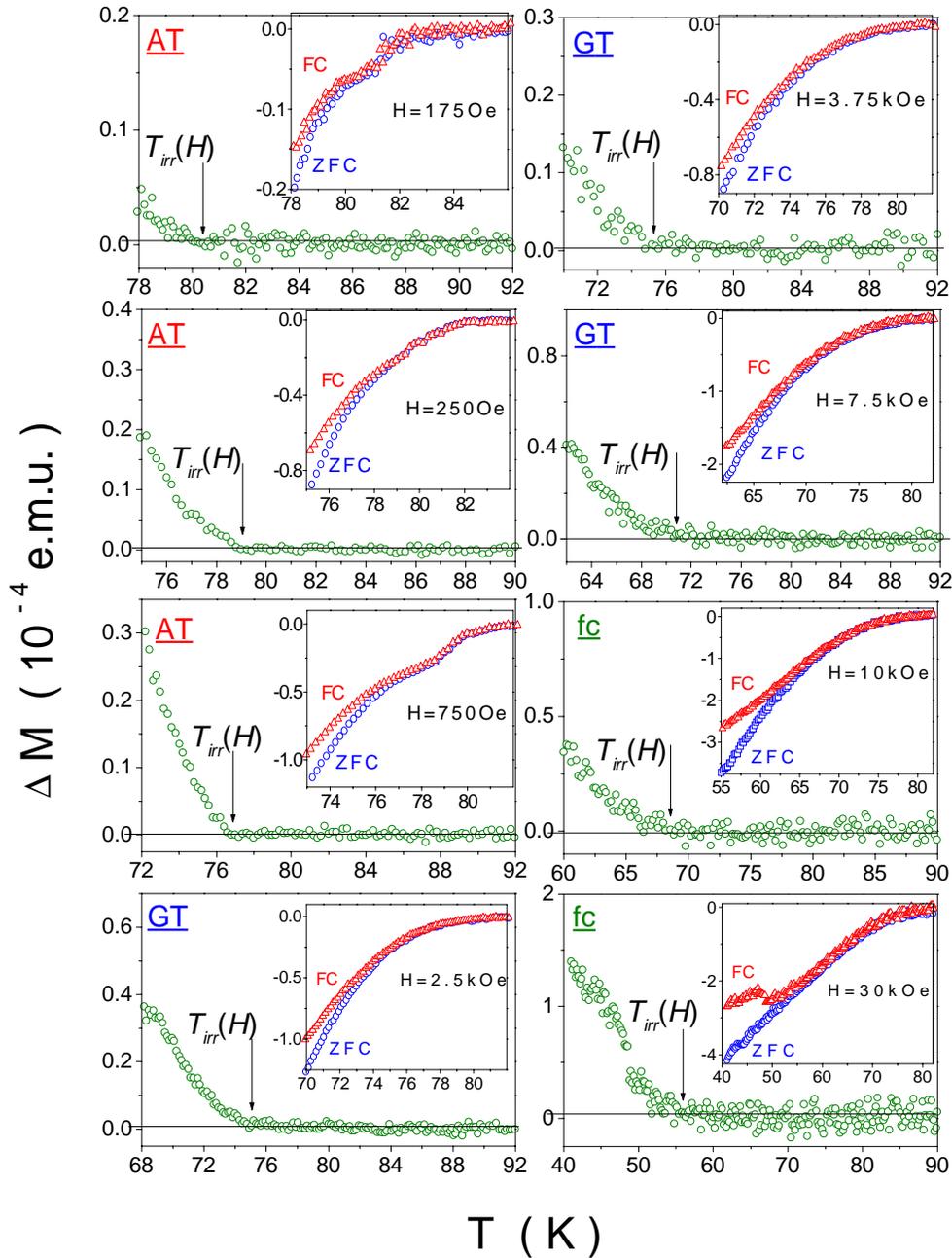
Antes de finalizarmos esta seção, gostaríamos de chamar a atenção ao fato de que, os símbolos *fc*, *GT* e *AT* situados no lado esquerdo superior das *figs. 6.3, 6.4, 6.6 e 6.7* indicam que aquele valor determinado para  $T_{\text{irr}}(H)$ , em particular, integra um ou outro determinado conjunto de pontos de  $T_{\text{irr}}(H)$  descritos pelos ajustes *fc*, *GT* e *AT*. Confira também as *figs. 6.5 e 6.8* e as *tab. 6.2-6.5* as quais mostram a localização e o valor dos pontos de  $T_{\text{irr}}(H)$  na LIM dessas amostras.

**Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  - PSr -  $\delta = 0$**



**Fig. 6.3** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra PSr onde  $\delta = 0$ .

***Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{6.7}$  - PSr -  $\delta = 0.3$***



**Fig. 6.4 -** Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra PSr onde  $\delta = 0.3$ .

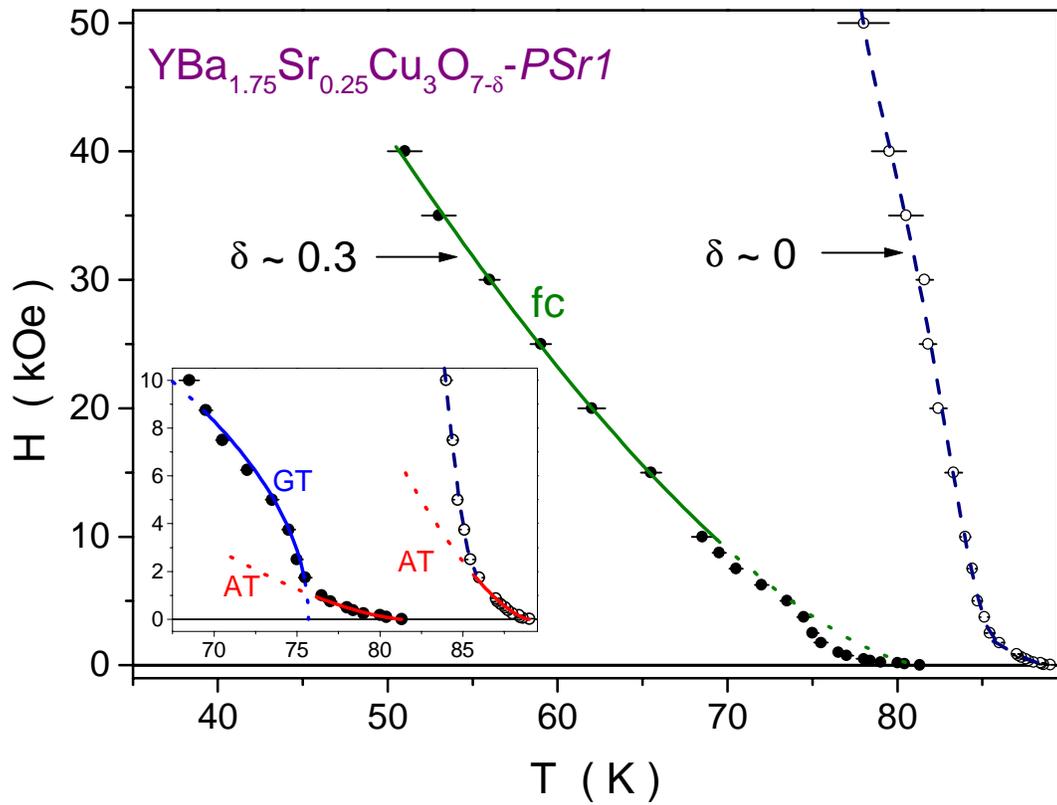
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PSr; δ = 0</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.025	89.00 ± 0.04
2	0.05	88.60 ± 0.06
3	0.1	88.46 ± 0.10
4	0.175	88.40 ± 0.10
5	0.25	88.00 ± 0.10
6	0.375	87.72 ± 0.10
7	0.5	87.55 ± 0.10
8	0.625	87.30 ± 0.10
9	0.75	87.10 ± 0.10
10	0.875	87.00 ± 0.10
11	1.75	86.00 ± 0.15
12	2.5	85.45 ± 0.15
13	3.75	85.10 ± 0.20
14	5	84.70 ± 0.20
15	7.5	84.40 ± 0.20
16	10	84.00 ± 0.30
17	15	83.30 ± 0.50
18	20	82.40 ± 0.50
19	25	81.80 ± 0.50
20	30	81.60 ± 0.50
21	35	80.50 ± 1.00
22	40	79.50 ± 1.50
23	50	78.00 ± 1.50

**Tab. 6.2** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra PSr; δ = 0.

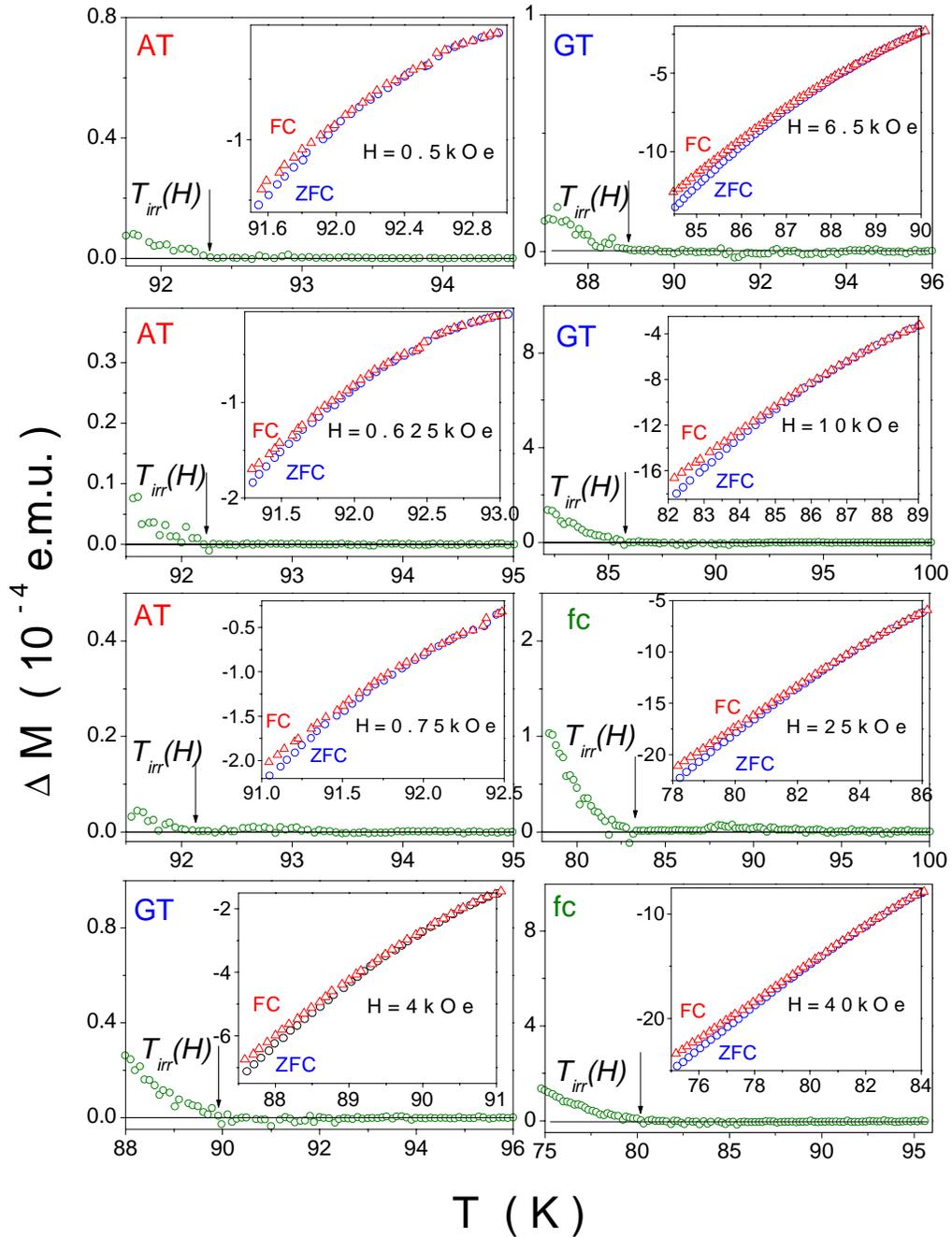
<b>YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PSr; δ = 0.3</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	81.30 ± 0.20
2	0.1	80.40 ± 0.20
3	0.175	80.00 ± 0.20
4	0.25	79.00 ± 0.20
5	0.375	78.40 ± 0.40
6	0.5	78.00 ± 0.40
7	0.75	77.00 ± 0.40
8	1	76.50 ± 0.20
9	1.75	75.50 ± 0.40
10	2.5	75.00 ± 0.30
11	3.75	74.50 ± 0.40
12	5	73.50 ± 0.40
13	6.25	72.00 ± 0.40
14	7.5	70.50 ± 0.40
15	8.75	69.50 ± 0.40
16	10	68.50 ± 0.60
17	15	65.50 ± 0.60
18	20	62.00 ± 0.80
19	25	59.00 ± 0.60
20	30	56.00 ± 0.60
21	35	53.00 ± 1.00
22	40	51.00 ± 1.00

**Tab. 6.3** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra PSr; δ = 0.3.



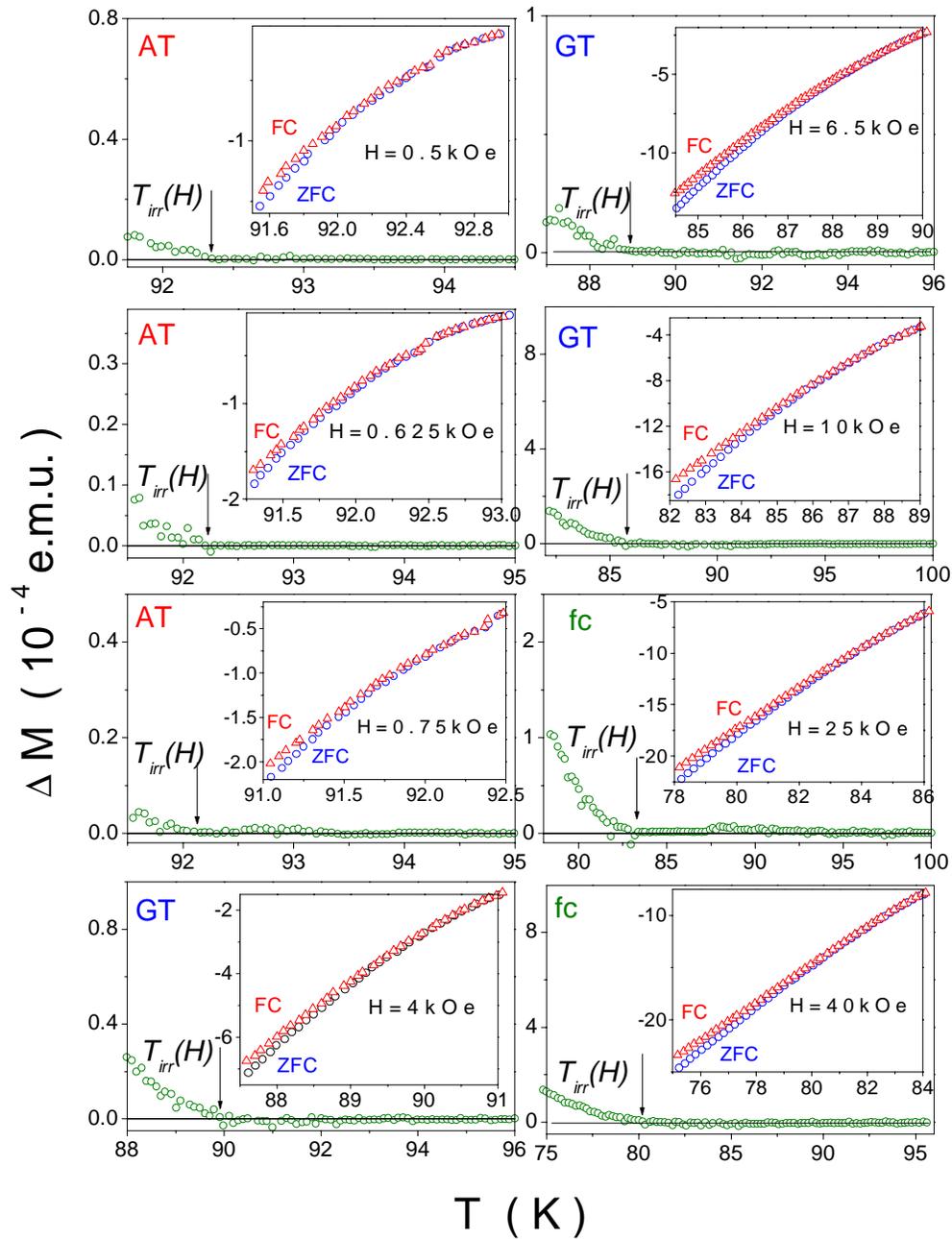
**Fig. 6.5** - LIM para a amostra PSr, em dois diferentes estados de oxigenação. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes segund leis de potência "flux creep" (fc), de Almeida-thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[130,132]</sup>

**Amostra -  $YBa_2Cu_3O_{6.85}$  - PY -  $\delta = 0.15$**



**Fig. 6.6** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra PY- $\delta = 0.15$ .

**Amostra -  $YBa_2Cu_3O_{6.57}$  - PY -  $\delta = 0.43$**



**Fig. 6.7** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra PY- $\delta = 0.43$ .

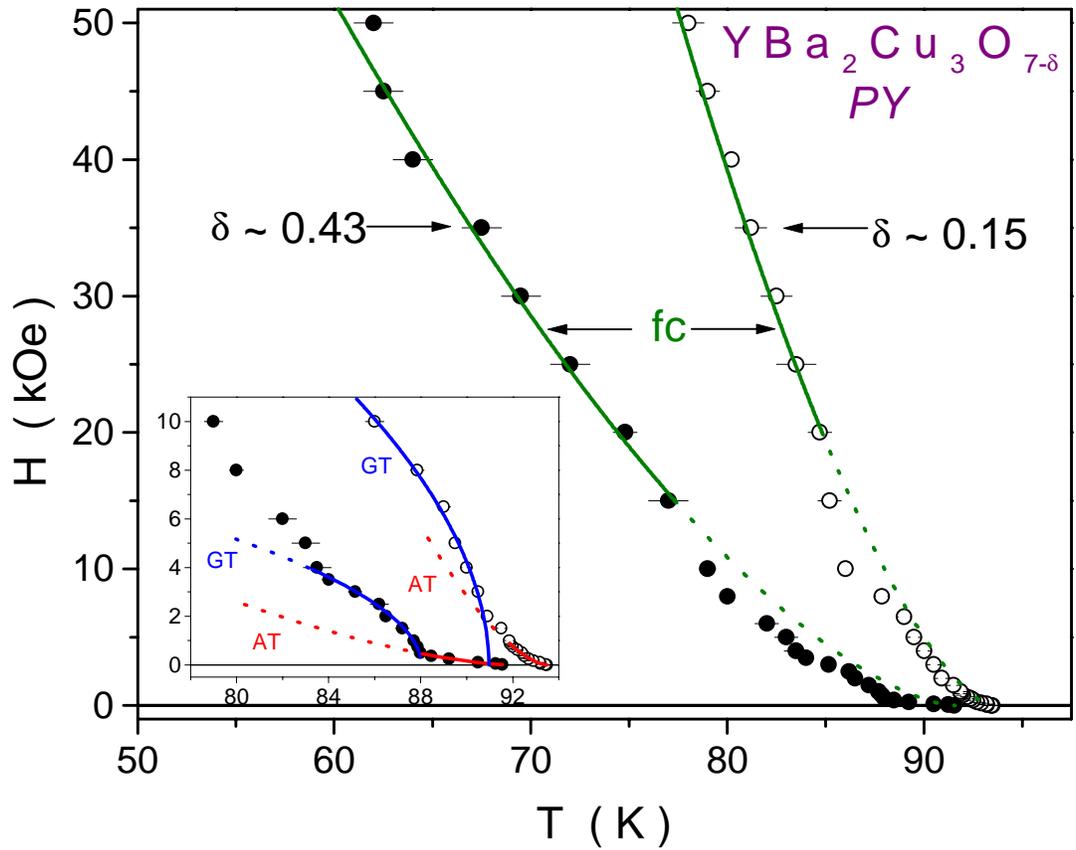
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PY; <math>\delta = 0.15</math></b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	93.49 ± 0.06
2	0.01	93.43 ± 0.06
3	0.05	93.21 ± 0.09
4	0.1	93.18 ± 0.09
5	0.175	92.90 ± 0.06
6	0.25	92.70 ± 0.10
7	0.375	92.50 ± 0.10
8	0.5	92.40 ± 0.06
9	0.625	92.20 ± 0.10
10	0.75	92.00 ± 0.10
11	0.875	91.90 ± 0.10
12	1	91.85 ± 0.15
13	1.5	91.50 ± 0.15
14	2	90.90 ± 0.20
15	3	90.50 ± 0.20
16	4	90.00 ± 0.20
17	5	89.50 ± 0.20
18	6.5	89.00 ± 0.30
19	8	87.85 ± 0.30
20	10	86.00 ± 0.40
21	15	85.20 ± 0.60
22	20	84.70 ± 0.60
23	25	83.50 ± 1.00
24	30	82.50 ± 0.80
25	35	81.20 ± 0.80
26	40	80.20 ± 0.40
27	45	79.00 ± 0.60
28	50	78.00 ± 0.80

**Tab. 6.4** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra PY;  $\delta = 0.15$ .

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PY; <math>\delta = 0.43</math></b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	91.55 ± 0.10
2	0.05	91.25 ± 0.25
3	0.1	90.50 ± 0.15
4	0.25	89.24 ± 0.16
5	0.375	88.46 ± 0.16
6	0.5	88.00 ± 0.16
7	0.75	87.86 ± 0.16
8	1	87.70 ± 0.24
9	1.5	87.20 ± 0.30
10	2	86.50 ± 0.20
11	2.5	86.20 ± 0.40
12	3	85.15 ± 0.30
13	3.5	84.00 ± 0.30
14	4	83.50 ± 0.60
15	5	83.00 ± 0.60
16	6	82.00 ± 0.60
17	8	80.00 ± 0.30
18	10	79.00 ± 0.40
19	15	77.00 ± 1.00
20	20	74.80 ± 0.60
21	25	72.00 ± 1.00
22	30	69.50 ± 1.00
23	35	67.50 ± 1.00
24	40	64.00 ± 1.00
25	45	62.50 ± 1.00
26	50	62.00 ± 1.00

**Tab. 6.5** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra PY;  $\delta = 0.43$ .



**Fig. 6.8** – LIM para a amostra PY, em dois diferentes estados de oxigenação. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes segund leis de potência "flux creep" (fc), de Almeida-thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).

### **6.4.2 – Amostras Monocristalinas**

Para as nossas medidas de irreversibilidade magnética em monocristais foram selecionadas nove amostras denominadas de MCY1, MCMg, MCZnA, MCZnB, MCSr01, MCSr025A, MCSr025B, MCSr037 e MCSr05 apresentando a forma de plaquetas finas onde o campo magnético foi aplicado ou ao longo do eixo *c* ou do plano *ab*.

O comportamento da LIM nestas amostras foi pesquisado principalmente em função do efeito causado pelas substituições químicas. Particularmente, nos monocristais dopados com Zn o estudo também se deu em função do conteúdo de oxigênio. Para isso, foram utilizadas duas amostras crescidas no mesmo "batch" e oxigenadas a 450 °C por 7 dias (MCZnA) e 10 dias (MCZnB) respectivamente. As características estruturais dos monocristais e o processo de oxigenação utilizado bem como, os procedimentos experimentais, adotados na obtenção das curvas  $M_{FC}(T)$  e  $M_{ZFC}(T)$  foram descritos no capítulo 5.

A LIM nessas amostras é determinada a partir de um conjunto de 25 à 30 pontos experimentais correspondentes a valores de campo magnético aplicado entre 0.003 e 50 kOe.

De acordo com os protocolos de apresentação, definidos na seção 6.4, os resultados experimentais das *fig. 6.9, 6.11, 6.12, 6.14, 6.15, 6.17, 6.18, 6.20, 6.21, 6.22, 6.24, 6.25, 6.27, 6.28, 6.30, 6.31, 6.32, 6.34 e 6.35* ilustram o comportamento das curvas de  $\Delta M(T)$  obtidas para diferentes valores de campo magnético aplicado ao longo do eixo *c* e do plano *ab* em nossas várias amostras. O "inset" destas figuras apresenta as respectivas curvas de magnetização  $M_{FC}(T)$  e  $M_{ZFC}(T)$  a partir das quais foram obtidas as curvas de  $\Delta M(T)$ . Nestas figuras, o limite de irreversibilidade,  $T_{irr}(H)$  apresenta-se indicado por uma seta. Os valores experimentais obtidos para  $T_{irr}(H)$ , com as respectivas barras de erro, são listados nas tab. 6.6 à 6.21 para  $H // ab$  e  $H // c$  ao passo que às *fig. 6.10, 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36*<sup>128, 129, 131, 132, 133</sup> ilustram o comportamento apresentado pelos dados de  $T_{irr}(H)$  para  $H // ab$  e  $H // c$  nas amostras MCY1, MCMg, MCZnA, MCZnB, MCSr01, MCSr025A, MCSr025B, MCSr037 e MCSr05 respectivamente. O "inset" destas figuras, coloca em destaque os detalhes relativos à região de baixos campos magnéticos.

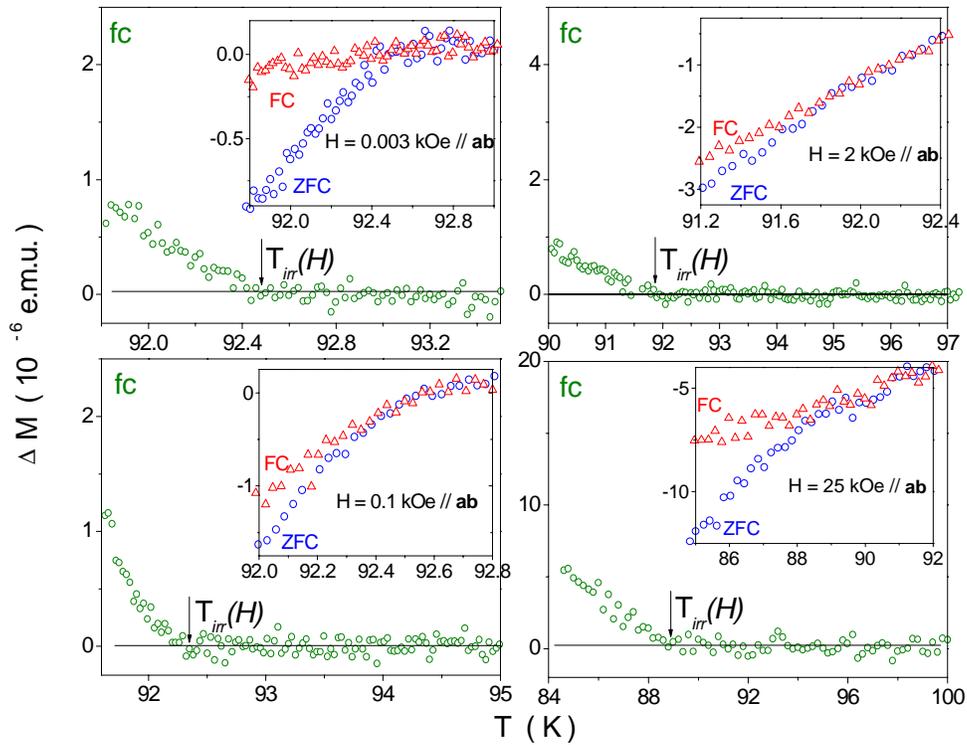
Claramente podemos ver que a disposição dos pontos de  $T_{irr}(H)$  obedece a três funcionalidades distintas entre si ao longo do diagrama *H-T* e que denominamos *fc*, *GT* e *AT* em função do tipo de lei de potência que as descreve. Na região de altos campos os dados de  $T_{irr}(H)$  obedecem à lei de potências prevista pelo modelo de "flux creep" gigante, discutido na seção 3.3.2.1. Por outro lado, na região de baixos campos magnéticos, destacada no "inset das *figs. 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36* constatamos que o comportamento dos dados de  $T_{irr}(H)$  é descrito por um ajuste denominado de *AT*, em campos magnéticos mais baixos, mudando para um ajuste denominado de *GT* numa região de campos intermediários. O ajuste *AT* está relacionado a uma lei de potências do tipo de Almeida-Thouless (*AT*) ao passo que o ajuste *GT* a uma lei de potências do tipo Gabay-Toulouse, ambas discutidas na seção 3.2.2.3. Maiores detalhes sobre estes resultados serão apresentados na seção 6.4, onde será realizada uma análise minuciosa do ponto de vista quantitativo e na seção

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

6.5 onde será apresentada a discussão dos resultados em termos dos modelos teóricos vigentes.

Antes de finalizarmos esta seção, gostaríamos de chamar a atenção ao fato de que, os símbolos  $fc$ ,  $GT$  e  $AT$  situados no lado esquerdo superior das *figs. 6.9, 6.11, 6.12, 6.14, 6.15, 6.17, 6.18, 6.20, 6.21, 6.22, 6.24, 6.25, 6.27, 6.28, 6.30, 6.31, 6.32, 6.34 e 6.35* nos indicam que aquele valor determinado para  $T_{irr}(H)$ , em particular, integra um determinado conjunto de pontos de  $T_{irr}(H)$  descritos pelos ajustes  $fc$ ,  $GT$  e  $AT$ , confira também as *figs. 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36* e as *tab. 6.6-6.23* as quais mostram a localização e o valor dos pontos de  $T_{irr}(H)$  na LIM dessas amostras.

**Amostra -  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  - MCY1**



**Fig. 6.9** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McY1$ ;  $H // ab$ .

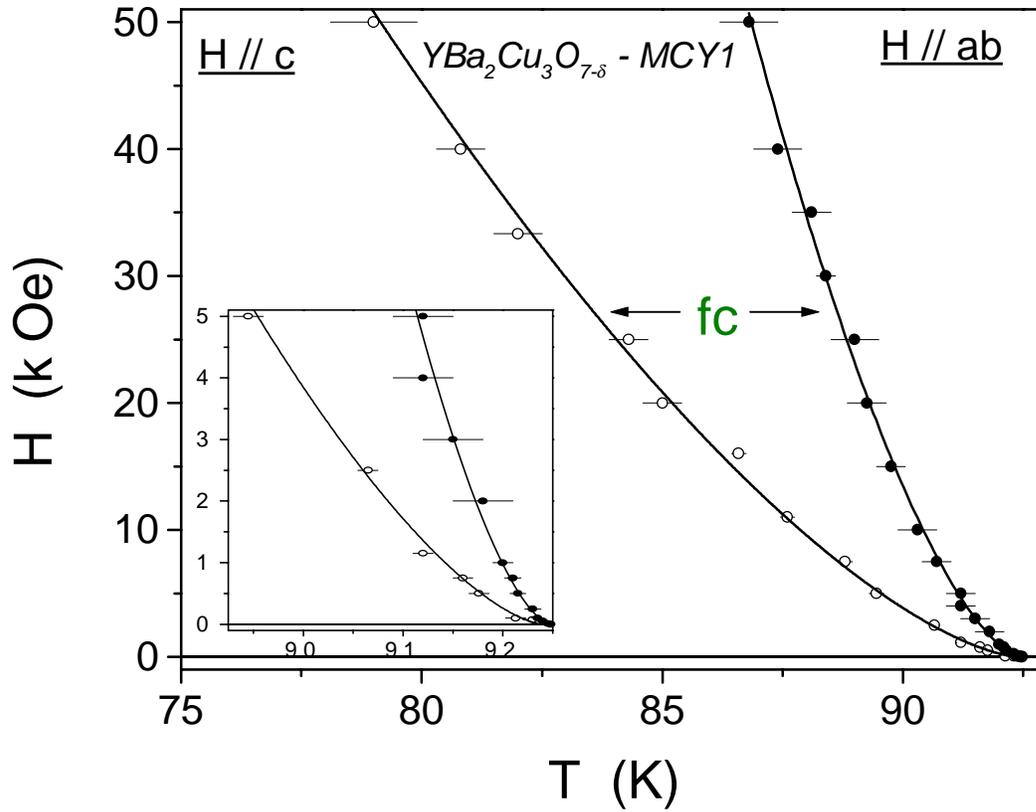
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McY1; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.075	92.30 ± 0.10
2	0.1	92.13 ± 0.10
3	0.5	91.76 ± 0.10
4	0.75	91.60 ± 0.10
5	1.15	91.20 ± 0.10
6	2.5	90.65 ± 0.10
7	5	89.45 ± 0.15
8	7.5	88.80 ± 0.15
9	11	87.60 ± 0.15
10	16	89.59 ± 0.15
11	20	85.00 ± 0.40
12	25	84.30 ± 0.40
13	33.333	82.00 ± 0.50
14	40	80.81 ± 0.50
15	50	79.00 ± 0.90

**Tab. 6.6** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra *McY1; H // c*.

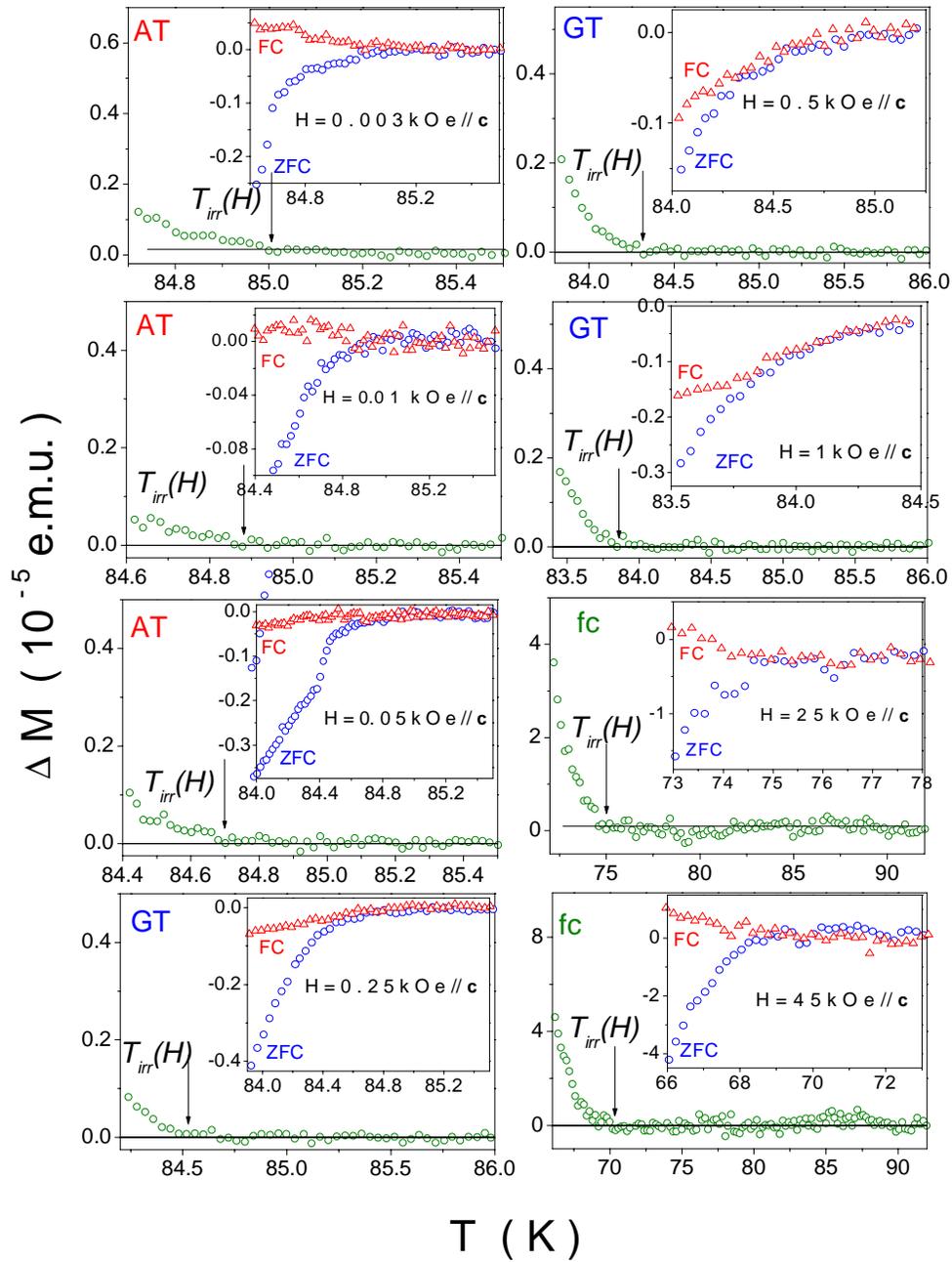
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McY1; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	92.48 ± 0.04
2	0.01	92.45 ± 0.06
3	0.05	92.40 ± 0.06
4	0.1	92.35 ± 0.06
5	0.25	92.30 ± 0.08
6	0.5	92.15 ± 0.08
7	0.75	92.10 ± 0.08
8	1	92.00 ± 0.10
9	2	91.80 ± 0.30
10	3	91.50 ± 0.30
11	4	91.20 ± 0.30
12	5	91.20 ± 0.30
13	7.5	90.70 ± 0.30
14	10	90.30 ± 0.40
15	15	89.75 ± 0.30
16	20	89.25 ± 0.40
17	25	89.00 ± 0.50
18	30	88.40 ± 0.20
19	35	88.10 ± 0.40
20	40	87.40 ± 0.50
21	50	86.80 ± 0.50

**Tab. 6.7** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra *McY1; H // ab*.



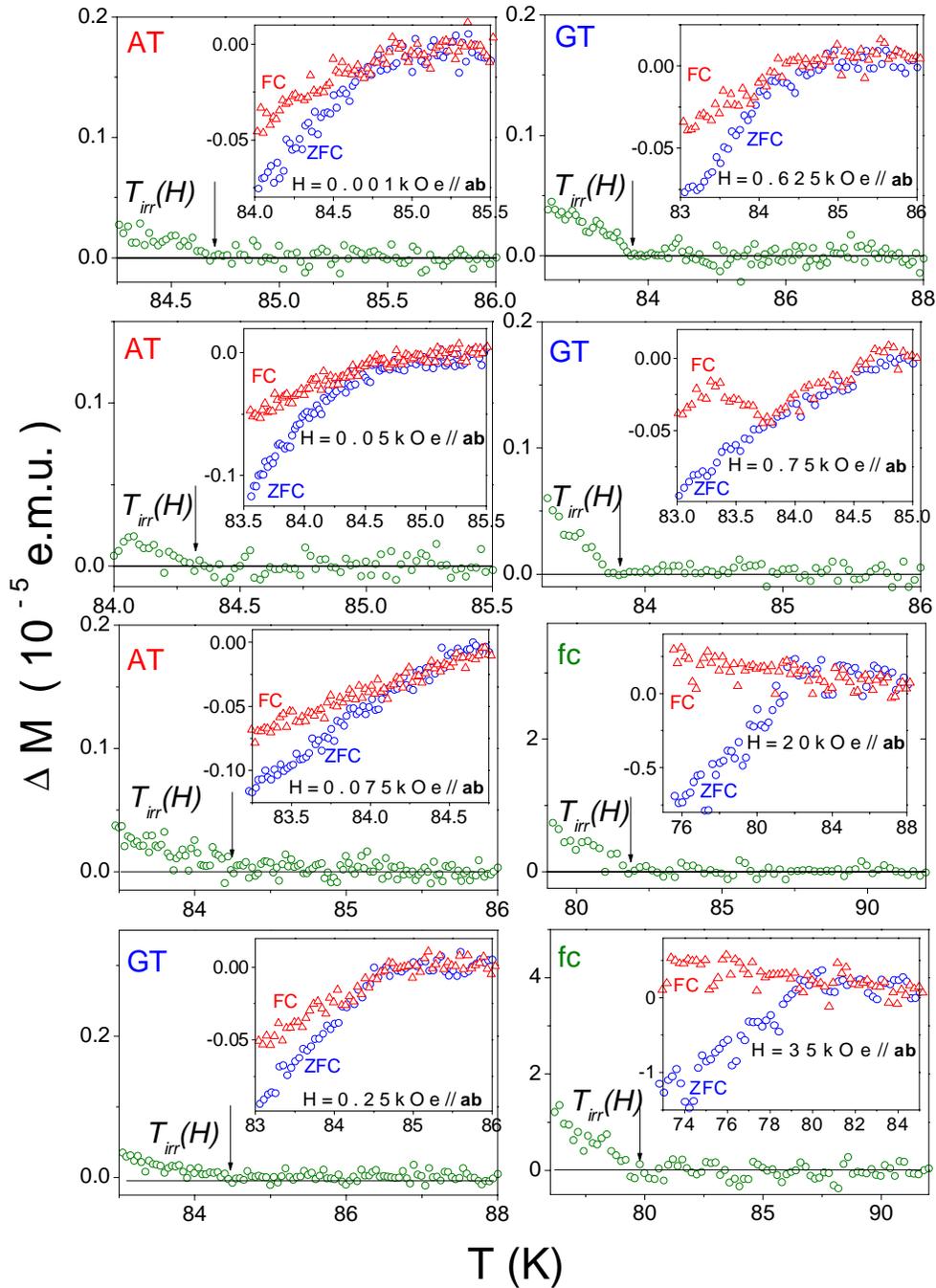
**Fig. 6.10** - LIM para a amostra MCY1. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo a lei de potência "flux creep" (fc) em toda a extensão do diagrama  $H$ - $T$ . <sup>[128,129,131]</sup>

**Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Mg_{0.03}O_{7-\delta}$  - McMg;  $H // c$**



**Fig. 6.11** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McMg;  $H // c$ .

**Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Mg_{0.03}O_{7-\delta}$  - McMg;  $H // ab$**



**Fig. 6.12** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McMg;  $H // ab$ .

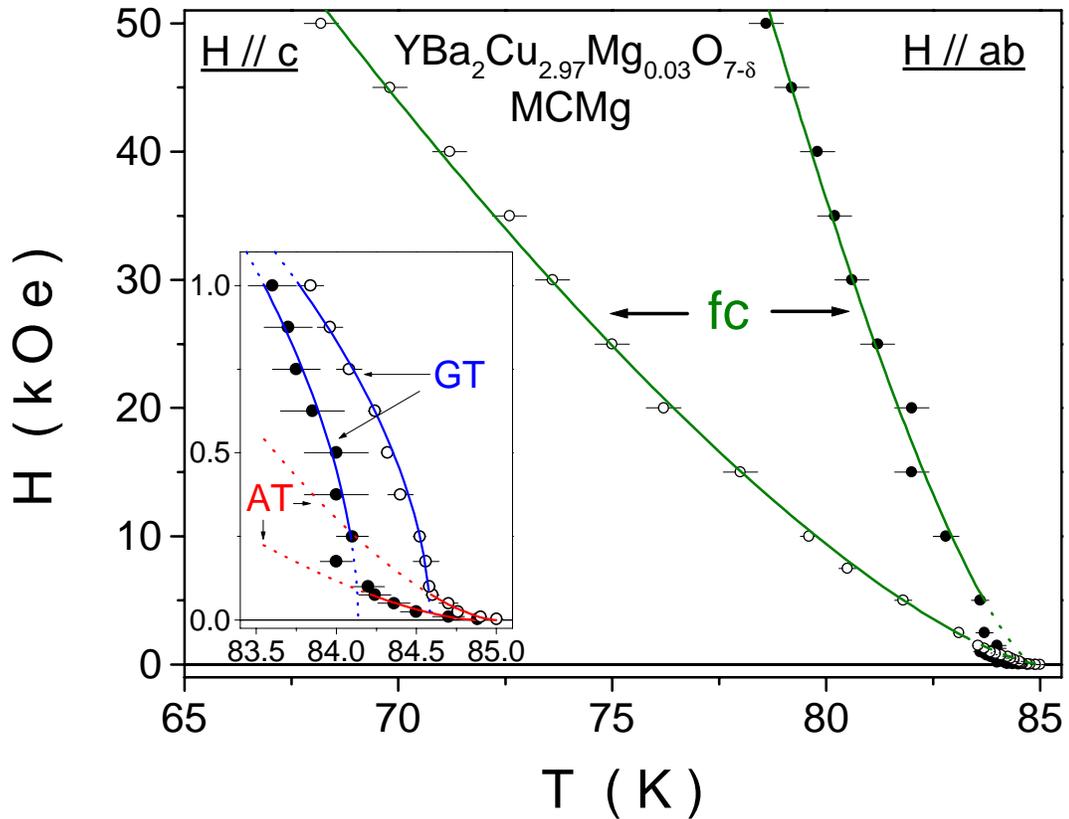
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Mg<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McMg; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	85.00 ± 0.04
2	0.01	84.90 ± 0.04
3	0.025	84.76 ± 0.06
4	0.05	84.70 ± 0.06
5	0.075	84.60 ± 0.04
6	0.1	84.58 ± 0.04
7	0.175	84.56 ± 0.08
8	0.25	84.52 ± 0.04
9	0.375	84.40 ± 0.08
10	0.5	84.32 ± 0.04
11	0.625	84.24 ± 0.04
12	0.75	84.08 ± 0.08
13	0.875	83.96 ± 0.08
14	1	83.84 ± 0.08
15	1.25	83.70 ± 0.10
16	1.5	83.55 ± 0.10
17	2.5	83.10 ± 0.10
18	5	81.80 ± 0.20
19	7.5	80.50 ± 0.20
20	10	79.60 ± 0.20
21	15	78.00 ± 0.40
22	20	76.20 ± 0.40
23	25	75.00 ± 0.40
24	30	73.60 ± 0.40
25	35	72.60 ± 0.40
26	40	71.20 ± 0.40
27	45	69.80 ± 0.40
28	50	68.20 ± 0.40

**Tab. 6.8** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McMg; H // c.

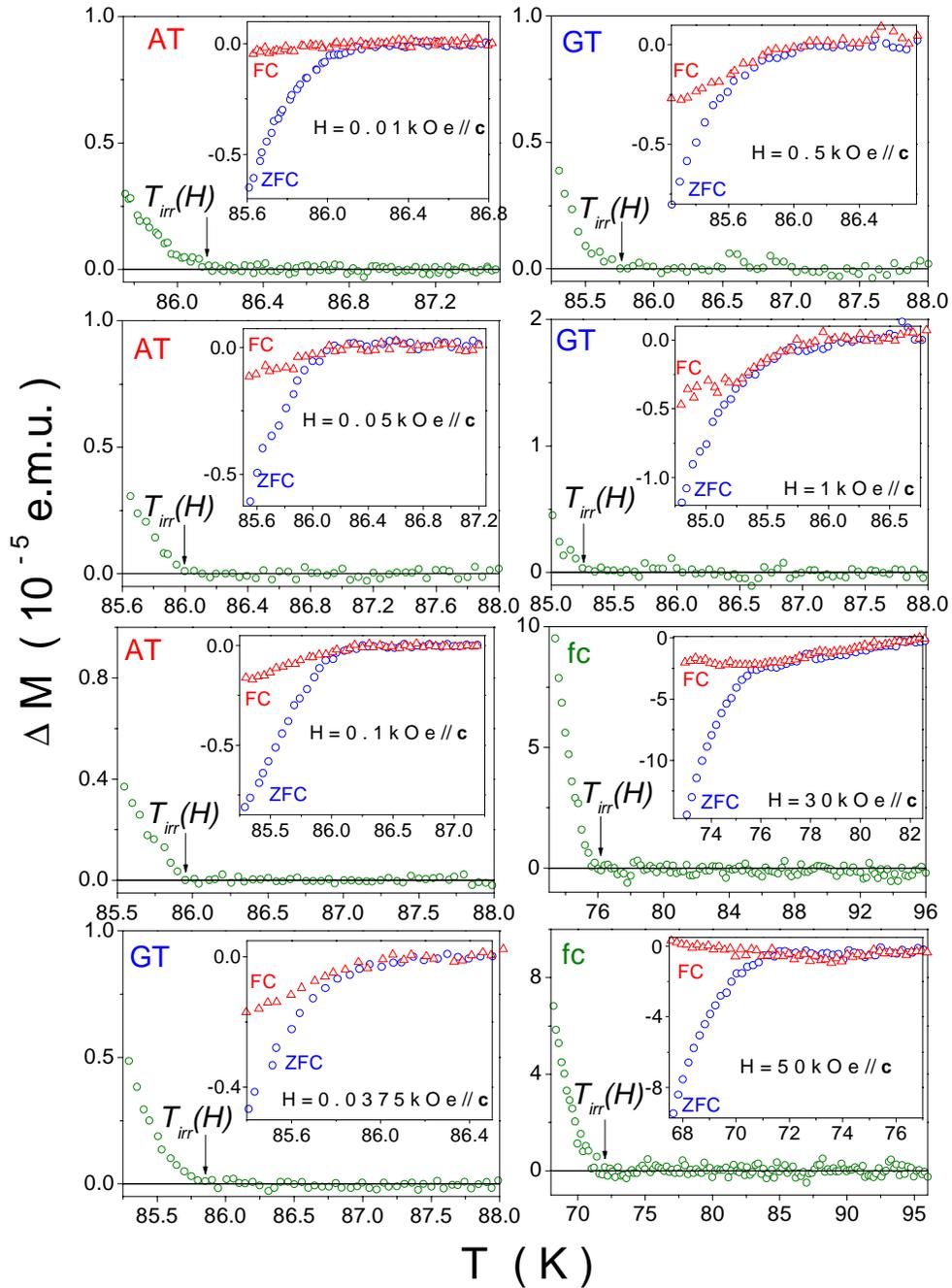
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Mg<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McMg; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	84.88 ± 0.10
2	0.01	84.70 ± 0.10
3	0.025	84.50 ± 0.10
4	0.05	84.36 ± 0.10
5	0.075	84.24 ± 0.10
6	0.1	84.20 ± 0.10
7	0.175	84.00 ± 0.10
8	0.25	84.10 ± 0.10
9	0.375	84.00 ± 0.20
10	0.5	84.00 ± 0.20
11	0.625	83.85 ± 0.20
12	0.75	83.75 ± 0.15
13	0.875	83.70 ± 0.15
14	1	83.60 ± 0.15
15	1.25	84.00 ± 0.20
16	1.5	84.00 ± 0.20
17	2.5	83.70 ± 0.20
18	5	83.60 ± 0.20
19	10	82.80 ± 0.30
20	15	82.00 ± 0.40
21	20	82.00 ± 0.40
22	25	81.20 ± 0.40
23	30	80.60 ± 0.40
24	35	80.20 ± 0.40
25	40	79.80 ± 0.40
26	45	79.20 ± 0.40
27	50	78.60 ± 0.40

**Tab. 6.9** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McMg; H // ab.



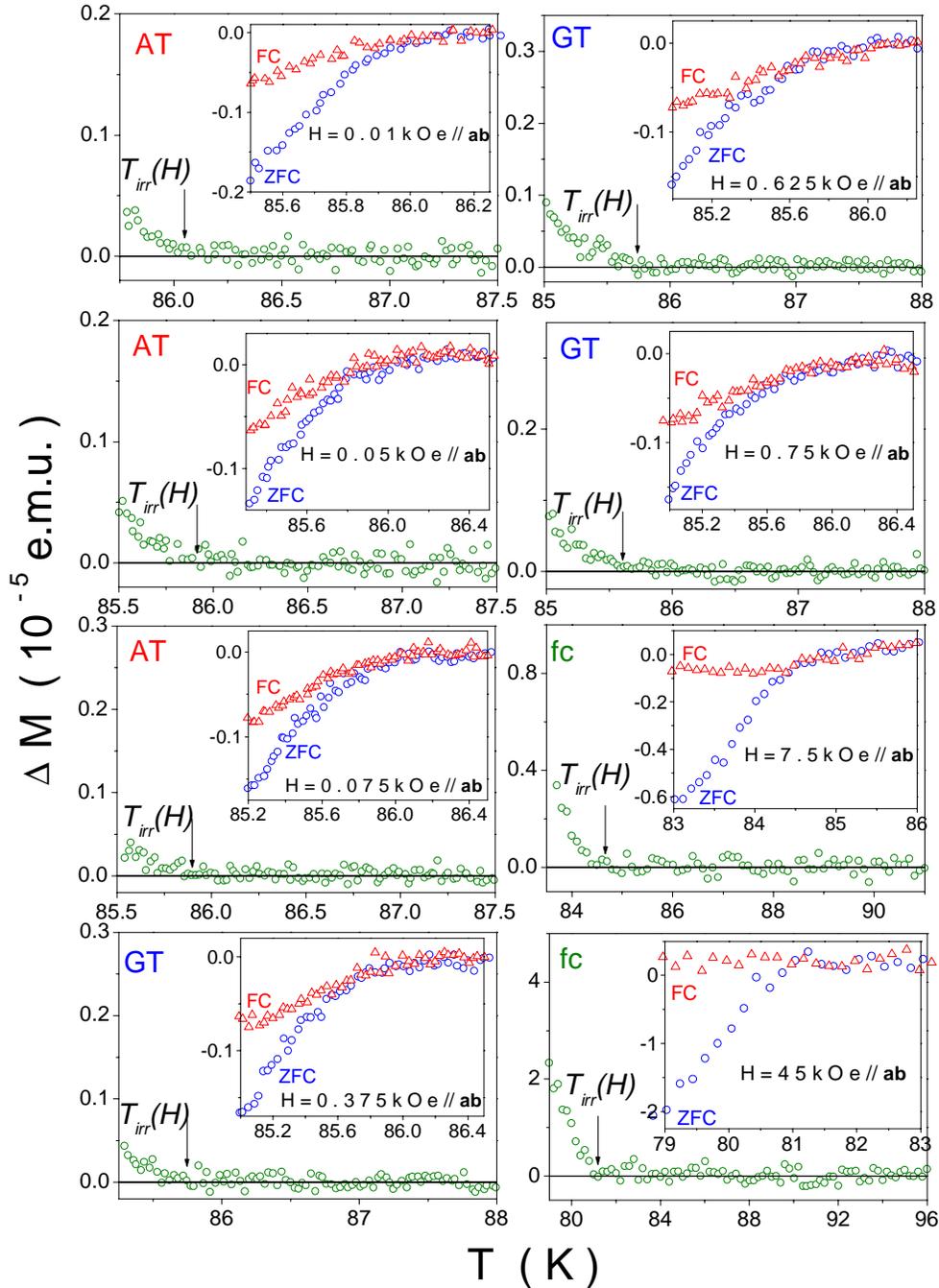
**Fig. 6.13** - LIM para a amostra McMg. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[132]</sup>

**Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Zn_{0.03}O_{7-\delta}$  -  $McZnA$ ;  $H // c$**



**Fig. 6.14** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McZnA$ ;  $H // c$ .

**Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Zn_{0.03}O_{7.8}$  - McZnA;  $H // ab$**



**Fig. 6.15** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McZnA;  $H // ab$ .

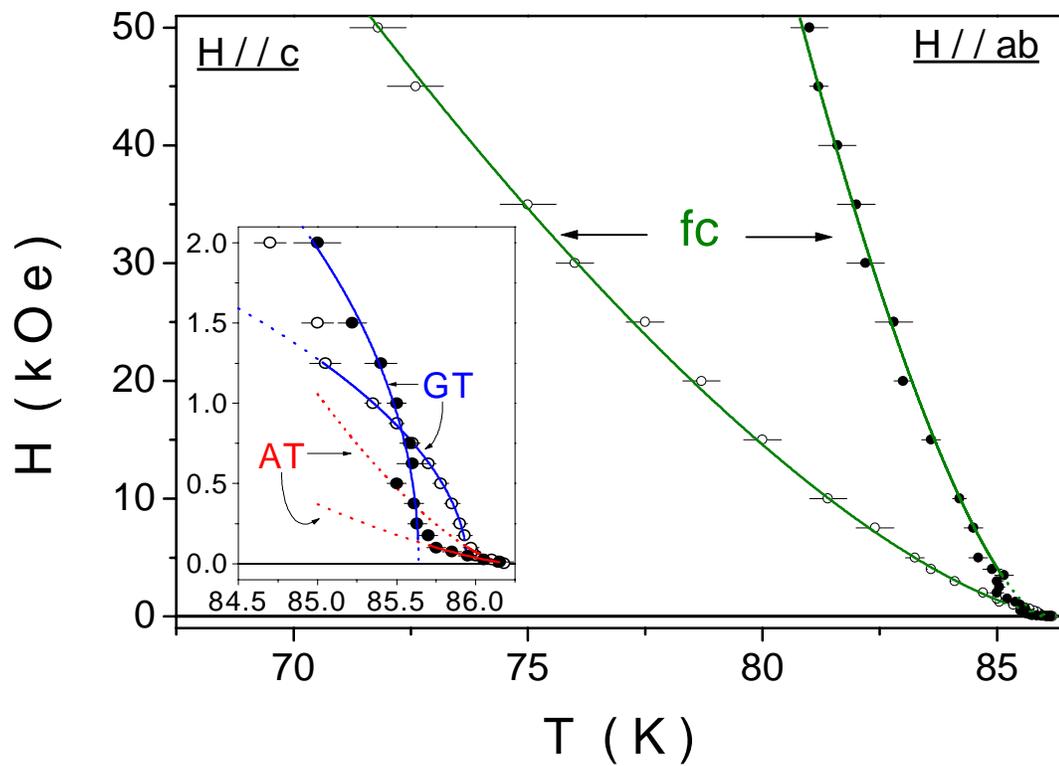
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McZnA; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	86.18 ± 0.04
2	0.01	86.14 ± 0.10
3	0.025	86.10 ± 0.05
4	0.05	86.00 ± 0.05
5	0.075	85.98 ± 0.05
6	0.1	85.97 ± 0.05
7	0.175	85.93 ± 0.05
8	0.25	85.90 ± 0.05
9	0.375	85.85 ± 0.05
10	0.5	85.78 ± 0.05
11	0.625	85.70 ± 0.05
12	0.75	85.60 ± 0.05
13	0.875	85.50 ± 0.05
14	1	85.35 ± 0.10
15	1.25	85.05 ± 0.10
16	1.5	85.00 ± 0.10
17	2	84.70 ± 0.10
18	3	84.10 ± 0.10
19	4	83.60 ± 0.10
20	5	83.25 ± 0.20
21	7.5	82.40 ± 0.40
22	10	81.40 ± 0.40
23	15	80.00 ± 0.40
24	20	78.70 ± 0.40
25	25	77.50 ± 0.40
26	30	76.00 ± 0.40
27	35	75.00 ± 0.60
28	45	72.60 ± 0.60
29	50	71.80 ± 0.60

**Tab. 6.10** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McZnA; H // c.

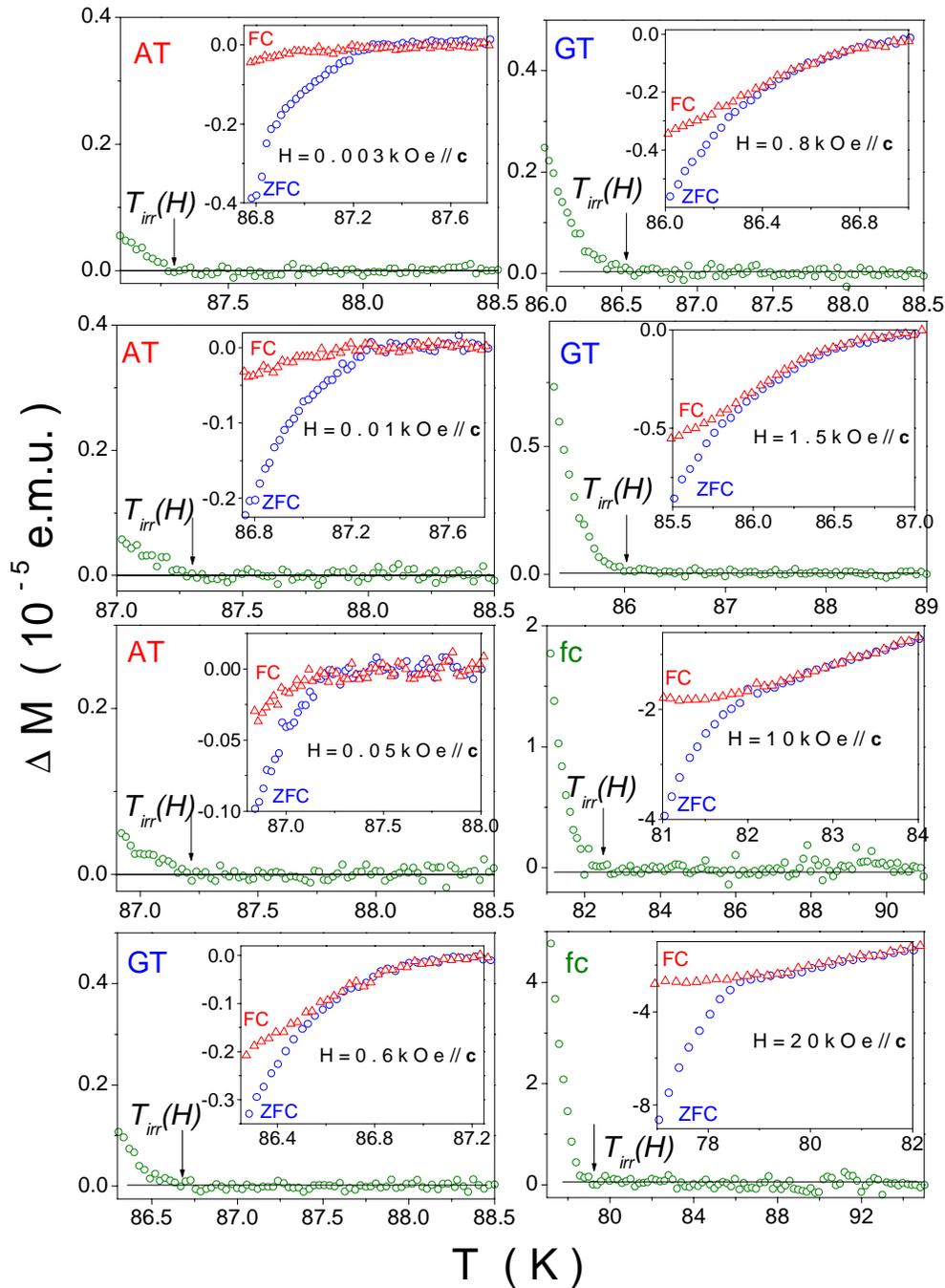
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McZnA; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	86.15 ± 0.04
2	0.025	86.05 ± 0.10
3	0.05	85.95 ± 0.06
4	0.075	85.85 ± 0.06
5	0.1	85.75 ± 0.06
6	0.175	85.70 ± 0.06
7	0.25	85.63 ± 0.06
8	0.375	85.61 ± 0.06
9	0.5	85.50 ± 0.06
10	0.625	85.60 ± 0.10
11	0.75	85.58 ± 0.06
12	1	85.50 ± 0.06
13	1.25	85.40 ± 0.10
14	1.5	85.22 ± 0.09
15	2	85.00 ± 0.15
16	2.5	85.05 ± 0.10
17	3	85.00 ± 0.10
18	3.5	85.15 ± 0.20
19	4	84.90 ± 0.20
20	5	84.60 ± 0.20
21	7.5	84.50 ± 0.20
22	10	84.20 ± 0.15
23	15	83.60 ± 0.20
24	20	83.00 ± 0.20
25	25	82.80 ± 0.40
26	30	82.20 ± 0.40
27	35	82.00 ± 0.40
28	40	81.60 ± 0.40
29	45	81.20 ± 0.20
30	50	81.00 ± 0.40

**Tab. 6.11** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McZnA; H // ab.



**Fig. 6.16** - LIM para a amostra McZnA. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[132]</sup>

**Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Zn_{0.03}O_{7-\delta}$  -  $McZnB$ ;  $H // c$**



**Fig. 6.17** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McZnB$ ;  $H // c$ .

Amostra -  $YBa_2Cu_{2.97}Zn_{0.03}O_{7-\delta}$  - McZnB; H // ab

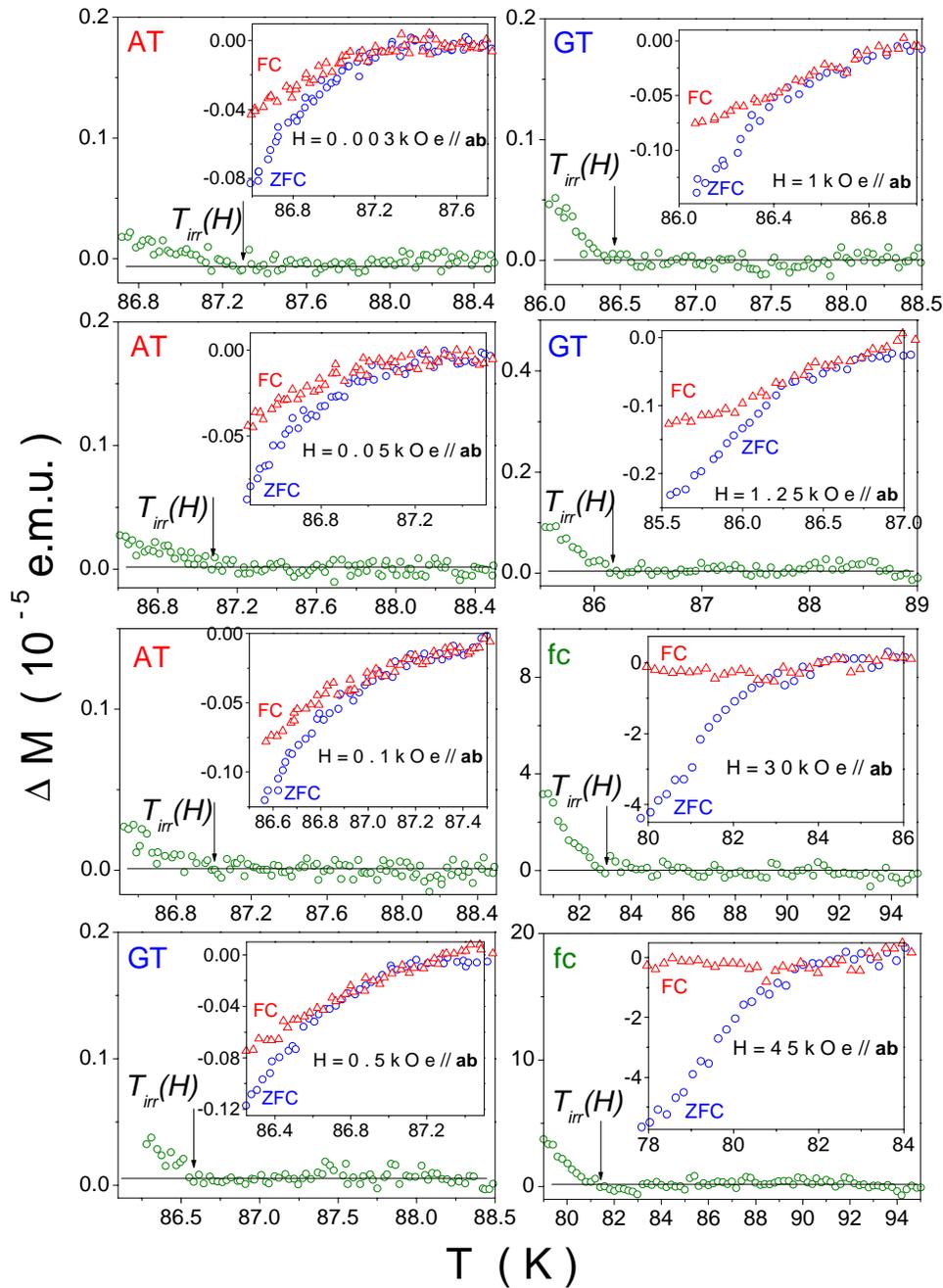


Fig. 6.18 - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McZnB;  $H // ab$ .

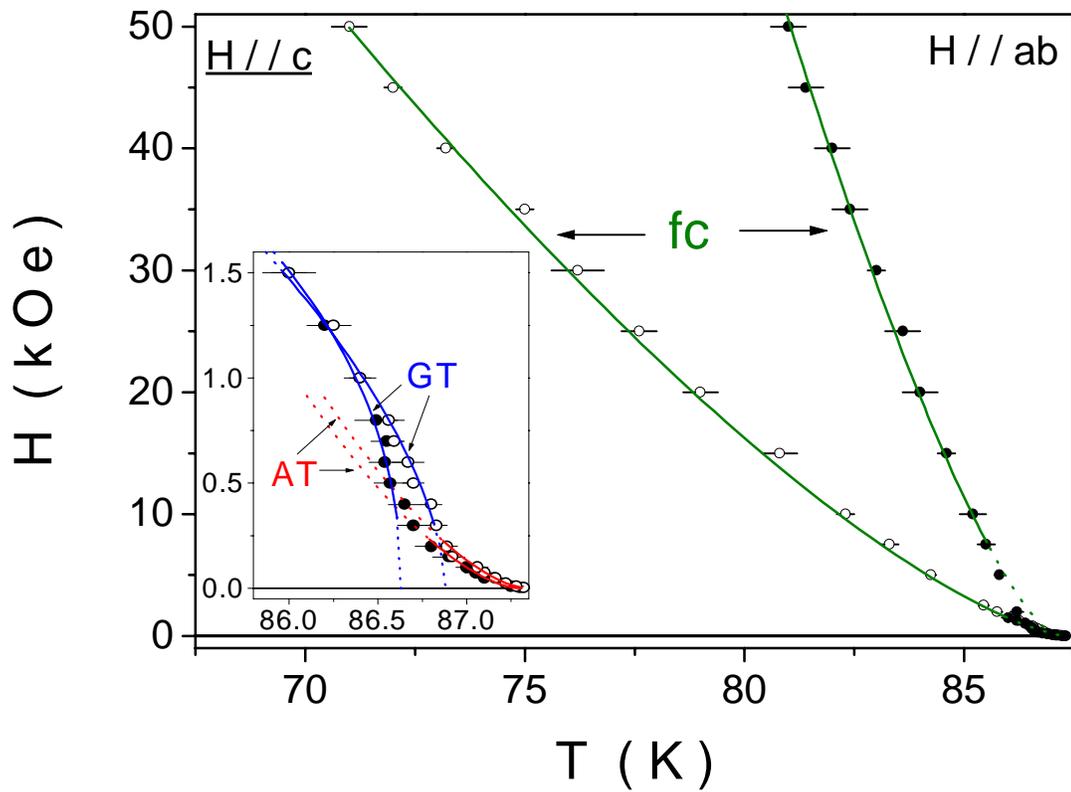
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McZnB; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	87.32 ± 0.04
2	0.01	87.28 ± 0.04
3	0.025	87.22 ± 0.04
4	0.05	87.16 ± 0.06
5	0.075	87.10 ± 0.06
6	0.1	87.06 ± 0.06
7	0.15	86.92 ± 0.06
8	0.2	86.89 ± 0.06
9	0.3	86.83 ± 0.06
10	0.4	86.80 ± 0.06
11	0.5	86.70 ± 0.06
12	0.6	86.67 ± 0.09
13	0.7	86.59 ± 0.06
14	0.8	86.56 ± 0.09
15	1	86.40 ± 0.06
16	1.25	86.25 ± 0.10
17	1.5	86.00 ± 0.10
18	2	85.75 ± 0.10
19	2.5	85.45 ± 0.10
20	5	84.25 ± 0.10
21	7.5	83.30 ± 0.20
22	10	82.30 ± 0.20
23	15	80.80 ± 0.40
24	20	79.00 ± 0.40
25	25	77.60 ± 0.40
26	30	76.20 ± 0.60
27	35	75.00 ± 0.20
28	40	73.20 ± 0.20
29	45	72.00 ± 0.20
30	50	71.00 ± 0.40

**Tab. 6.12** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McZnB; H // c.

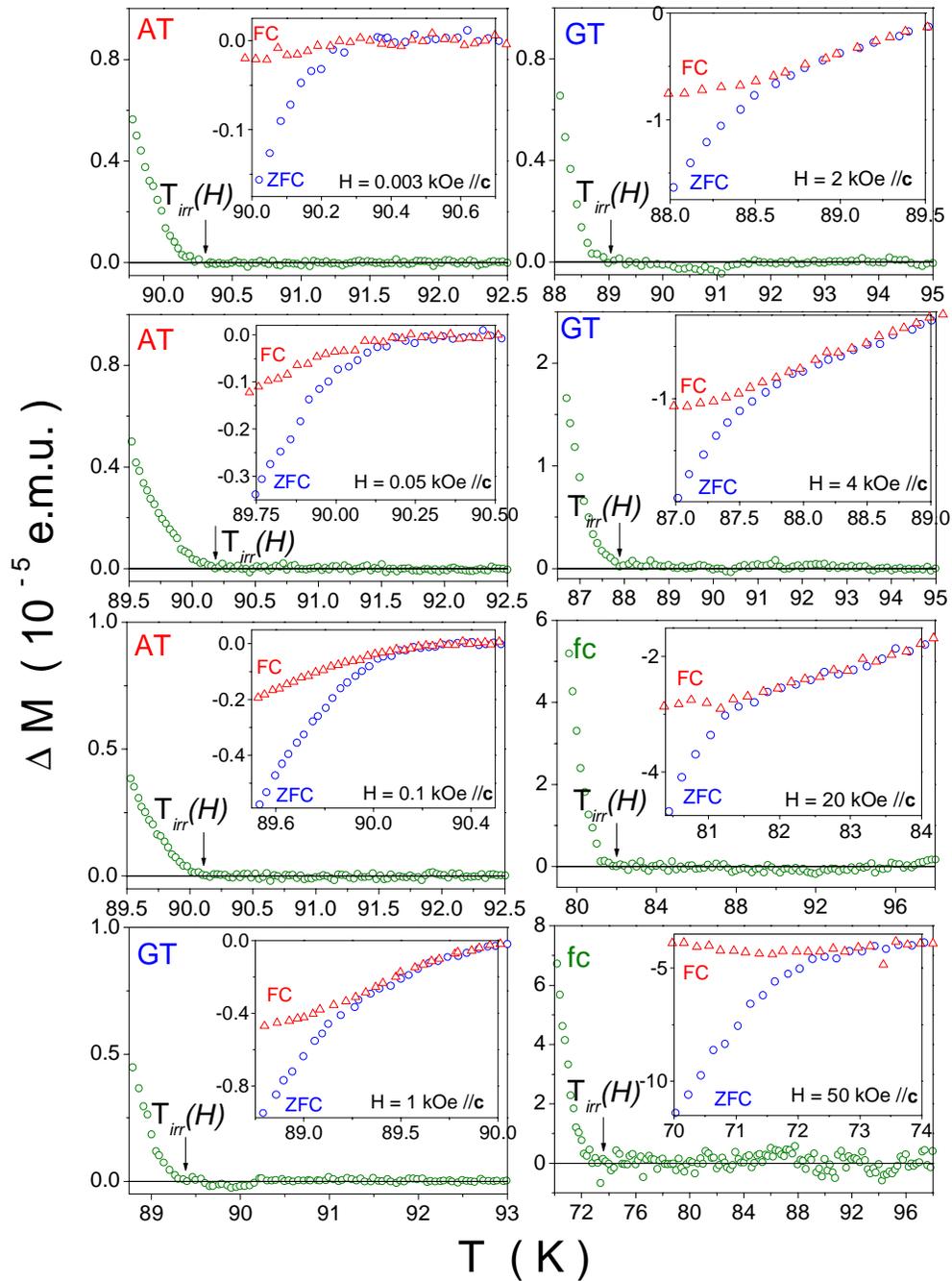
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McZnB; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	87.30 ± 0.06
2	0.01	87.25 ± 0.06
3	0.05	87.10 ± 0.06
4	0.075	87.05 ± 0.06
5	0.1	87.00 ± 0.06
6	0.15	86.90 ± 0.09
7	0.2	86.80 ± 0.09
8	0.3	86.70 ± 0.09
9	0.4	86.65 ± 0.09
10	0.5	86.57 ± 0.09
11	0.6	86.54 ± 0.09
12	0.7	86.55 ± 0.09
13	0.8	86.49 ± 0.12
14	1	86.40 ± 0.09
15	1.25	86.20 ± 0.10
16	1.5	86.00 ± 0.15
17	2	86.20 ± 0.15
18	5	85.80 ± 0.10
19	7.5	85.50 ± 0.20
20	10	85.20 ± 0.30
21	15	84.60 ± 0.20
22	20	84.00 ± 0.40
23	25	83.60 ± 0.40
24	30	83.00 ± 0.20
25	35	82.40 ± 0.40
26	40	82.00 ± 0.40
27	45	81.40 ± 0.40
28	50	81.00 ± 0.40

**Tab. 6.13** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McZnB; H // ab.



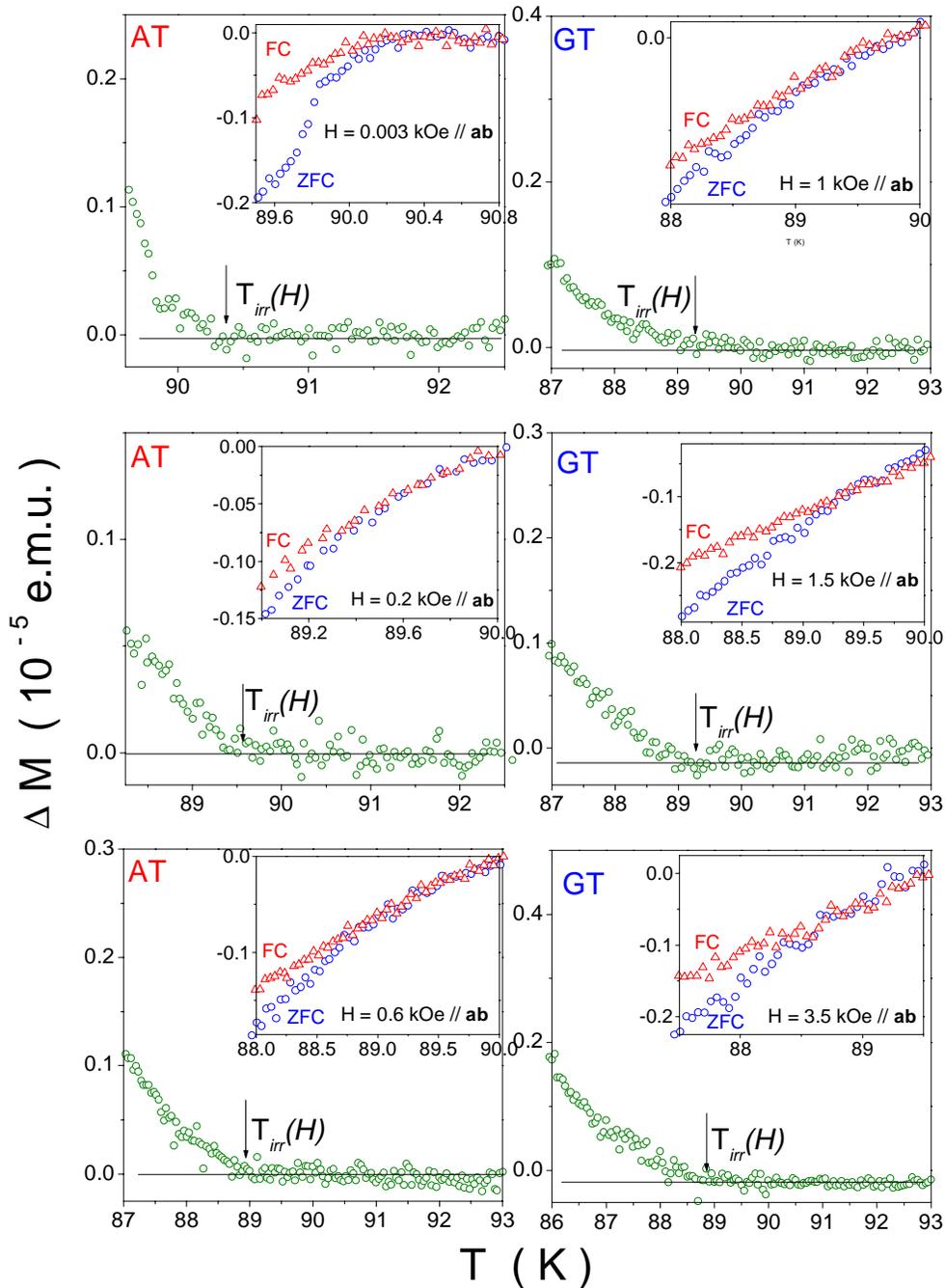
**Fig. 6.19** - LIM para a amostra  $McZnB$ . O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[132]</sup>

***Amostra -  $YBa_{1.9}Sr_{0.1}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr01;  $H // c$***



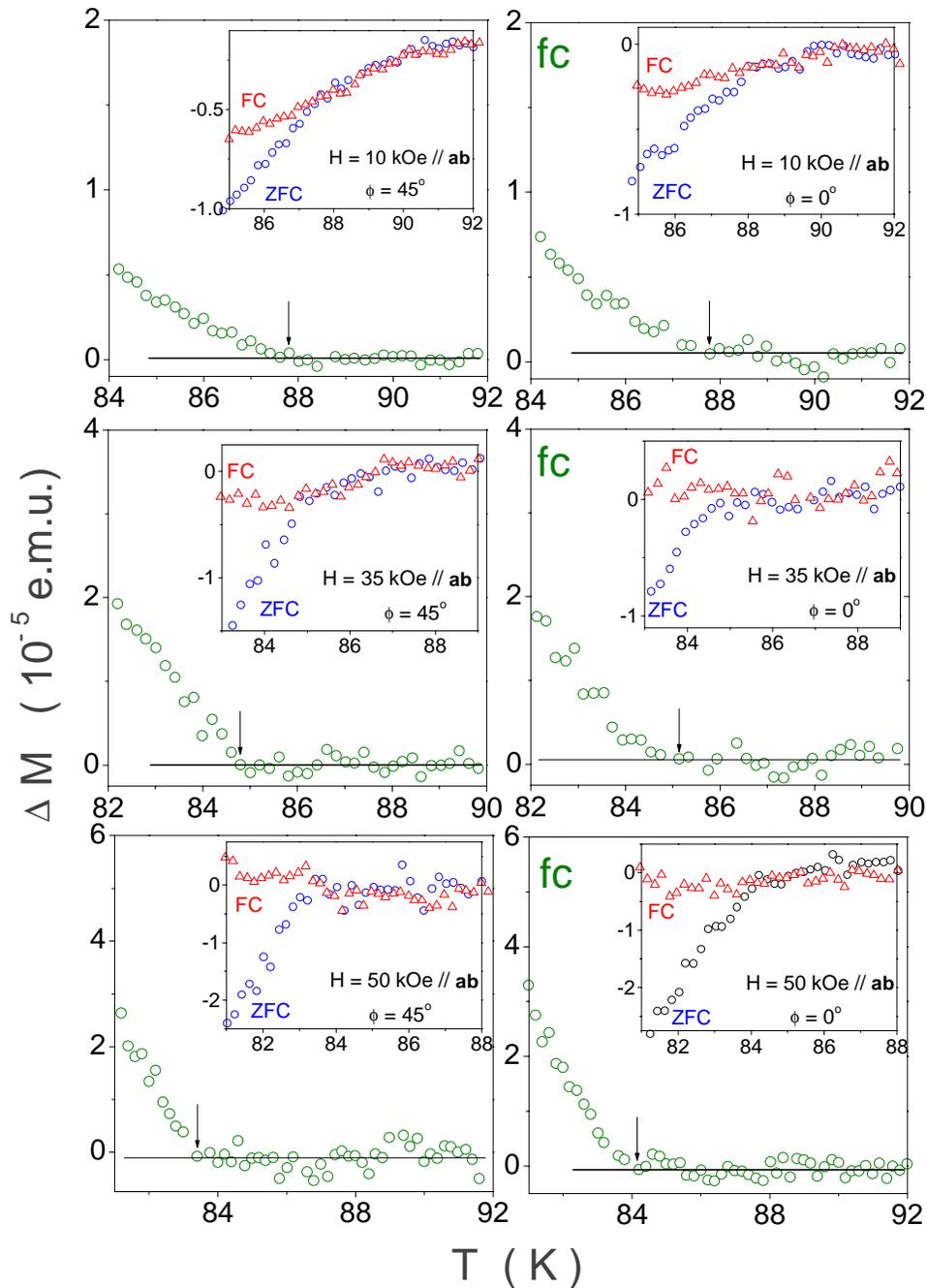
**Fig. 6.20** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr01;  $H // c$ .

**Amostra -  $YBa_{1.9}Sr_{0.1}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr01; H // ab**



**Fig. 6.21** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr01;  $H // ab$ .

***Amostra -  $YBa_{1.9}Sr_{0.1}Cu_3O_{7-\delta}$  -  $McSr01$ ;  $H // ab$  e  $\phi = 0$  e  $45^\circ$***



**Fig. 6.22** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McSr01$ ;  $H // ab$  e  $\phi = 0$  e  $45^\circ$ , onde  $\phi$  representa a posição angular entre o campo aplicado e os PMCs .

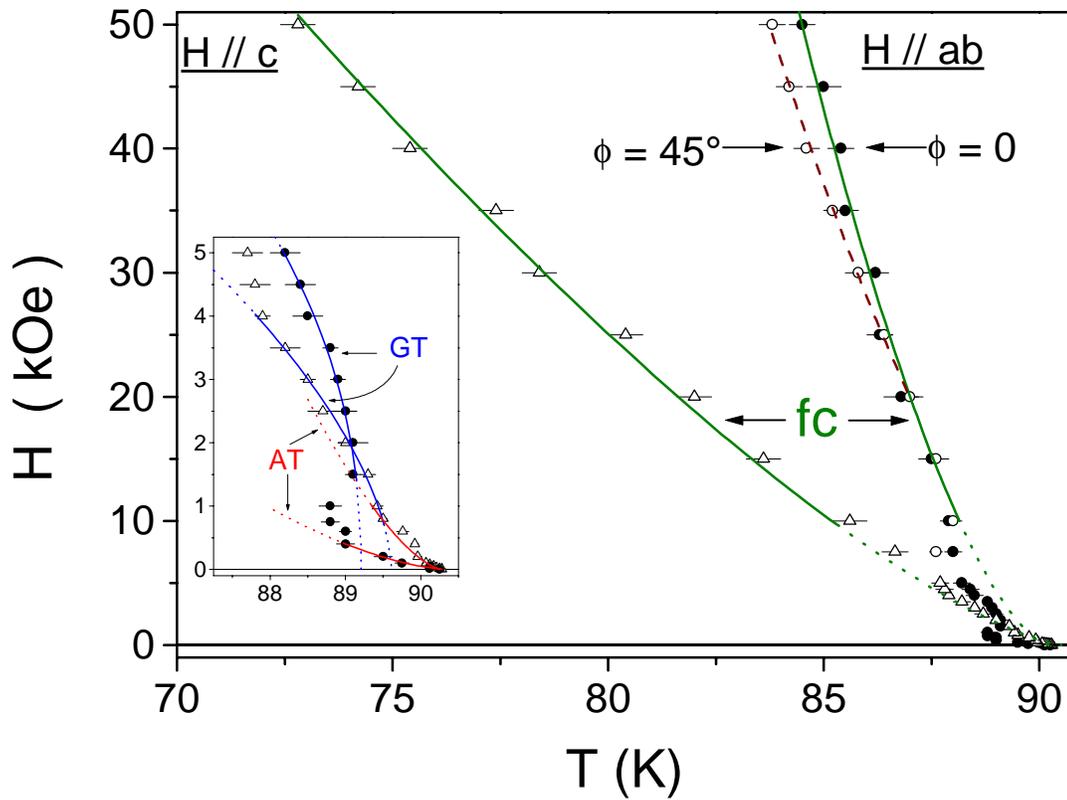
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McSr01; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	90.28 ± 0.06
2	0.01	90.25 ± 0.06
3	0.025	90.21 ± 0.06
4	0.05	90.17 ± 0.03
5	0.075	90.12 ± 0.03
6	0.1	90.07 ± 0.03
7	0.2	89.96 ± 0.04
8	0.4	89.92 ± 0.04
9	0.6	89.76 ± 0.08
10	0.8	89.50 ± 0.04
11	1	89.42 ± 0.08
12	1.5	89.30 ± 0.10
13	2	89.00 ± 0.10
14	2.5	88.70 ± 0.20
15	3	88.50 ± 0.10
16	3.5	88.20 ± 0.20
17	4	87.90 ± 0.10
18	4.5	87.80 ± 0.20
19	5	87.70 ± 0.20
20	7.5	86.65 ± 0.30
21	10	85.60 ± 0.40
22	15	83.60 ± 0.40
23	20	82.00 ± 0.40
24	25	80.40 ± 0.40
25	30	78.40 ± 0.40
26	35	77.40 ± 0.40
27	40	75.40 ± 0.40
28	45	74.20 ± 0.40
29	50	72.80 ± 0.40

**Tab. 6.14** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr01; H // c.

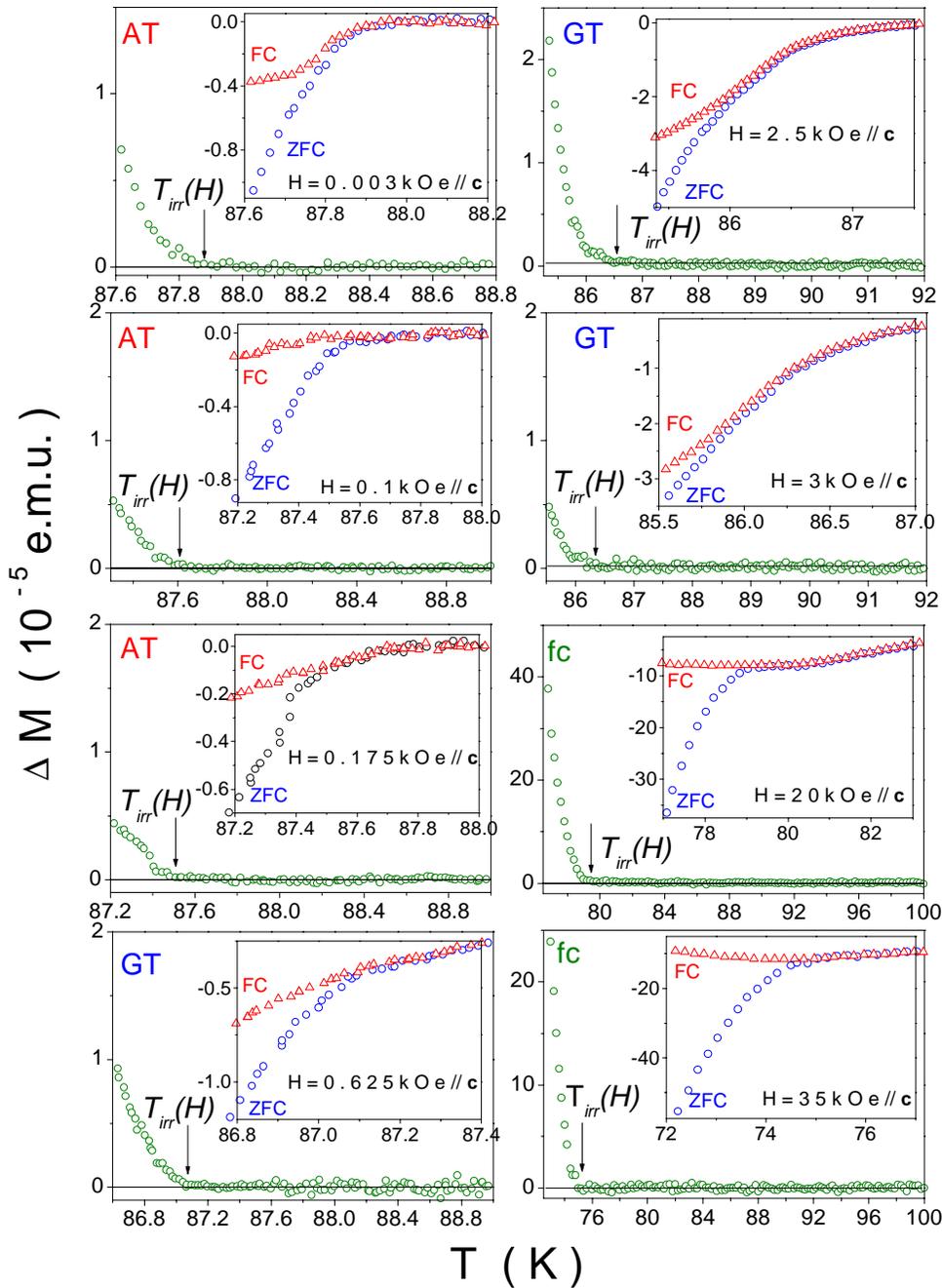
<b>YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McSr01; H // ab</b>			
		<b>φ = 0°</b>	<b>φ = 45°</b>
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	90.25 ± 0.06	-----
2	0.01	90.12 ± 0.06	-----
3	0.05	90.13 ± 0.12	-----
4	0.1	89.75 ± 0.09	-----
5	0.2	89.50 ± 0.12	-----
6	0.4	89.00 ± 0.12	-----
7	0.6	89.00 ± 0.08	-----
8	0.75	88.80 ± 0.12	-----
9	1	88.80 ± 0.15	-----
10	1.5	89.10 ± 0.10	-----
11	2	89.10 ± 0.20	-----
12	2.5	89.00 ± 0.15	-----
13	3	88.90 ± 0.10	-----
14	3.5	88.80 ± 0.10	-----
15	4	88.50 ± 0.20	-----
16	4.5	88.40 ± 0.20	-----
17	5	88.20 ± 0.20	-----
18	7.5	88.00 ± 0.20	87.60 ± 0.15
19	10	87.90 ± 0.20	88.00 ± 0.20
20	15	87.50 ± 0.30	87.60 ± 0.30
21	20	86.80 ± 0.40	87.00 ± 0.30
22	25	86.30 ± 0.30	86.40 ± 0.20
23	30	86.20 ± 0.30	85.80 ± 0.30
24	35	85.50 ± 0.30	85.20 ± 0.20
25	40	85.40 ± 0.30	84.60 ± 0.30
26	45	85.00 ± 0.40	84.20 ± 0.30
27	50	84.50 ± 0.30	83.80 ± 0.30

**Tab. 6.15** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr01; H // ab e φ = 0 e 45°.



**Fig. 6.23** - LIM para a amostra MCSr01. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" ( $fc$ ), Almeida-Thouless ( $AT$ ) e Gabay-Toulouse ( $GT$ ).<sup>[128,129]</sup>

**Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr025A;  $H // c$**



**Fig. 6.24** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr025A;  $H // c$ .

Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr025A;  $H // ab$

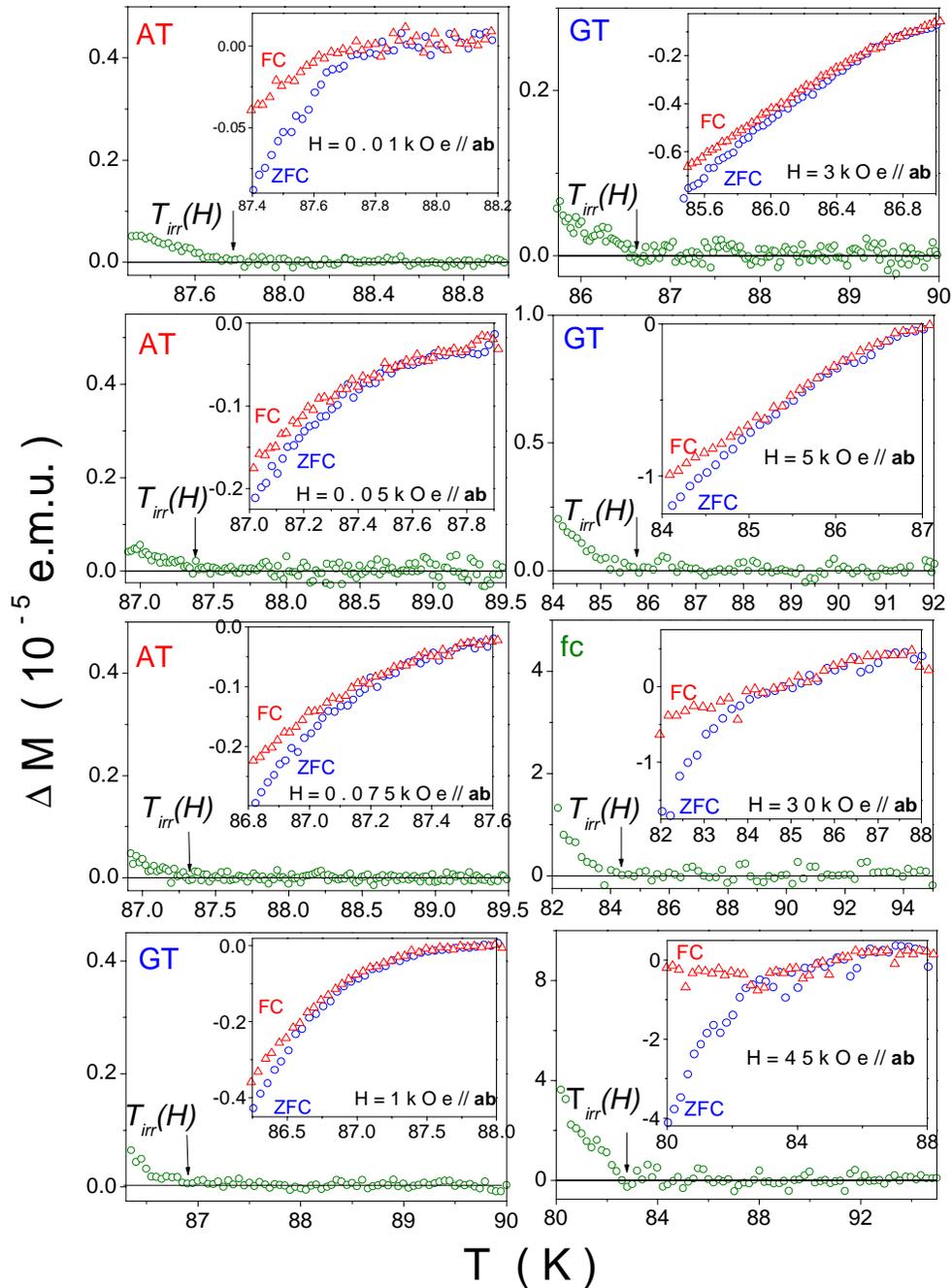


Fig. 6.25 - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr025A;  $H // ab$ .

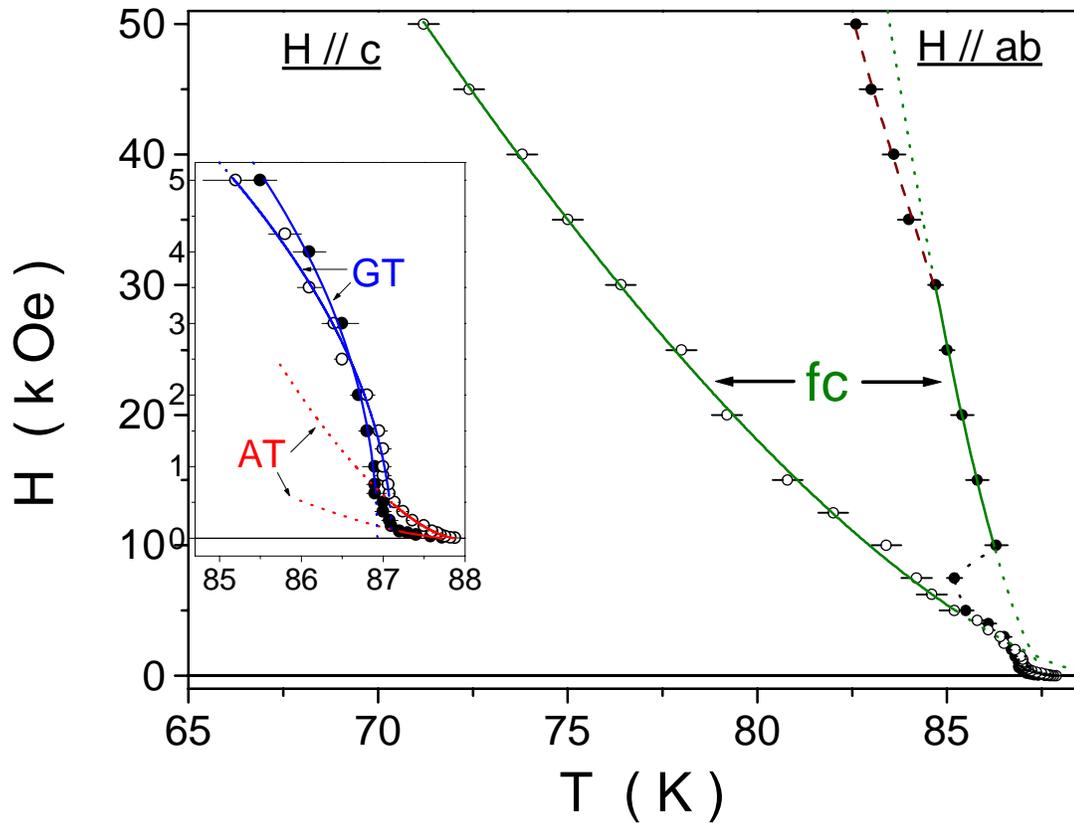
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub> McSr025A; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	87.88 ± 0.02
2	0.01	87.82 ± 0.04
3	0.025	87.76 ± 0.04
4	0.05	87.70 ± 0.04
5	0.075	87.66 ± 0.04
6	0.1	87.60 ± 0.04
7	0.175	87.50 ± 0.04
8	0.25	87.36 ± 0.04
9	0.375	87.24 ± 0.04
10	0.5	87.14 ± 0.04
11	0.625	87.08 ± 0.04
12	0.75	87.06 ± 0.06
13	0.875	87.00 ± 0.10
14	1	87.00 ± 0.10
15	1.25	87.00 ± 0.10
16	1.5	86.95 ± 0.10
17	2	86.80 ± 0.10
18	2.5	86.50 ± 0.10
19	3	86.40 ± 0.15
20	3.5	86.10 ± 0.15
21	4.25	85.80 ± 0.20
22	5	85.20 ± 0.40
23	6.25	84.60 ± 0.40
24	7.5	84.20 ± 0.40
25	10	83.40 ± 0.40
26	12.5	82.00 ± 0.40
27	15	80.80 ± 0.40
28	20	79.20 ± 0.40
29	25	78.00 ± 0.40
30	30	76.40 ± 0.40
31	35	75.00 ± 0.40
32	40	73.80 ± 0.40
33	45	72.40 ± 0.40
34	50	71.20 ± 0.40

**Tab. 6.16** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr025A; H // c.

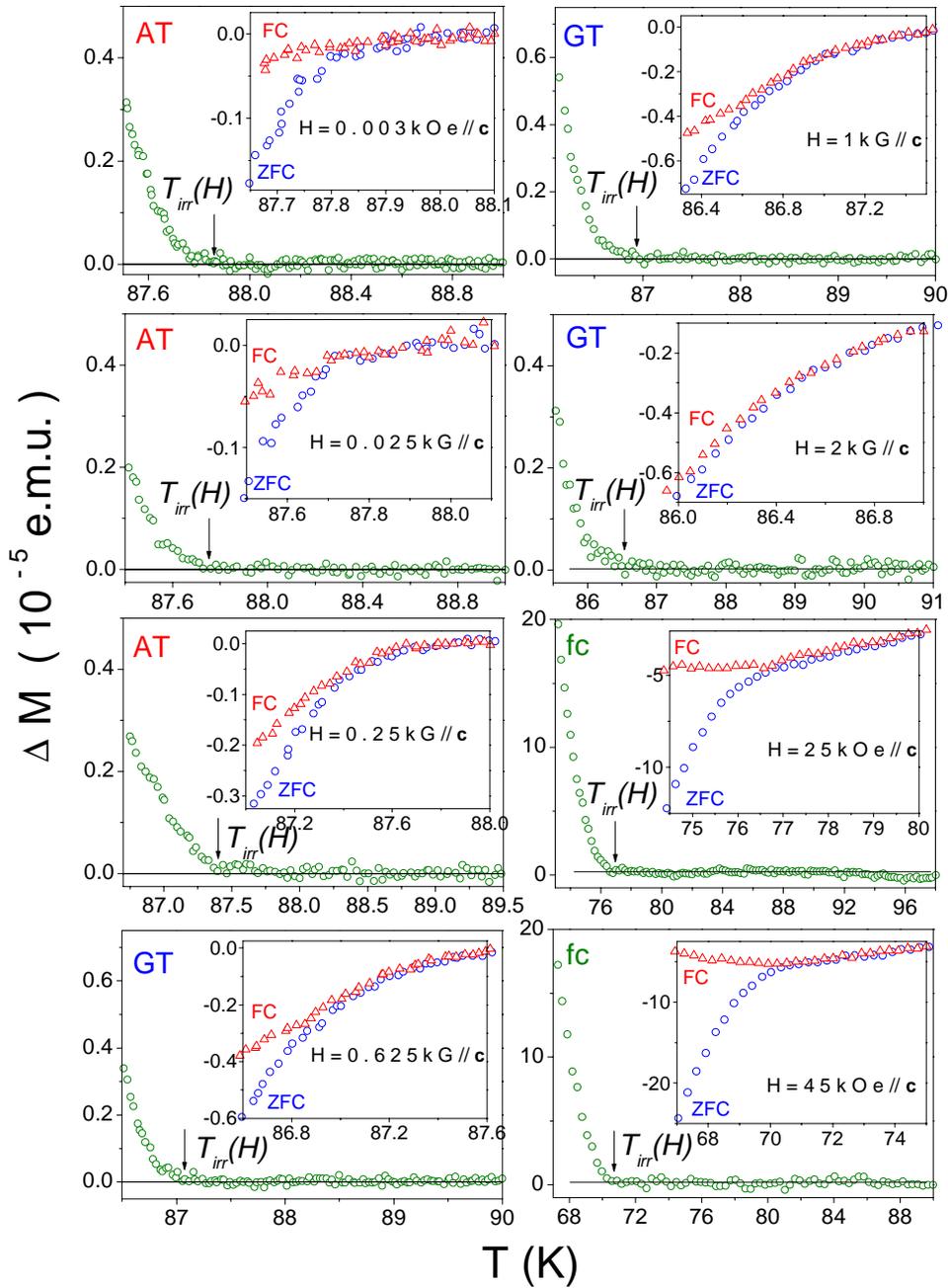
<b>YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-8</sub> McSr025A; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	87.72 ± 0.02
2	0.025	87.58 ± 0.02
3	0.05	87.40 ± 0.04
4	0.075	87.30 ± 0.04
5	0.1	87.20 ± 0.04
6	0.175	87.10 ± 0.04
7	0.25	87.08 ± 0.10
8	0.375	87.00 ± 0.10
9	0.5	87.00 ± 0.10
10	0.625	86.90 ± 0.10
11	0.75	86.90 ± 0.10
12	1	86.90 ± 0.15
13	1.5	86.80 ± 0.10
14	2	86.70 ± 0.10
15	3	86.50 ± 0.20
16	4	86.10 ± 0.20
17	5	85.50 ± 0.20
18	7.5	85.20 ± 0.20
19	10	86.30 ± 0.30
20	15	85.80 ± 0.30
21	20	85.40 ± 0.30
22	25	85.00 ± 0.20
23	30	84.70 ± 0.20
24	35	84.00 ± 0.30
25	40	83.60 ± 0.30
26	45	83.00 ± 0.30
27	50	82.60 ± 0.30

**Tab. 6.17** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr025A; H // ab.



**Fig. 6.26** - LIM para a amostra MCSr025A. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless(AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[128]</sup>

**Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr025B;  $H // c$**



**Fig. 6.27** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McSr025B$ ;  $H // c$ .

Amostra -  $YBa_{1.75}Sr_{0.25}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr025B;  $H // ab$

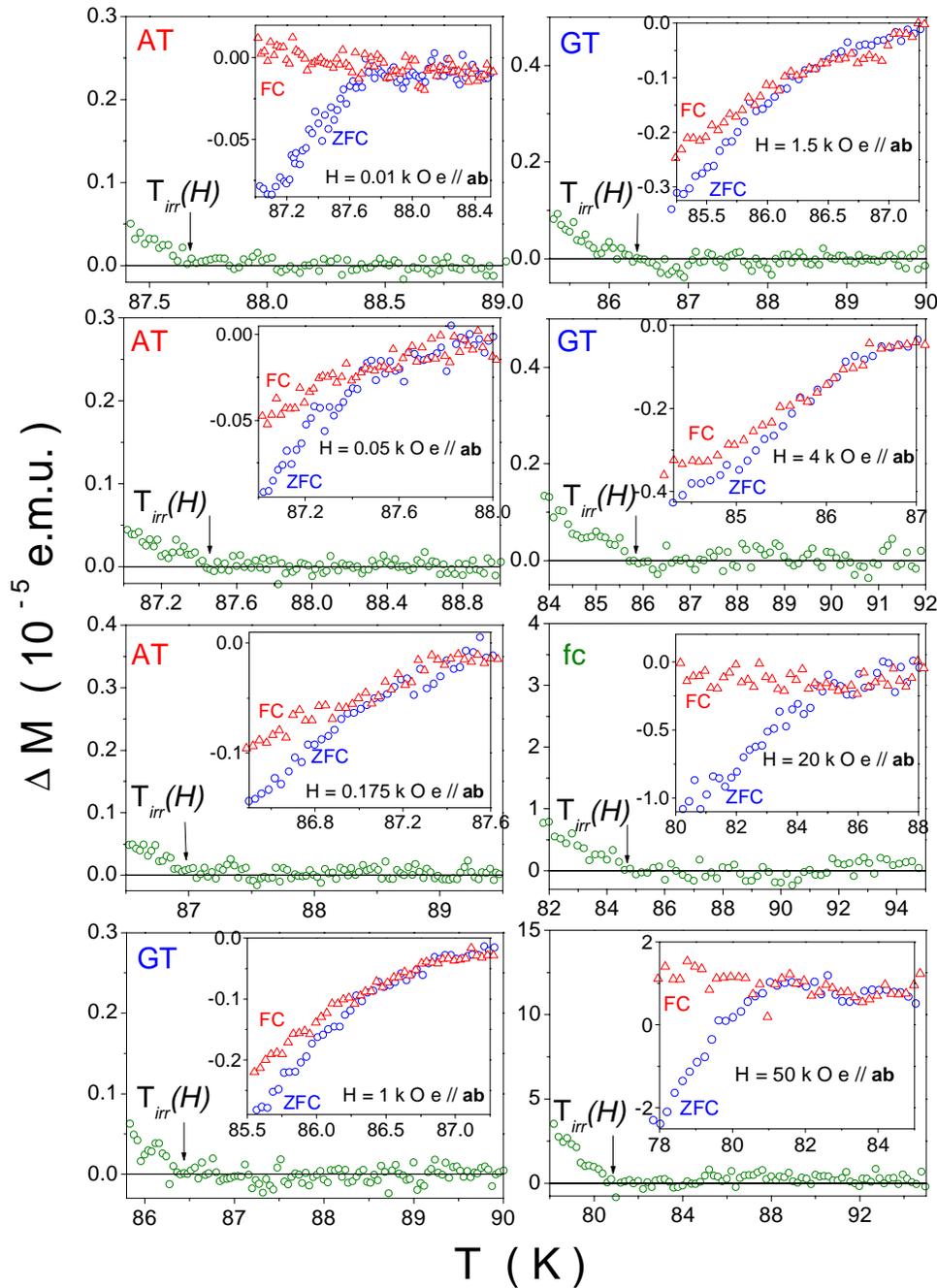


Fig. 6.28 - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr025B;  $H // ab$ .

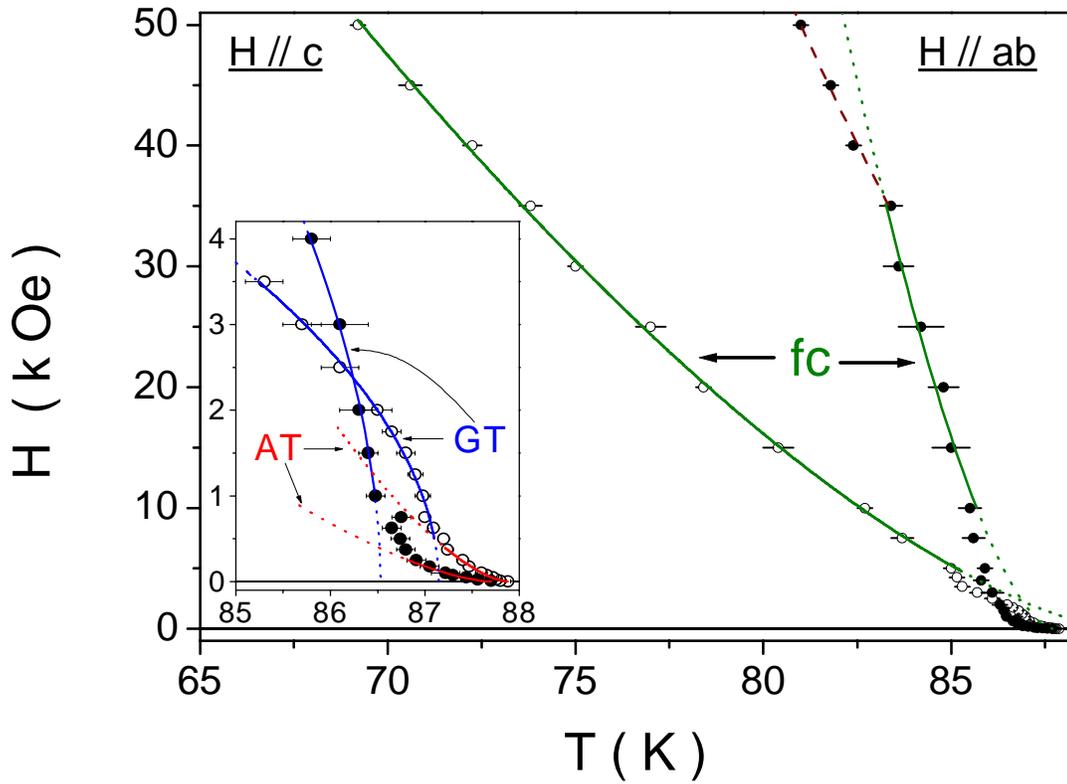
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> McSr025B; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	87.88 ± 0.03
2	0.01	87.80 ± 0.06
3	0.025	87.76 ± 0.04
4	0.05	87.72 ± 0.04
5	0.075	87.66 ± 0.04
6	0.1	87.60 ± 0.04
7	0.175	87.47 ± 0.06
8	0.25	87.40 ± 0.06
9	0.375	87.24 ± 0.06
10	0.5	87.20 ± 0.06
11	0.625	87.09 ± 0.06
12	0.75	87.00 ± 0.06
13	1	86.98 ± 0.08
14	1.25	86.90 ± 0.08
15	1.5	86.80 ± 0.10
16	1.75	86.65 ± 0.10
17	2	86.50 ± 0.15
18	2.5	86.10 ± 0.20
19	3	85.70 ± 0.20
20	3.5	85.30 ± 0.20
21	4.25	85.15 ± 0.20
22	5	85.00 ± 0.20
23	7.5	83.70 ± 0.30
24	10	82.70 ± 0.20
25	15	80.40 ± 0.40
26	20	78.40 ± 0.20
27	25	77.00 ± 0.40
28	30	75.00 ± 0.20
29	35	73.80 ± 0.30
30	40	72.25 ± 0.25
31	45	70.60 ± 0.30
32	50	69.20 ± 0.20

**Tab. 6.18** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr025B; H // c.

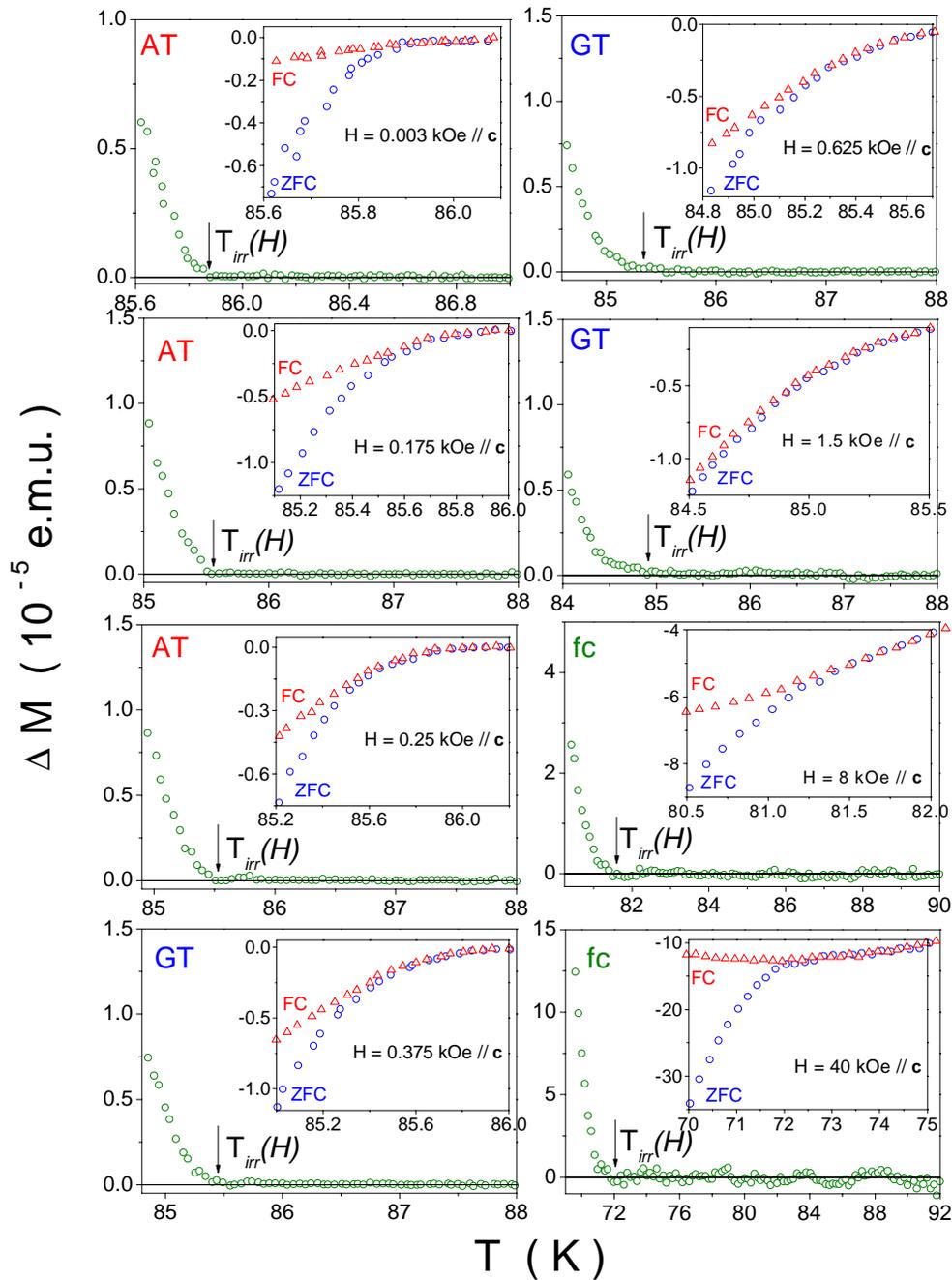
<b>YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> McSr025B; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	87.70 ± 0.10
2	0.025	87.56 ± 0.10
3	0.05	87.44 ± 0.10
4	0.075	87.30 ± 0.10
5	0.1	87.22 ± 0.15
6	0.175	87.05 ± 0.10
7	0.25	86.91 ± 0.10
8	0.375	86.80 ± 0.10
9	0.5	86.74 ± 0.10
10	0.625	86.65 ± 0.10
11	0.75	86.75 ± 0.10
12	1	86.48 ± 0.10
13	1.5	86.40 ± 0.10
14	2	86.30 ± 0.20
15	3	86.10 ± 0.30
16	4	85.80 ± 0.20
17	5	85.90 ± 0.20
18	7.5	85.60 ± 0.30
19	10	85.50 ± 0.30
20	15	85.00 ± 0.50
21	20	84.80 ± 0.40
22	25	84.20 ± 0.60
23	30	83.60 ± 0.40
24	35	83.40 ± 0.30
25	40	82.40 ± 0.20
26	45	81.80 ± 0.20
27	50	81.00 ± 0.20

**Tab. 6.19** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr025B; H // ab.



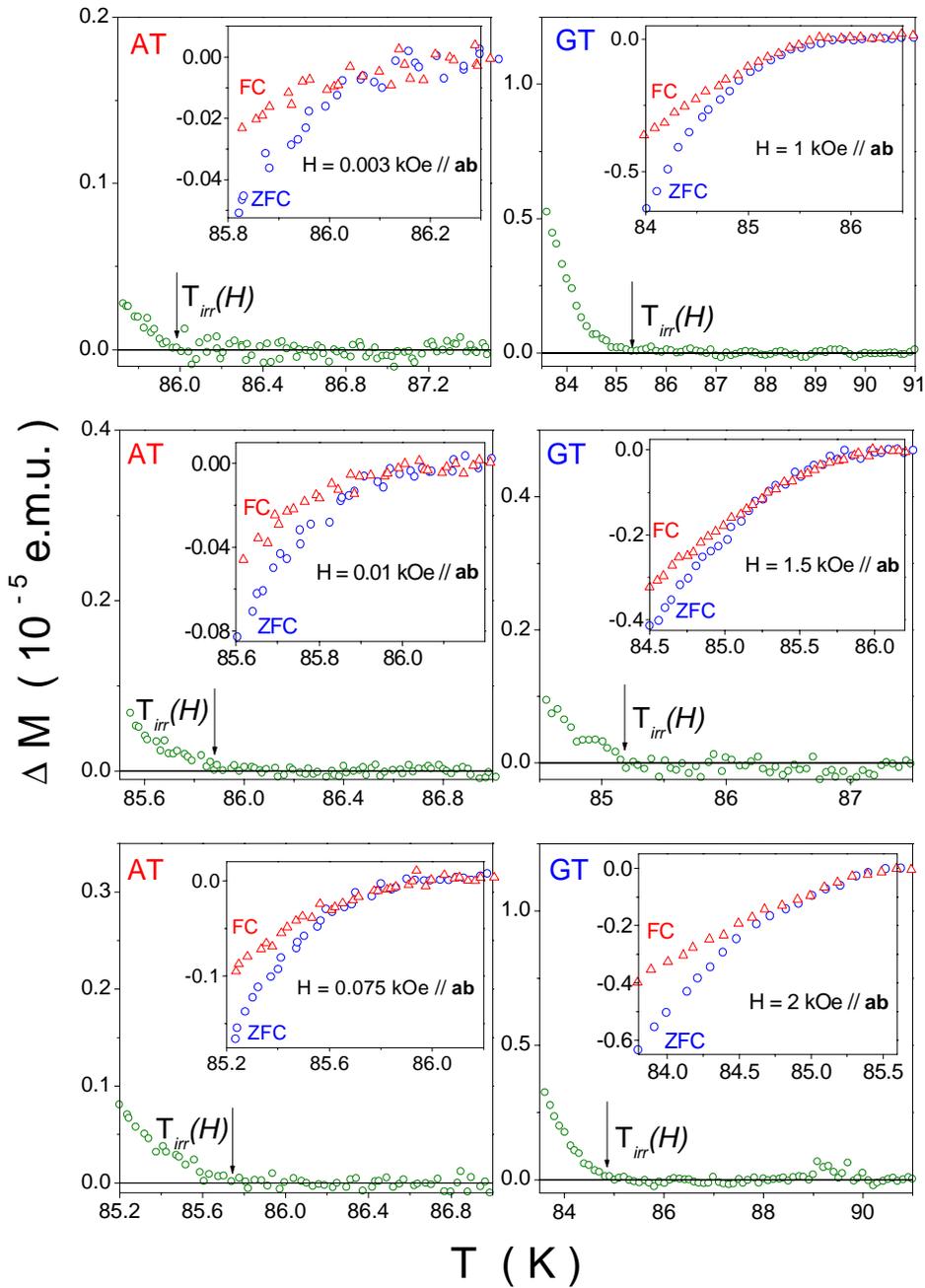
**Fig. 6.29** - LIM para a amostra MCSr025B. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[128]</sup>

**Amostra -  $YBa_{1.63}Sr_{0.37}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr037;  $H // c$**



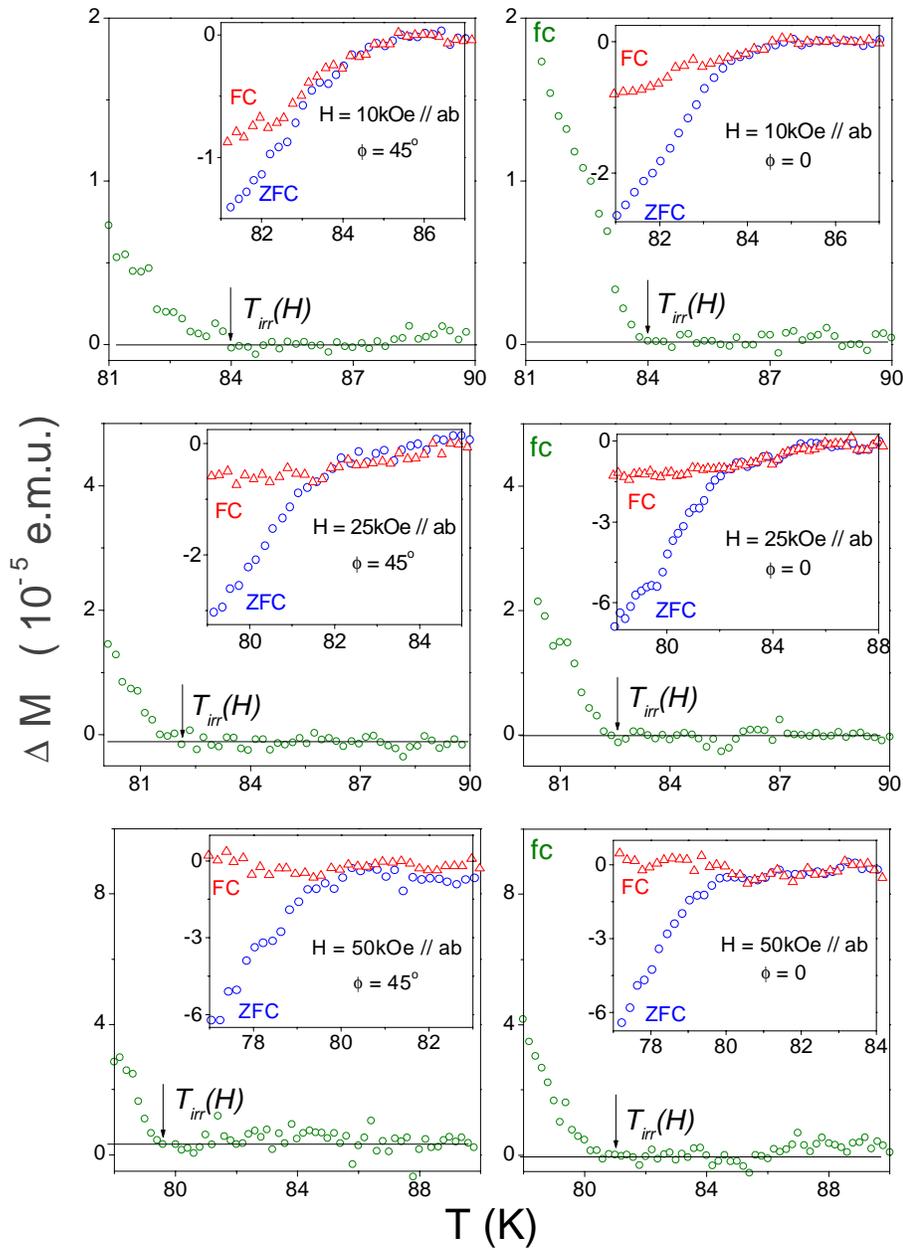
**Fig. 6.30** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr037;  $H // c$ .

***Amostra -  $YBa_{1.63}Sr_{0.37}Cu_3O_{7-\delta}$  - McSr037;  $H // ab$***



**Fig. 6.31** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra McSr037;  $H // ab$ .

**Amostra -  $YBa_{1.63}Sr_{0.37}Cu_3O_{7-\delta}$  -  $McSr037$ ;  $H // ab$  e  $\phi = 0$  e  $45^\circ$**



**Fig. 6.32** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McSr037$ ;  $H // ab$  e  $\phi = 0$  e  $45^\circ$ , onde  $\phi$  representa a posição angular entre o campo aplicado e os PMCs<sup>[128]</sup>.

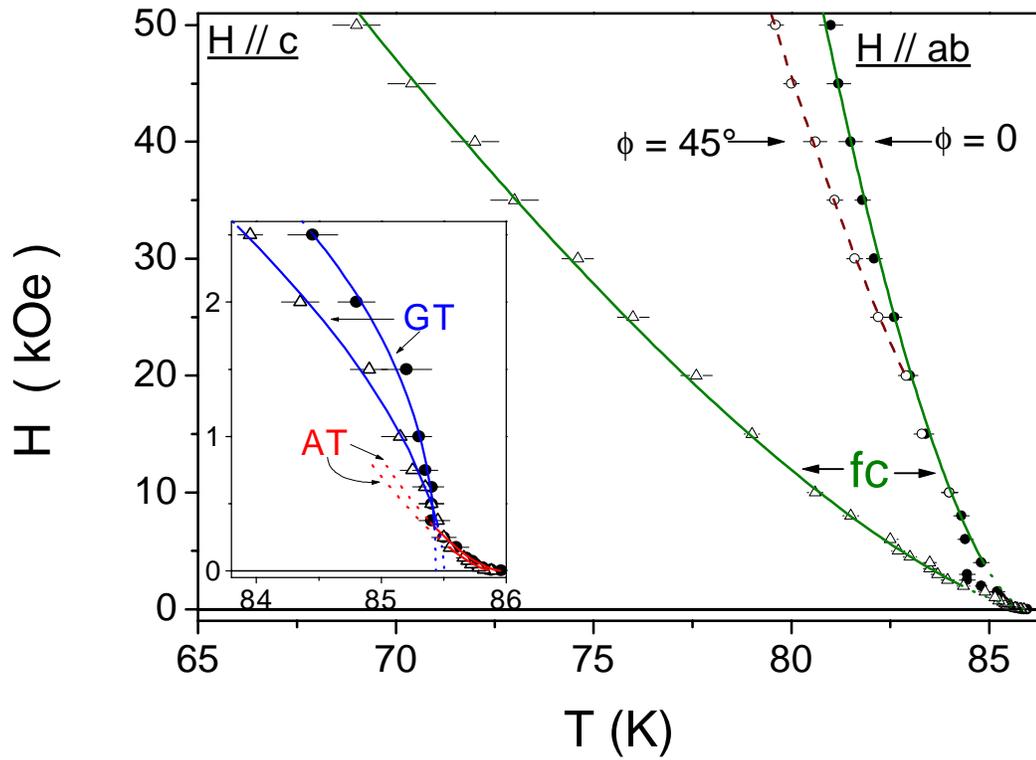
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.63</sub>Sr<sub>0.37</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> McSr037; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	85.88 ± 0.04
2	0.01	85.82 ± 0.04
3	0.025	85.78 ± 0.06
4	0.05	85.72 ± 0.06
5	0.075	85.69 ± 0.06
6	0.1	85.66 ± 0.06
7	0.175	85.55 ± 0.05
8	0.25	85.50 ± 0.05
9	0.375	85.45 ± 0.10
10	0.5	85.40 ± 0.10
11	0.625	85.35 ± 0.10
12	0.75	85.25 ± 0.10
13	1	85.15 ± 0.15
14	1.5	84.90 ± 0.15
15	2	84.35 ± 0.15
16	2.5	83.95 ± 0.10
17	3	83.70 ± 0.10
18	3.5	83.50 ± 0.10
19	4	83.50 ± 0.10
20	4.5	83.00 ± 0.15
21	5	82.70 ± 0.15
22	6	82.50 ± 0.20
23	8	81.50 ± 0.20
24	10	80.60 ± 0.20
25	15	79.00 ± 0.20
26	20	77.60 ± 0.40
27	25	76.00 ± 0.40
28	30	74.60 ± 0.40
29	35	73.00 ± 0.60
30	40	72.00 ± 0.60
31	45	70.40 ± 0.60
32	50	69.00 ± 0.60

**Tab. 6.20** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr037; H // c.

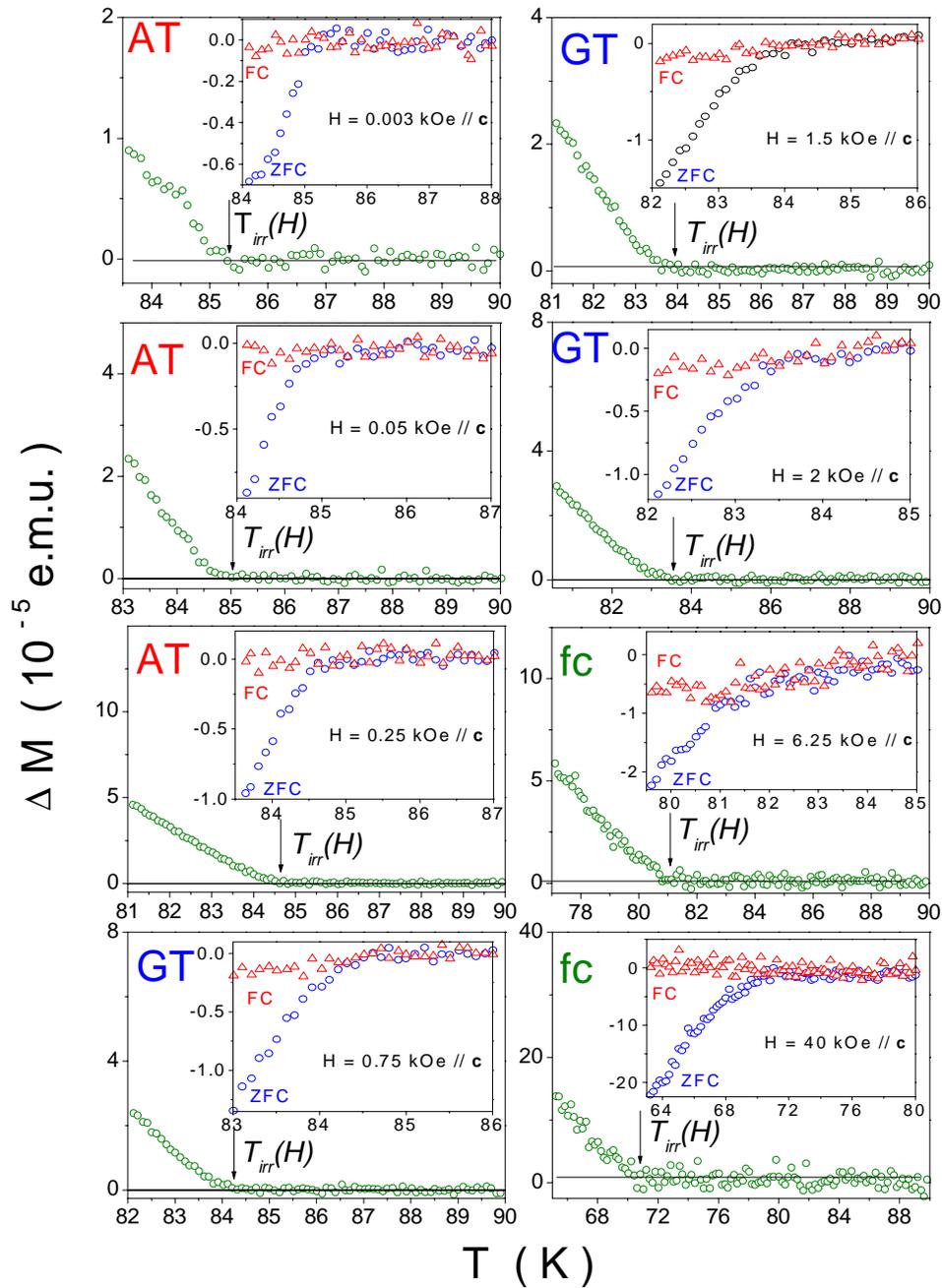
<b>YBa<sub>1.63</sub>Sr<sub>0.37</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> McSr037; H // ab</b>			
		<b>φ = 0°</b>	<b>φ = 45°</b>
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	85.96 ± 0.04	-----
2	0.01	85.88 ± 0.04	-----
3	0.025	85.81 ± 0.06	-----
4	0.05	85.75 ± 0.04	-----
5	0.075	85.73 ± 0.06	-----
6	0.1	85.68 ± 0.06	-----
7	0.175	85.60 ± 0.10	-----
8	0.25	85.50 ± 0.10	-----
9	0.375	85.40 ± 0.10	-----
10	0.5	85.40 ± 0.10	-----
11	0.625	85.40 ± 0.10	-----
12	0.75	85.35 ± 0.10	-----
13	1	85.30 ± 0.10	-----
14	1.5	85.20 ± 0.20	-----
15	2	84.80 ± 0.15	-----
16	2.5	84.45 ± 0.20	-----
17	3	84.45 ± 0.20	-----
18	4	84.80 ± 0.20	-----
19	6	84.40 ± 0.20	-----
20	8	84.30 ± 0.20	-----
21	10	84.00 ± 0.20	84.00 ± 0.20
22	15	83.40 ± 0.20	83.30 ± 0.20
23	20	83.00 ± 0.20	82.90 ± 0.20
24	25	82.60 ± 0.20	82.20 ± 0.20
25	30	82.10 ± 0.20	81.60 ± 0.20
26	35	81.80 ± 0.20	81.10 ± 0.20
27	40	81.50 ± 0.30	80.60 ± 0.30
28	45	81.20 ± 0.30	80.00 ± 0.20
29	50	81.00 ± 0.30	79.60 ± 0.20

**Tab. 6.21** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr037; H // ab e φ = 0 e 45°.



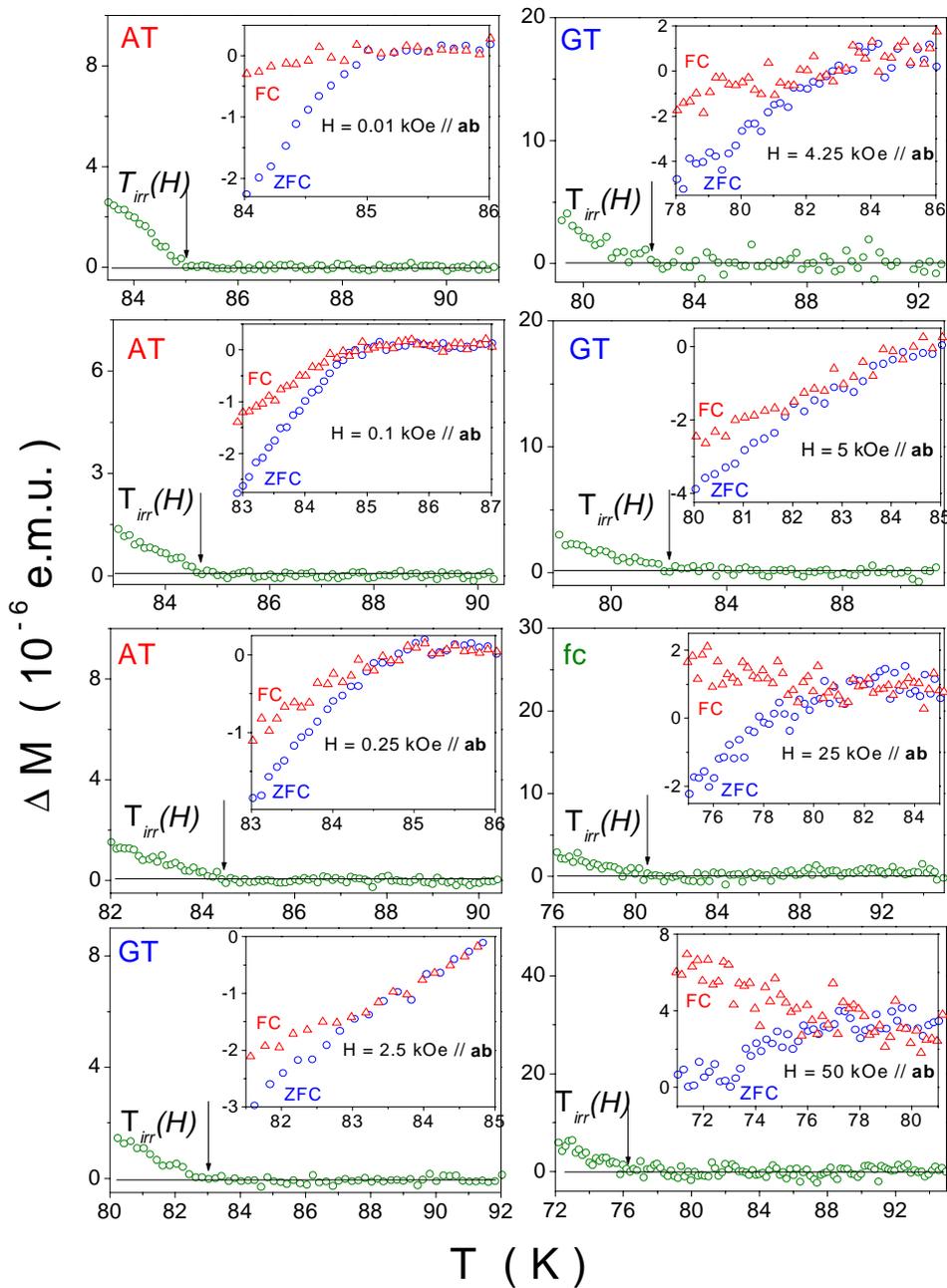
**Fig. 6.33** - LIM para a amostra MCSr037. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[128,129]</sup>

**Amostra -  $YBa_{1.5}Sr_{0.5}Cu_3O_{7-\delta}$  -  $McSr05$ ;  $H // c$**



**Fig. 6.34** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McSr05$ ;  $H // c$ .

**Amostra -  $YBa_{1.5}Sr_{0.5}Cu_3O_{7-\delta}$  -  $McSr05$ ;  $H // ab$**



**Fig. 6.35** - Curvas de magnetização  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  ("insets" das figuras) e suas respectivas diferenças plotadas nas curvas de  $\Delta M(T)$  para a amostra  $McSr05$ ;  $H // ab$ .

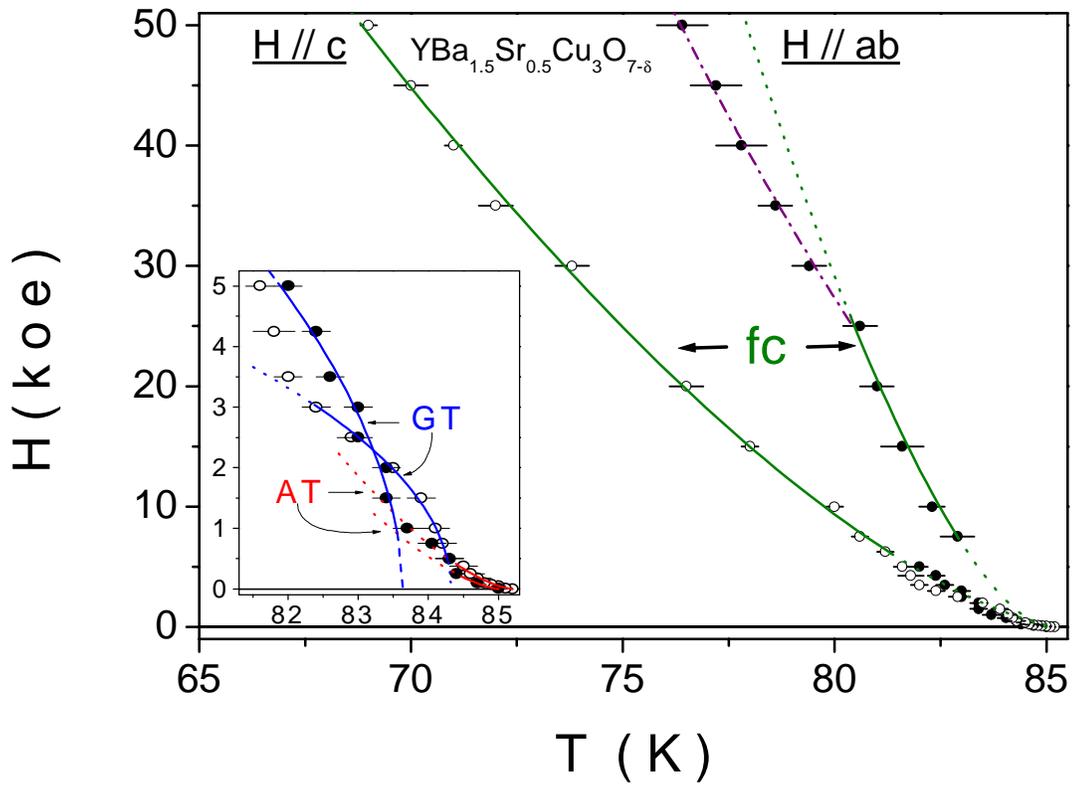
**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Curvas de Magnetização DC e Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b>YBa<sub>1.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McSr05; H // c</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.003	85.20 ± 0.10
2	0.01	85.10 ± 0.10
3	0.05	85.00 ± 0.10
4	0.075	84.90 ± 0.10
5	0.1	84.80 ± 0.10
6	0.175	84.70 ± 0.20
7	0.25	84.60 ± 0.20
8	0.375	84.50 ± 0.20
9	0.5	84.30 ± 0.20
10	0.75	84.20 ± 0.20
11	1	84.10 ± 0.20
12	1.5	83.90 ± 0.20
13	2	83.50 ± 0.10
14	2.5	82.90 ± 0.20
15	3	82.40 ± 0.20
16	3.5	82.00 ± 0.20
17	4.25	81.80 ± 0.30
18	5	81.60 ± 0.20
19	6.25	81.20 ± 0.20
20	7.5	80.60 ± 0.20
21	10	80.00 ± 0.20
22	15	78.00 ± 0.20
23	20	76.50 ± 0.40
24	30	73.80 ± 0.40
25	35	72.00 ± 0.40
26	40	71.00 ± 0.20
27	45	70.00 ± 0.40
28	50	69.00 ± 0.20

**Tab. 6.22** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr05; H // c.

<b>YBa<sub>1.5</sub>Sr<sub>0.5</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b> <b>McSr05; H // ab</b>		
<b>Pto.</b>	<b>H (kOe)</b>	<b>T<sub>irr</sub>(H) (K)</b>
1	0.01	85.00 ± 0.10
2	0.1	84.70 ± 0.10
3	0.25	84.40 ± 0.10
4	0.5	84.30 ± 0.20
5	0.75	84.05 ± 0.20
6	1	83.70 ± 0.20
7	1.5	83.40 ± 0.20
8	2	83.40 ± 0.20
9	2.5	83.00 ± 0.20
10	3	83.00 ± 0.20
11	3.5	82.60 ± 0.20
12	4.25	82.40 ± 0.20
13	5	82.00 ± 0.20
14	7.5	82.90 ± 0.40
15	10	82.30 ± 0.30
16	15	81.60 ± 0.50
17	20	81.00 ± 0.40
18	25	80.60 ± 0.40
19	30	79.40 ± 0.40
20	35	78.60 ± 0.40
21	40	77.80 ± 0.60
22	45	77.20 ± 0.60
23	50	76.40 ± 0.60

**Tab. 6.23** - Valores experimentais de T<sub>irr</sub>(H) para a amostra McSr05; H // ab.



**Fig. 6.36** - LIM para a amostra MCSr05. O "inset" destaca os detalhes de baixo campo. As linhas cheias representam ajustes seguindo leis de potência "flux creep" (fc), Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT).<sup>[128, 133]</sup>

### **6.4.3 – LIM em Função das Substituições Químicas**

Nesta seção apresentaremos as LIM obtidas para as nossas amostras em um arranjo diferente do observado nas seções 6.4.1 e 6.4.2. As LIM serão dispostas de maneira que possamos comparar e avaliar a real magnitude dos efeitos causados pela substituição parcial do Ba por Sr ou do Cu por Zn ou Mg no comportamento da LIM do supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

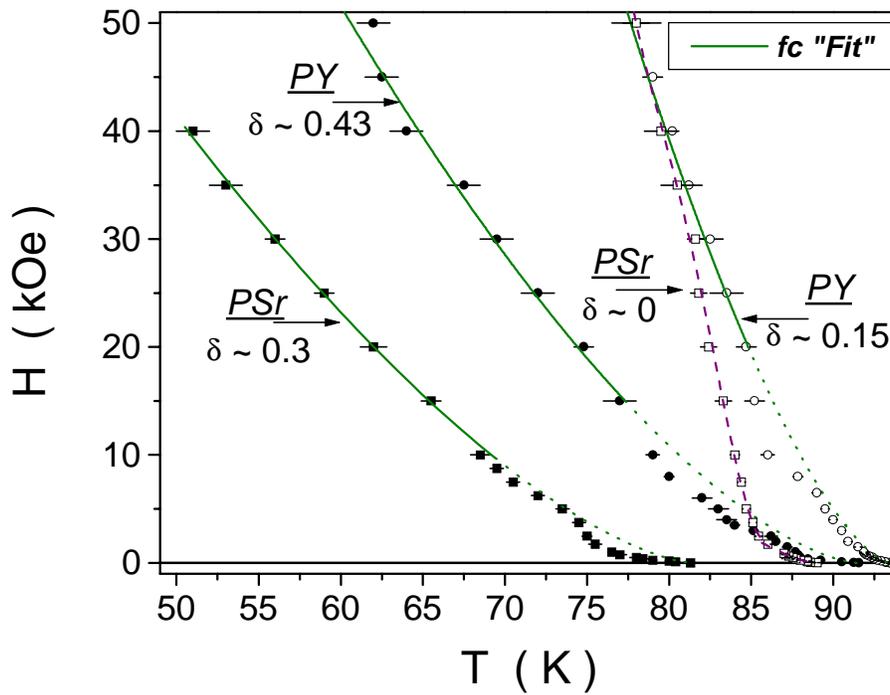
A *fig. 6.37* ilustra o comportamento da LIM para as amostras policristalinas PY e PSr ambas em dois estados de oxigenação distintos definidos pelo símbolo  $\delta$ . A *fig. 6.38* revela os detalhes em baixos campos magnéticos para LIM

As *fig. 6.39* e *6.40* apresentam a disposição das LIM das amostras monocristalinas onde o Cu foi substituído parcialmente por 1 % de Zn ou Mg comparadas com o monocristal MCY1 para  $H // ab$ . É importante lembrar que os MCZnA e MCZnB apresentam diferente estequiometria de oxigênio. A *fig. 6.39* destaca o comportamento das LIM na região de altos campos magnéticos ao passo que a *fig. 6.40* se detem a região de baixos campos magnéticos. Por outro lado, às *fig. 6.41* e *6.42* mostram o comportamento da LIM nessas mesmas amostras para  $H // c$ .

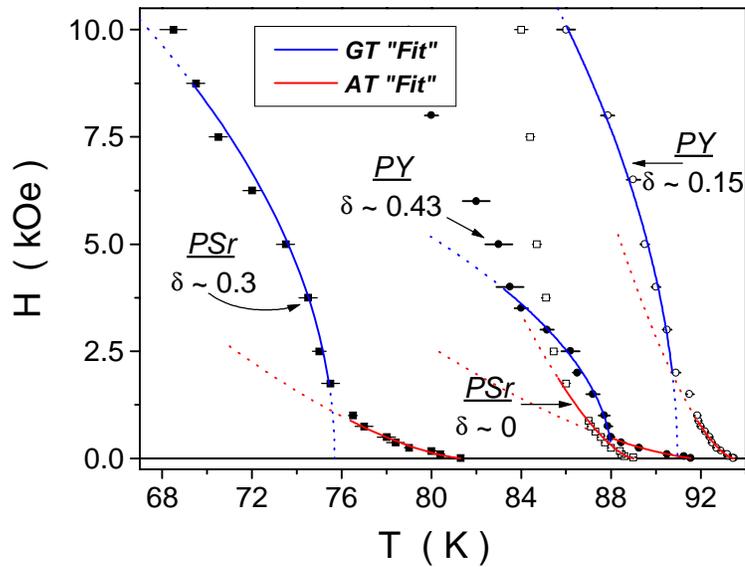
Nas *fig. 6.43* a *6.46* são apresentadas as LIM referentes as amostras monocristalinas onde até 25 % do Ba foi substituído parcialmente por Sr juntamente com as LIM obtidas para o monocristal MCY1. As *fig. 6.43* e *6.45* apresentam o comportamento da LIM obtida na região de altos campos para  $H // ab$  e  $H // c$  respectivamente. Da mesma forma, às *fig. 6.44* à *6.46* apresentam o comportamento da LIM para a região de baixos campos magnéticos. Na *fig. 6.43*, chamamos a atenção ao forte desvio do comportamento  $fc$  apresentado pelos dados de  $T_{irr}(H)$  quando  $H // ab$ .

A análise e a discussão destes resultados será realizada, em detalhes, nas seções 6.5.e 6.6.

*LIM - Amostras Policristalinas*



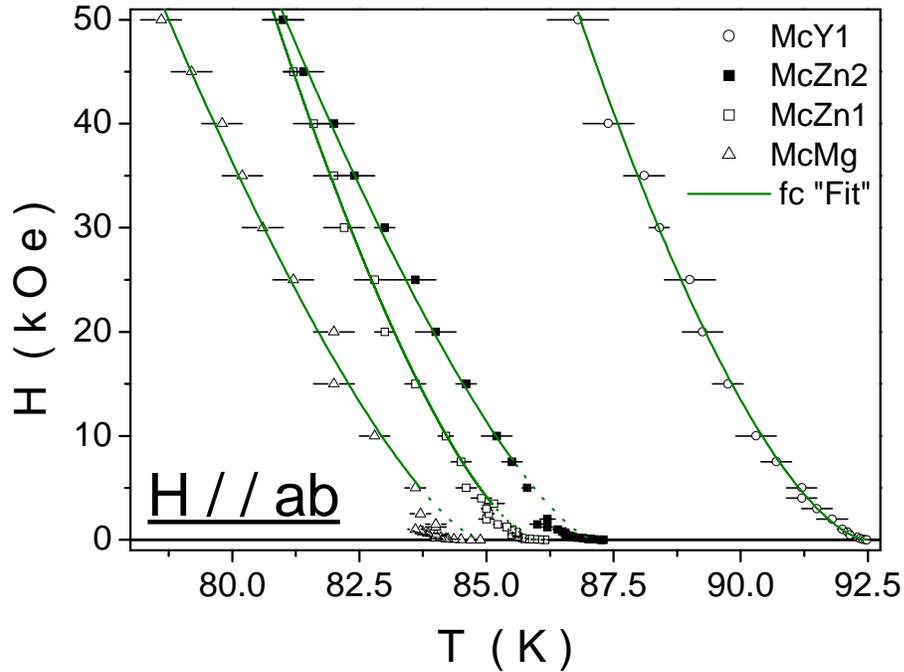
**Fig. 6.37** – LIM para as amostras policristalinas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro e parcialmente dopado com Sr para dois diferentes estados de oxigenação. As linhas cheias representam um ajuste com a funcionalidade *fc*.



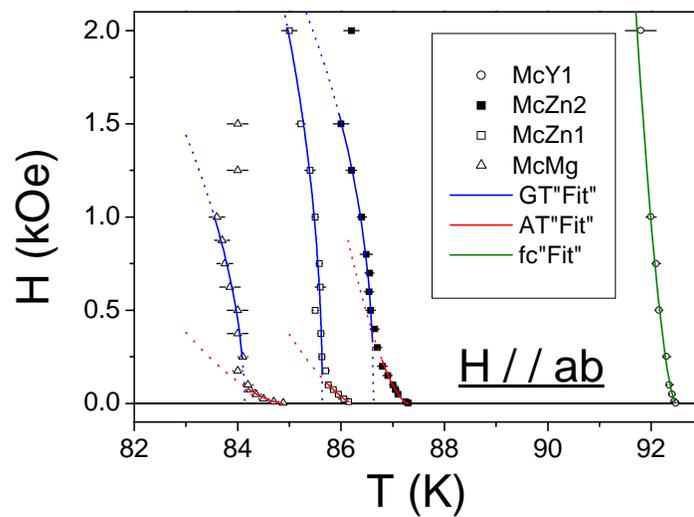
**Fig. 6.38** - Detalhes de baixo campo para LIM da fig. 6.37. As linhas cheias representam ajustes com as funcionalidades *AT* e *GT*.

**LIM - Amostras Monocristalinas**

$YBa_2Cu_{2.97}M_{0.03}O_{7-\delta}$ ; ( $M = Zn$  ou  $Mg$ );  $H // ab$

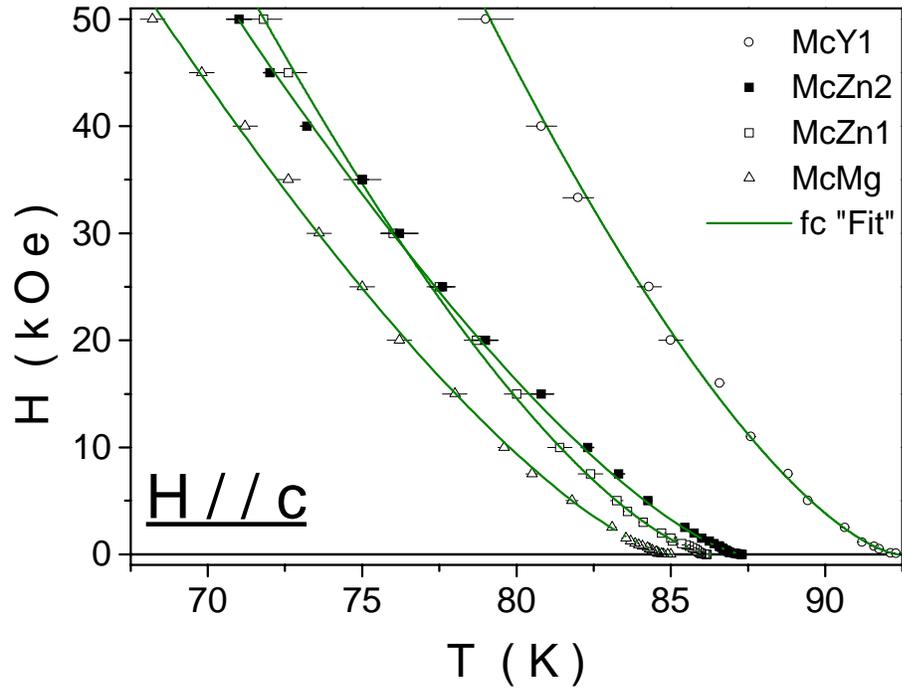


**Fig. 6.39** – LIM para as amostras monocristalinas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro e parcialmente dopado com 1 % de Mg ou Zn quando  $H // ab$ . As linhas cheias representam um ajuste com a funcionalidade  $fc$ .

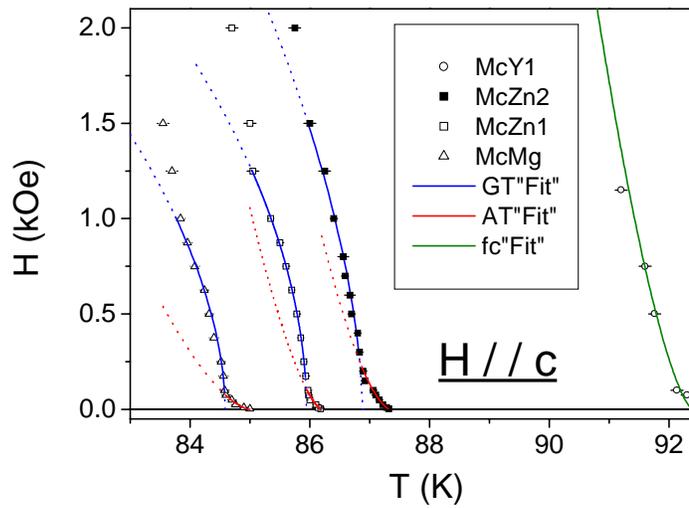


**Fig. 6.40** – Detalhes de baixo campo para LIM da fig. 6.39. As linhas cheias representam ajustes com as funcionalidades  $AT$  e  $GT$ .

**LIM - Amostras Monocristalinas**



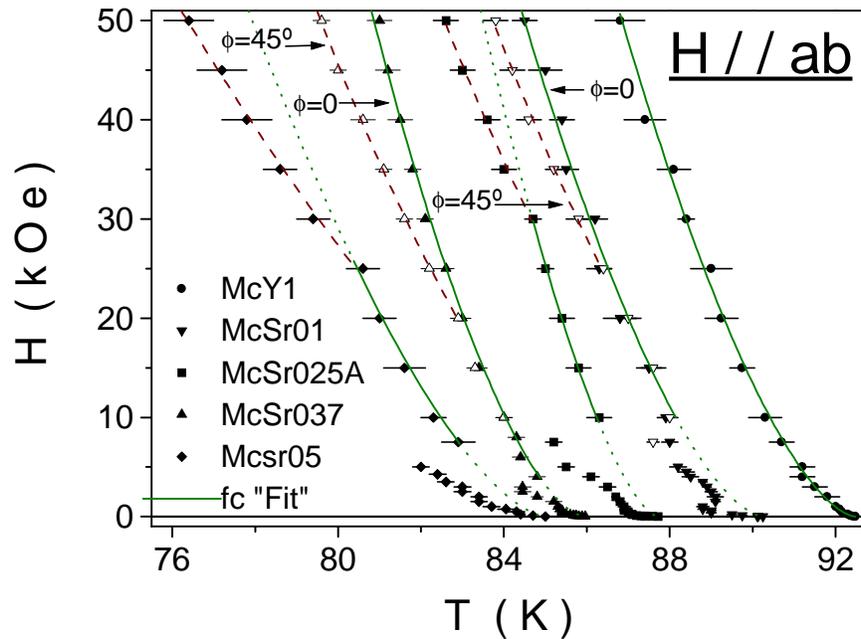
**Fig. 6.41** – LIM para as amostras monocristalinas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro e parcialmente dopado com 1 % de Mg ou Zn quando  $H // c$ . As linhas cheias representam um ajuste com a funcionalidade  $fc$ .



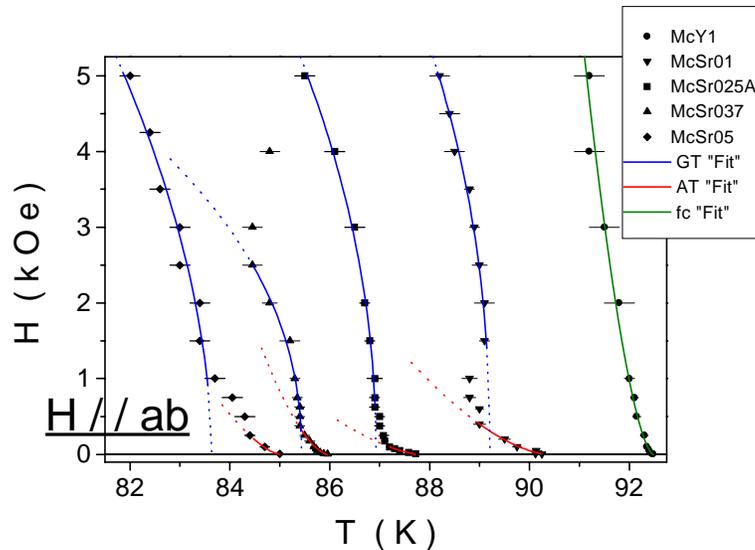
**Fig. 6.42** – Detalhes de baixo campo para LIM da fig. 6.41. As linhas cheias representam ajustes com as funcionalidades AT e GT.

**LIM - Amostras Monocristalinas**

$YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ ; ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ );  $H // ab$



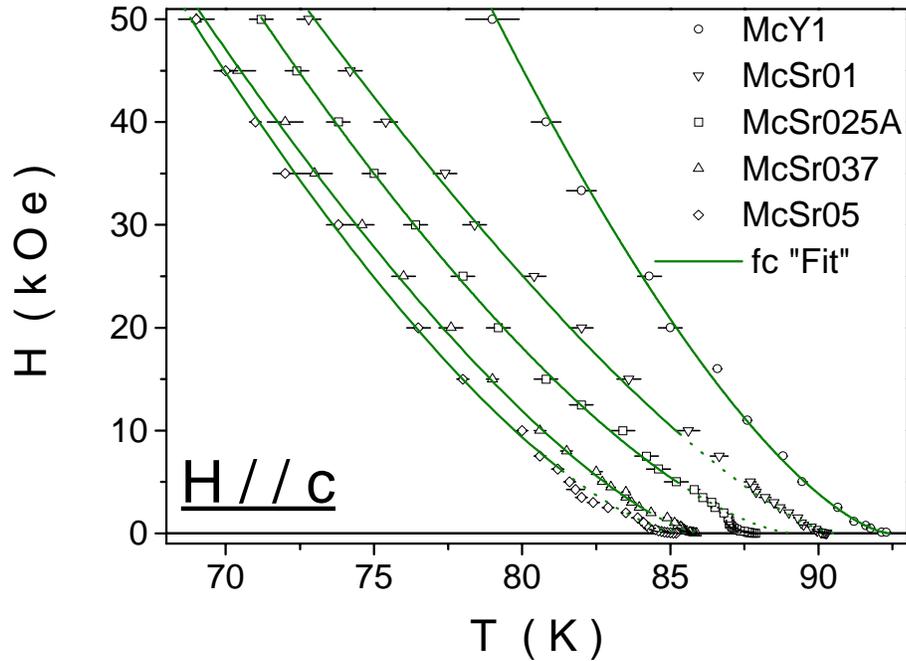
**Fig. 6.43** – LIM para as amostras  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37, 0.5$ ) quando  $H // ab$ . As linhas cheias representam o ajuste fc. As linhas pontilhadas são extrapolações deste ajuste.  $\phi$  representa a direção dos PMCs em relação a  $H$ . As linhas tracejadas são guias de olho.



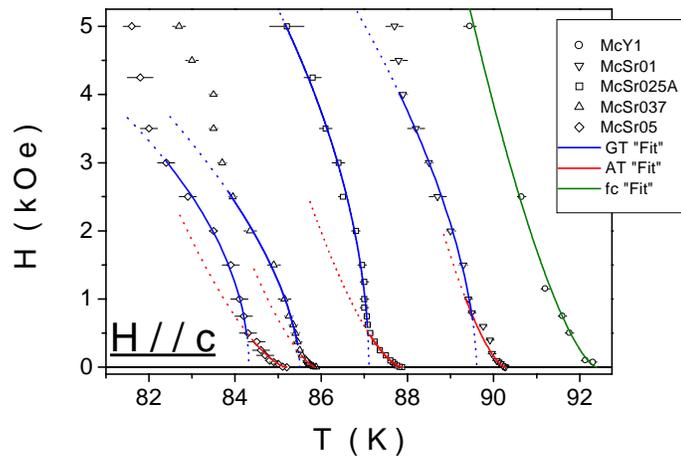
**Fig. 6.44** – Detalhes de baixo campo para LIM da fig. 6.43. As linhas cheias representam ajustes com as funcionalidades AT e GT.

**LIM - Amostras Monocristalinas**

$YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ ; ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ );  $H // c$



**Fig. 6.45** – LIM para as amostras amostras  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37, 0.5$ ) quando  $H // c$ . As linhas cheias representam um ajuste com a funcionalidade *fc*.



**Fig. 6.46** – Detalhes de baixo campo para LIM da fig. 6.45. As linhas cheias representam ajustes com as funcionalidades *AT* e *GT*.

### **6.5 – Análise dos Resultados**

Os resultados experimentais apresentados nas seções 6.4.1, 6.4.2 e 6.4.3 revelam que a disposição dos dados de  $T_{irr}(H)$  tanto para  $H // ab$  como  $H // c$  no monocristal MCY1 obedecem a uma lei de potências do tipo prevista pela teoria de "flux creep" gigante, eq. (3.9):

$$H(T) = H_0^{fc} (1 - t^{fc})^{\alpha_{fc}} \quad (6.1)$$

onde  $t^{fc} = T_{irr}^{fc}(H) / T_{irr}^{fc}(H = 0)$  é a temperatura reduzida. Os fatores  $H_0^{fc}$ ,  $\alpha_{fc}$  e  $T_{irr}^{fc}(0)$  são aqui vistos como parâmetros de ajuste. A *fig. 6.10* mostra que o nosso ajuste realizado com a eq. (6.1) é bom em toda a região de campo. A *tab. 6.25* mostra que a funcionalidade ajustada praticamente coincide com a lei de potências da eq. (3.9).

Por outro lado, a eq. (6.1) também é empregada no ajuste dos dados de  $T_{irr}(H)$  das amostras policristalinas PSr- $\delta = 0.3$ , PY- $\delta = 0.15$  e PY- $\delta = 0.43$  (*fig. 6.37*) e das amostras monocristalinas dopadas com Sr, Zn ou Mg (*fig. 6.39, 6.41, 6.43 e 6.45*), consulte a *tab. 6.25*. Conforme mostram estas figuras, este ajuste somente descreve o comportamento dos dados de  $T_{irr}(H)$  em valores de campo magnético iguais ou superiores à 10 kOe nas amostras policristalinas, com exceção da amostra PSr- $\delta \approx 0$ , iguais ou superiores à 4 kOe ( $H // ab$ ) e 2.5 kOe ( $H // c$ ) nos monocristais dopados com Zn e Mg e iguais ou superiores à 5 kOe ( $H // ab$ ) e 4 kOe ( $H // c$ ) nos monocristais dopados com Sr.

Quando os valores de campo magnético aplicado forem inferiores a estes limites, percebemos, claramente, que os dados de  $T_{irr}(H)$  nestas amostras se afastam sistematicamente do ajuste de alto campo e portanto não seguem a funcionalidade prevista pela teoria de "flux creep" gigante.<sup>[64]</sup> Este comportamento dos dados de  $T_{irr}(H)$ , em baixos campos magnéticos demonstra a existência de uma dinâmica de fluxo magnético distinta da observada em altos campos magnéticos.

Às *fig. 6.5, 6.8, 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36* apresentam, em detalhes, o comportamento da LIM na região de baixos campos magnéticos para cada uma dessas amostras. Observamos que na região de campos magnéticos mais baixos, os dados de  $T_{irr}(H)$  são bem ajustados pela lei de potências do tipo  $AT$ , eq. (3.16). No ajuste da lei de potência  $AT$  aos dados de  $T_{irr}(H)$  usamos a eq. (6.2):

$$H(T) = H_0^{AT} (1 - t^{AT})^{\alpha_{AT}} \quad (6.2)$$

onde  $t^{AT} = T_{irr}^{AT}(H) / T_{irr}^{AT}(H = 0)$  é a temperatura reduzida. Os termos  $H_0^{AT}$ ,  $\alpha_{AT}$  e  $T_{irr}^{AT}(0)$  são parâmetros de ajuste. A eq. (6.2) ajusta, com boa precisão, os dados de  $T_{irr}(H)$  das amostras policristalinas até  $H \approx 1$  kOe (*fig. 6.38*), até  $H = 0.175$  kOe para

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

$H // ab$  (fig. 6.40) e até  $H = 0.1$  kOe para  $H // c$  (fig. 6.42) nas amostras monocristalinas dopadas com Zn e Mg e até  $H = 0.375$  kOe para  $H // ab$  (fig. 6.44) e até  $H = 0.5$  kOe para  $H // c$  (fig. 6.46) nas amostras monocristalinas dopadas com Sr.

É importante chamar atenção ao fato de que as eqs. (6.1) e (6.2) apresentam formas analíticas idênticas entretanto, concluiremos na próxima seção que suas interpretações, do ponto de vista físico, são completamente diferentes.

À medida em que os valores de campo magnético aplicado superam os valores previstos pelo ajuste  $AT$ , notamos que a  $T_{irr}(H)$  subitamente muda de funcionalidade encurvando-se no sentido oposto à linha  $AT$ , veja às figs. 6.5, 6.8, 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36. Nesta região verificou-se que os dados de  $T_{irr}(H)$  seguem muito proximamente uma lei de potência com expoente  $1/2$ , do tipo Gabay-Toulouse ( $GT$ ), eq. (3.17). Nos ajustes feitos aos nossos dados de  $T_{irr}(H)$  nesta região, empregamos esta lei de potência na forma:

$$H(T) = H_0^{GT} (1 - t^{GT})^{\alpha_{GT}} \quad (6.3)$$

onde  $t^{GT} = T_{irr}^{GT}(H) / T_{irr}^{GT}(H = 0)$  é a temperatura reduzida e  $H_0^{GT}$ ,  $\alpha_{GT}$  e  $T_{irr}^{GT}(0)$  são parâmetros de ajuste.

Segundo as fig. 6.38, 6.40, 6.42, 6.44 e 6.46, o ajuste  $GT$  é aplicado com boa precisão aos dados de  $T_{irr}(H)$  situados entre  $10 \text{ kOe} \geq H \geq 0.5 \text{ kOe}$  nas amostras policristalinas (fig. 6.38), entre  $2 \text{ kOe} \geq H \geq 0.25 \text{ kOe}$  para  $H // ab$  (fig. 6.40) e entre  $1.5 \text{ kOe} \geq H \geq 0.1 \text{ kOe}$  para  $H // c$  (fig. 6.42) nas amostras monocristalinas dopadas com Zn e Mg e entre  $5 \text{ kOe} \geq H \geq 0.25 \text{ kOe}$  para  $H // ab$  (fig. 6.44) e  $H // c$  (fig. 6.46) nas amostras monocristalinas dopadas com Sr.

A reprodutividade dos comportamentos  $AT$ - $GT$  em baixos campos e do comportamento  $fc$  para a região de altos campos na LIM de nossos supercondutores granulares encontram-se respaldados na boa precisão experimental (margem de erro pequena) apresentada pelos valores dos parâmetros de ajuste  $H_0$ ,  $\alpha$  e  $T_{irr}(0)$  das eq. (6.1), (6.2) e (6.3). Especialmente relevante é o fato do expoente  $\alpha$  diferir muito pouco, dentro do erro experimental, do valor previsto para este parâmetro pelos modelos teóricos, conforme mostra a tab. 6.24 para as amostras policristalinas e a tab. 6.25 para as amostras monocristalinas.

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b><i>Amostras Policristalinas</i></b>	<b><i>Fit</i></b>	<b><i><math>\alpha</math></i></b>	<b><i><math>H_0</math> (k Oe)</i></b>	<b><i><math>T_{irr}(0)</math> (K)</i></b>
<b><u>PSr; <math>\delta \approx 0</math></u></b>	<i>AT</i>	$1.49 \pm 0.20$	$245 \pm 30$	$89.01 \pm 0.22$
	<i>Fc</i>	$1.51 \pm 0.10$	$174 \pm 35$	$81.50 \pm 0.11$
<b><u>PSr; <math>\delta \approx 0.3</math></u></b>	<i>GT</i>	$0.51 \pm 0.05$	$30 \pm 4$	$75.70 \pm 0.09$
	<i>AT</i>	$1.51 \pm 0.05$	$57 \pm 7$	$81.40 \pm 0.53$
	<i>Fc</i>	$1.52 \pm 0.13$	$744 \pm 161$	$93.49 \pm 0.57$
<b><u>PY; <math>\delta \approx 0.15</math></u></b>	<i>GT</i>	$0.53 \pm 0.09$	$48 \pm 8$	$90.97 \pm 0.31$
	<i>AT</i>	$1.55 \pm 0.16$	$463 \pm 80$	$93.49 \pm 0.06$
	<i>Fc</i>	$1.55 \pm 0.15$	$269 \pm 38$	$91.55 \pm 0.36$
<b><u>PY; <math>\delta \approx 0.43</math></u></b>	<i>GT</i>	$0.52 \pm 0.07$	$18 \pm 3$	$88.03 \pm 0.16$
	<i>AT</i>	$1.52 \pm 0.17$	$58 \pm 6$	$91.90 \pm 0.40$

**Tab. 6.24** – Valores para os parâmetros de ajuste  $\alpha$ ,  $H_0$  e  $T_{irr}(0)$  para os regimes *fc*, *AT* e *GT* nas amostras policristalinas

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

<b><i>Monocristais</i></b>		<b><i>H // c</i></b>			<b><i>H // ab</i></b>		
<b><i>Amostras</i></b>	<b><i>Fit</i></b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>H_0</math> (k Oe)</b>	<b><math>T_{irr}(0)</math> (K)</b>	<b><math>\alpha</math></b>	<b><math>H_0</math> (k Oe)</b>	<b><math>T_{irr}(0)</math> (K)</b>
<b><u>McY1</u></b>	<i>fc</i>	1.50 ± 0.05	821 ± 82	92.70 ± 0.07	1.60 ± 0.12	4402 ± 200	92.48 ± 0.05
	<i>fc</i>	1.48 ± 0.06	702 ± 62	86.30 ± 0.28	1.52 ± 0.12	3614 ± 475	86.00 ± 0.18
<b><u>McZnA</u></b>	<i>GT</i>	0.52 ± 0.02	13 ± 2	85.94 ± 0.02	0.48 ± 0.13	21 ± 5	85.64 ± 0.07
	<i>AT</i>	1.49 ± 0.14	617 ± 90	86.20 ± 0.01	1.52 ± 0.19	140 ± 19	86.24 ± 0.02
	<i>fc</i>	1.40 ± 0.13	522 ± 91	87.32 ± 0.08	1.40 ± 0.16	2088 ± 357	87.10 ± 0.15
<b><u>McZnB</u></b>	<i>GT</i>	0.60 ± 0.09	23 ± 6	86.88 ± 0.06	0.45 ± 0.11	14 ± 3	86.63 ± 0.09
	<i>AT</i>	1.60 ± 0.12	934 ± 152	87.35 ± 0.01	1.60 ± 0.19	873 ± 37	87.30 ± 0.01
	<i>fc</i>	1.40 ± 0.10	501 ± 66	85.00 ± 0.62	1.40 ± 0.17	1979 ± 320	84.88 ± 0.67
<b><u>McMg</u></b>	<i>GT</i>	0.55 ± 0.08	12 ± 2	84.59 ± 0.04	0.55 ± 0.09	15 ± 2	84.14 ± 0.12
	<i>AT</i>	1.55 ± 0.11	297 ± 29	85.00 ± 0.03	1.55 ± 0.12	139 ± 12	84.88 ± 0.06
	<i>fc</i>	1.35 ± 0.23	459 ± 90	90.50 ± 0.84	1.60 ± 0.20	4087 ± 500	90.25 ± 0.68
<b><u>McSr01</u></b>	<i>GT</i>	0.60 ± 0.12	42 ± 7	89.61 ± 0.09	0.45 ± 0.11	37 ± 4	89.21 ± 0.18
	<i>AT</i>	1.51 ± 0.06	1010 ± 198	90.28 ± 0.01	1.6 ± 0.12	328 ± 40	90.36 ± 0.09
	<i>fc</i>	1.51 ± 0.05	565 ± 98	89.11 ± 0.54	1.53 ± 0.15	5210 ± 600	87.72 ± 0.58
<b><u>McSr025A</u></b>	<i>GT</i>	0.52 ± 0.07	36 ± 2	87.10 ± 0.08	0.48 ± 0.06	37 ± 4	86.93 ± 0.05
	<i>AT</i>	1.50 ± 0.15	622 ± 58	87.92 ± 0.53	1.52 ± 0.08	191 ± 19	87.80 ± 0.08
	<i>fc</i>	1.50 ± 0.09	464 ± 44	89.46 ± 0.66	1.60 ± 0.20	4163 ± 51	87.70 ± 0.48
<b><u>McSr025B</u></b>	<i>GT</i>	0.52 ± 0.05	26 ± 2	87.15 ± 0.06	0.55 ± 0.10	55 ± 5	86.53 ± 0.06
	<i>AT</i>	1.52 ± 0.10	661 ± 45	87.88 ± 0.01	1.52 ± 0.15	303 ± 30	87.71 ± 0.05
	<i>fc</i>	1.40 ± 0.12	496 ± 56	86.00 ± 0.53	1.65 ± 0.17	5292 ± 600	85.96 ± 0.39
<b><u>McSr037</u></b>	<i>GT</i>	0.60 ± 0.15	27 ± 2	85.51 ± 0.06	0.45 ± 0.11	19 ± 2	85.44 ± 0.09
	<i>AT</i>	1.45 ± 0.18	539 ± 50	85.88 ± 0.01	1.60 ± 0.12	1114 ± 111	85.96 ± 0.24
	<i>fc</i>	1.50 ± 0.08	466 ± 40	85.20 ± 0.06	1.48 ± 0.10	2419 ± 292	85.00 ± 0.98
<b><u>McSr05</u></b>	<i>GT</i>	0.50 ± 0.05	20 ± 4	84.32 ± 0.08	0.55 ± 0.07	42 ± 4	83.64 ± 0.37
	<i>AT</i>	1.51 ± 0.03	584 ± 14	85.43 ± 0.24	1.48 ± 0.05	379 ± 60	85.00 ± 0.06

**Tab. 6.25** – Valores para os parâmetros de ajuste  $\alpha$ ,  $H_0$  e  $T_{irr}(0)$  para os regimes *fc*, *AT* e *GT* nas amostras monocristalinas para  $H // ab$  e  $H // c$ .

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

As LIM para as amostras monocristalinas exibem uma forte anisotropia planar (eixo  $c$  / plano  $ab$ ). Particularmente, para os monocristais dopados, devemos observar que na região de baixos campos magnéticos (região  $AT-GT$ ), esta anisotropia é sistematicamente inversa (plano  $ab$  / eixo  $c$ ) àquela observada na região de altos campos, veja o "inset" das figs. 6.13, 6.16, 6.19, 6.23, 6.26, 6.29, 6.33 e 6.36. Se levássemos em consideração a correção do fator desmagnetizante, obteríamos uma anisotropia ainda maior em baixos campos.

Na região intermediária entre as regiões de alto campo magnético (*ajuste  $fc$* ) e baixo campo magnético (*ajustes  $AT-GT$* ) do diagrama  $H-T$ , para  $H // ab$ , das figs. 6.39 e 6.43, notamos que os dados de  $T_{irr}(H)$  nos monocristais dopados exibem um repentino aumento na eficácia dos seus mecanismos de "pinning". Este comportamento se verifica com a elevação do valor de  $H$ . O efeito ocorre de maneira mais intensa nos monocristais dopados com Sr (fig. 6.43) do que nos dopados com Zn e Mg (fig. 6.39), ao passo que quando temos  $H // c$ , notamos que esta passagem dos regimes de baixo campo magnético ( $AT-GT$ ) para os de alto campo ( $fc$ ) ocorre de maneira mais suave tanto para os monocristais dopados quanto para as amostras policristalinas.

Nas amostras onde o comportamento da LIM foi pesquisado em função da concentração de oxigênio (PY015, PY043, PSr, PSr03, MCZnA e MCZn) percebe-se que a retirada de oxigênio, segundo processo descrito na seção 5.2.3, faz com que se confirme o regime  $AT$  e se definam os regimes  $GT$  e  $fc$  na amostra PSr -  $\delta \approx 0.43$ . Na amostra PY a retirada de oxigênio diminui claramente a inclinação dos ajustes  $AT$ ,  $GT$  e  $fc$  mostrando que o parâmetro de ajuste  $H_0$ , nesses regimes, depende fortemente do conteúdo de oxigênio. Por outro lado, na região de altos campos magnéticos a amostra MCZnA exhibe, para  $H // c$  e  $H // ab$ , inclinações mais suaves para a LIM quando comparadas àquela da amostra MCZnB. Contudo, na amostra MCZnA os valores do parâmetro de ajuste  $H_0$  para os regimes  $AT$  e  $GT$ , na região dominada pela dinâmica de fluxo intergranular de Josephson, são menores do que os obtidos na amostra MCZnB. Para maiores detalhes, veja as tab. 6.24 e 6.25.

Um dos efeitos devidos à substituição parcial do Ba por Sr nos monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é a observação do aumento da quantidade de maclas. No cap. 5, apresentamos imagens das superfícies (plano  $ab$ ) dos monocristais MCSr025A e MCSr05 as quais evidenciam micro regiões densamente macladas ortogonalmente entre si (planos de maclas, PMCs).

A fig. 6.43 apresenta as LIMs obtidas para os monocristais dopados com Sr. Particularmente, estamos interessados em destacar o comportamento dos dados de  $T_{irr}(H)$ , para  $H // ab$ , na região de altos campos magnéticos,  $H > 5$  kOe, sendo que este valor de  $H$  pode variar de amostra para amostra. Nas amostras MCSr025A, MCSr025B e MCSr05 não foi levado em consideração o alinhamento dos PMCs em relação ao campo magnético aplicado na determinação dos valores de  $T_{irr}(H)$ . Em virtude disso, constata-se que o *ajuste  $fc$*  não é aplicável à toda extensão dos dados de  $T_{irr}(H)$  localizados na região de altos campos dessas amostras, mais precisamente, ele é aplicável para valores de  $H$  compreendidos entre  $7.5 \text{ kOe} \leq H \leq 25 \text{ kOe}$  para o MCSr05 e  $8 \text{ kOe} \leq H \leq 30 \text{ kOe}$  para a amostra MCSr025A (linhas cheias na fig. 6.43). Para valores de  $H$  fora destas faixas, os dados de  $T_{irr}(H)$  desviam sistematicamente do *ajuste  $fc$*  (linhas tracejadas da fig. 6.43) sugerindo assim, que os

## **Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

pontos de  $T_{irr}(H)$ , e conseqüentemente a LIM, apresentem um comportamento dependente da orientação dos PMCs.

Com o objetivo de esclarecer a questão do parágrafo anterior, selecionamos as amostras MCSr01 e MCSr037 as quais, particularizam-se por apresentarem monodomínios de maclas e estudamos o comportamento do limite de irreversibilidade,  $T_{irr}(H)$  em função do alinhamento dos PMCs em relação a aplicação de campo magnético

ao longo do plano  $ab$ . Os efeitos produzidos pelo alinhamento ou não dos PMCs em relação à  $H$ , nas amostras MCSr01 e MCSr037 são mostrados pelas *figs.* 6.22 e 6.32. Nessas figuras, curvas de  $M_{ZFC}(T)$  e  $M_{FC}(T)$  juntamente com suas respectivas diferenças,  $\Delta M(T)$  foram obtidas para  $\phi = 0$  e  $45^\circ$ . Quando  $\phi = 0$ , os valores obtidos para  $T_{irr}(H)$  são maiores do que os obtidos para  $\phi = 45^\circ$  para um mesmo valor de campo magnético aplicado.

De acordo com as *fig.* 6.23, 6.33 e 6.43, os valores do "matching field",  $H_M$ , ou seja, os valores de campo tais que há um vórtice para cada defeito colunar a partir dos quais os pontos de  $T_{irr}(H)$  passam a desviar do *ajuste fc*, são respectivamente,  $H_M = 25$  kOe para o MCSr01 e  $H_M = 20$  kOe para o MCSr037. Para valores de campo inferiores a  $H_M$ , notamos que o efeito devido à orientação dos PMCs em relação a  $H$  (símbolos abertos e fechados nas *fig.* 6.23, 6.33 e 6.43 para  $H < H_M$ ) tornam-se coletivos ou seja, isotrópicos.

Quando tivermos  $\phi = 0$  ( $H // ab //$  PMCs), constatamos que a lei de potências da eq. (6.1) descreve o comportamento dos pontos experimentais de  $T_{irr}(H)$  (símbolos fechados na *fig.* 6.43) da amostra MCSr037 no intervalo entre  $4 \text{ kOe} \leq H \leq 50 \text{ kOe}$  e  $10 \text{ kOe} \leq H \leq 50 \text{ kOe}$  para o monocristal de MCSr01. Por outro lado, para  $\phi = 45^\circ$ , vemos que os dados de  $T_{irr}(H)$  apresentam um forte desvio da lei de potências da eq. (6.1) para valores de  $T$  menores (linhas tracejadas) após atingido o valor de  $H_M$ .

### **6.6 – Discussão dos Resultados**

A discussão será centrada em três itens. O primeiro relacionado às dinâmicas de fluxo de Josephson e Abrikosov, o segundo relacionado aos efeitos causados pelas substituições químicas à LIM do  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  e o terceiro trata dos efeitos direcionais de "pinning" na LIM dos monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .

#### **6.6.1 – A LIM como Limite de Irreversibilidade nas Dinâmicas do Fluxo de Josephson e de Abrikosov**

O estudo da LIM nos HTSC além de fornecer o limite extremo da existência de corrente crítica, funciona como uma importante ferramenta para entender a dinâmica de fluxo nesses materiais.

Nos HTSC homogêneos o comportamento da LIM pode ser descrito em toda a extensão do diagrama  $H-T$  pela teoria de "flux creep" gigante.<sup>[64]</sup> Nossos resultados para a LIM do monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (MCY1) seguem em toda a região a lei de potências prevista pela teoria de "flux creep" gigante.

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

Os dados experimentais de  $T_{irr}(H)$  das amostras supercondutoras inhomogêneas monocristalinas e policristalinas seguem esta lei de potência somente na região de altos campos magnéticos. Numa região de baixo campo, os dados de  $T_{irr}(H)$  divergem sistematicamente desta lei de potências. Abaixo de 1 kOe estes dados são bem descritos pela lei de potências de Almeida-Thouless (*AT*) e numa região de campos intermediários seguem a lei de potências de Gabay-Toulouse (*GT*), veja as *figs. 6.37 a 6.44*.

É importante ressaltar que o comportamento da LIM observado em nossas amostras não se apresenta de forma isolada na literatura. Outros estudos detalhados de irreversibilidade magnética realizados em monocristais de  $\text{Bi}_{2.2-x}\text{Pb}_x\text{Sr}_{1.8}\text{CaCu}_2\text{O}_y$ ,<sup>[134]</sup>  $\text{Bi}_{2.15}\text{Sr}_{1.85}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ ,<sup>[135]</sup> em uma amostra policristalina de  $\text{Hg}_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ ,<sup>[136]</sup> mostram um perfil dos dados de  $T_{irr}(H)$  semelhante aos desse trabalho. Seguem o regime de "flux creep" gigante na região de campos magnéticos elevados e há dois regimes diferentes em baixos campos magnéticos. Recentemente, os dados de  $T_{irr}(H)$  obtidos em monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_4\text{O}_8$ <sup>[137]</sup> em  $H \leq 5$  kOe aplicados ao longo do eixo *c* exibem dois regimes nesta região de campo que são compatíveis com leis de potência do tipo *AT* e *GT*.

Conforme discutido no cap. 3, um supercondutor inhomogêneo (granular) pode ser na sua essência, tratado como um conjunto de grãos supercondutores acoplados via junções Josephson. Sendo assim, a dinâmica de fluxo magnético deve-se essencialmente à contribuição de duas dinâmicas de fluxo: A intragranular (dinâmica de fluxo de Abrikosov) e intergranular (dinâmica de fluxo de Josephson).

A observação de comportamentos distintos em baixos e altos campos da LIM nas amostras inhomogêneas deve-se essencialmente à preponderância de uma ou de outra dessas dinâmicas de fluxo. Na região de baixos campos magnéticos prepondera a dinâmica de fluxo de Josephson (comportamento *AT-GT* para a LIM), enquanto que na região de campos magnéticos mais elevados a dinâmica de Abrikosov predomina (comportamento *fc* para a LIM).

A preponderância da dinâmica de Josephson em baixos campos magnéticos deve-se essencialmente ao fato de que os valores de temperatura de ativação e o campo crítico de penetração dos fluxóides de Josephson,  $H_{c1J}$  entre os espaços intergranulares são menores do que a temperatura de ativação e o campo de penetração  $H_{c1g}$  dos fluxóides de Abrikosov nos grãos.

Na região de baixo campo onde a dinâmica intergranular de Josephson é dominante se verificam os efeitos de frustração, provenientes da aplicação do campo, no acoplamento dos grãos. Sendo assim, o comportamento da LIM, nesta região, pode fornecer muitas informações à respeito da física que governa os sistemas granulares frustrados.

O comportamento *AT-GT*, observado em nossas amostras, para a LIM é um comportamento característico de um sistema que apresenta efeitos de desordem e frustração.<sup>[77]</sup> Desta forma, de todos os modelos, apresentados no cap. 3, os que melhor interpretam o comportamento da LIM nos HTSC, na região de baixo campo, são os de vidro supercondutor<sup>[66]</sup> e de vidro de vórtices.<sup>[67]</sup> Enquanto o modelo de vidro supercondutor ressalta a topologia altamente irregular do parâmetro de ordem supercondutor, a teoria de vidro de vórtices foca os efeitos de "pinning" aleatório e a distorção da rede de linhas de fluxo.

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

No modelo de vidro supercondutor o processo de acoplamento de grãos supercondutores é descrito com o auxílio do Hamiltoniano efetivo:<sup>[138]</sup>

$$H = -2e^2 \sum_{i,j} n_i n_j C_{ij}^{-1} - \sum_{i,j} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij}) \quad (6.4)$$

O primeiro termo à direita da igualdade representa a energia Coulombiana, onde  $C_{ij}$  são os elementos da matriz capacitância e  $n_i(n_j)$  é o número de pares no grão  $i(j)$ . O segundo termo é o termo de acoplamento Josephson, onde  $J_{ij}$  é a energia de acoplamento de fase entre os grãos  $i$  e  $j$  e  $\theta_i - \theta_j$  é a diferença das respectivas fases do parâmetro de ordem GL. Os termos  $n_i$  e  $\theta_j$  são variáveis conjugadas canonicamente as quais satisfazem a regra de comutação  $[n_i, e^{\theta_j}] = \delta_{ij} e^{\theta_j}$  e  $A_{ij}$  são os deslocamentos de fase induzidos pelo campo aplicado entre o grão  $i$  e o grão  $j$ , conforme discutido na seção 3.2.2.3.

Esta equação mostra que o campo aplicado somente desloca a fase do parâmetro de ordem GL ao longo das componentes transversais dos elos fracos. O deslocamento de fase  $\sum A_{ij}$  total ao longo de um contorno fechado de grãos é compelido para  $2\pi f$ , onde  $f$  é um inteiro representando o número total de fluxóides encerrados pelo caminho fechado. O direcionamento aleatório das junções e a conseqüente aleatoriedade dos fatores de fase  $A_{ij}$  juntamente com a multiconectividade dos grãos conduz à acoplamentos conflitantes, tornando a minimização das energias de acoplamento de todas as junções entre grãos impossível de se realizar. Ao congelar-se tal sistema ele se torna frustrado apresentando quebra de ergodicidade. O seu estado é altamente degenerado com um grande número de mínimos de energia quase iguais. Com o aumento do campo magnético aplicado, as distorções aleatórias do fator de fase  $A_{ij}$  debilitam cada vez mais o acoplamento de fase dos grãos e a capacidade do agregado de bloquear o fluxo de vórtices intergranulares. A frustração do acoplamento de grãos e a irreversibilidade magnética em baixos campos magnéticos estão, portanto, intimamente conectadas. Esta é uma das razões para realizar medidas da dinâmica de fluxo e de irreversibilidade magnética em supercondutores granulares, que pode fornecer muita informação sobre fenômenos de desordem de fase e frustração e portanto, sobre os próprios mecanismos de bloqueio de fluxo.

Então, segundo a interpretação do modelo vidro supercondutor, a LIM separa o diagrama de fases em duas regiões distintas. Uma, situada abaixo da LIM onde o parâmetro de ordem supercondutor encontra-se em uma configuração de fases randomicamente congeladas e a dinâmica de fluxo é irreversível. A outra, situada acima da LIM, onde os mecanismos de aprisionamento de fluxo tornam-se ineficazes e a dinâmica de fluxo é reversível.

Por outro lado, a teoria de vidro de vórtices trata os efeitos da distorção da rede de linhas de fluxo, causados pelo “pinning” aleatório na topologia irregular de um supercondutor inhomogêneo, sobre a função de correlação entre as linhas de fluxo e a estabilidade do sistema de vórtices como um todo. Devido a aleatoriedade dos centros de “pinning” nos HTSC, o modelo de vidro de vórtices prediz a ocorrência de

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

uma transição do estado líquido de vórtices para uma fase vidro de vórtices a qual ocorre quando é atingida uma determinada temperatura de “glass”,  $T_G$ . Por outro lado, a fase líquido de vórtices se caracteriza por apresentar um comportamento magneticamente reversível, ao passo que o estado vidro de vórtices particulariza-se por apresentar um comportamento magneticamente irreversível. Ambos os comportamentos são separados por uma linha de congelamento a qual, recebe a denominação de LIM. De fato, o modelo vidro de vórtices também pode ser utilizado como maneira alternativa de descrever um estado supercondutor altamente desordenado e frustrado.

O comportamento  $AT-GT$  na LIM de nossas amostras inhomogêneas pode ser interpretado em analogia com as LIM de sistemas magnéticos desordenados e frustrados, como por exemplo o sistema vidro de spin Cu-Mn.<sup>[77]</sup> A ocorrência de um comportamento  $GT-AT$  no diagrama  $H-T$  de sistemas vidro de spin deve-se ao congelamento independente e sucessivo dos graus de liberdade de transversais e longitudinais à direção do campo magnético aplicado. O congelamento das componentes transversais dos momentos magnéticos é descrito segundo uma linha  $GT$  e, em geral, é associada a efeitos irreversíveis fracos. Por outro lado, o congelamento da componente longitudinal do spin é denotado pela linha  $AT$  e resulta em fortes irreversibilidades no comportamento magnético do sistema.

De acordo com o Hamiltoniano generalizado de tunelamento de pares, eq. (3.13), a frustração que, como nos vidros de spin, está associada a desordem, é introduzida tanto via constante de acoplamento  $J_{ij}$ , que em baixos campos pode ser aleatoriamente (+) ou (-), quanto pelos fatores de fase  $A_{ij}$ . Em baixos campos magnéticos aplicados a aleatoriedade (+) e (-) da constante de acoplamento  $J_{ij}$  deve ser dominante, introduzindo uma anisotropia local aleatória análoga àquela devida a campos de anisotropia aleatórios nos vidros de spin e que induz localmente um caráter tipo Ising.<sup>[139]</sup> Isto quer dizer que o comportamento do spin (vórtice) envolve apenas a componente longitudinal. Por isso, somente esta pode se estabilizar, resultando no comportamento  $AT$  para a LIM.

Em campos mais fortes estas anisotropias locais são quebradas e o comportamento passa a ter uma dimensionalidade maior do que uma dimensão (1D) e o Hamiltoniano de Josephson que descreve o sistema é do tipo previsto pela eq. 3.13 o qual, pertence a classe 3D-XY.

Então, segundo a analogia entre os sistemas vidro de spin e supercondutores granulares diríamos que o aparecimento de irreversibilidades magnéticas num sistema de grãos supercondutores está ligado à formação de estruturas frustradas que são constituídas por anéis de grãos acoplados.<sup>[80]</sup> Um anel de grãos opera como um centro de "pinning" topológico que congela localmente os graus de liberdade transversais de um vórtice (comportamento  $GT$ ) cujo comprimento é muito menor que a espessura da amostra. No caso em que os anéis fechados são devidos a anisotropias locais, eles já existem abaixo de  $T_c$  e somente as componentes longitudinais dos vórtices podem ser estabilizados originando assim, a linha  $AT$ . Os vórtices localizados no interior destes anéis de grãos flutuam em comprimento, porém, não estabelecem correlações longitudinais, pois o campo mantém-se clássico nas regiões entre diferentes anéis fechados. Quando o valor de temperatura decresce suficientemente os vórtices localizados no interior de diferentes anéis se acoplam e o comprimento dos vórtices diverge e o grau de liberdade longitudinal destes é

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

estabilizado (comportamento  $AT$ ). Para o caso 3D-XY, ou Heisenberg, estabilizam-se primeiro os graus de liberdade transversais dos vórtices com a formação dos primeiros anéis pelo fator  $A_{ij}$ , depois se estabilizam os graus de liberdade longitudinais dos vórtices.

O fato do comportamento da LIM nos supercondutores granulares serem descritos pela teoria do "flux-creep", eq. (6.1) pode ser compreendido se assumirmos que estes valores de campos magnéticos a densidade de vórtices é muito grande e que a dinâmica de fluxo de Abrikosov se comportam como se estivessem em um meio supercondutor homogêneo. Isto quer dizer que a rede de vórtices é rígida demais para envolver os grãos e fluir entre eles. Sendo assim, cada vórtice enxerga apenas uma média sobre o agregado.

Como já foi dito anteriormente, a supercondutividade granular nos HTSC não é resultado apenas da sua policristalinidade. Devido ao pequeno comprimento de coerência do parâmetro de ordem  $GL$ ,<sup>[140]</sup> um número grande de quaisquer defeitos locais ou estendidos na rede cristalina produzem um caráter granular até mesmo em monocristais.<sup>[141,142]</sup> Além do mais, a substituição parcial do Ba por Sr causa um decréscimo adicional no comprimento de coerência,<sup>[143]</sup> o que colabora para a elevação do caráter granular do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .

O caráter granular dos monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  onde o Ba ou o Cu foram parcialmente substituídos por Sr e Zn respectivamente é também verificado experimentalmente por meio de medidas de resistividade em função da temperatura e do campo magnético aplicado,  $\rho(T, H)$  as quais serão apresentadas no próximo capítulo. Nessas medidas, foi observado que a transição resistiva desses monocristais ocorre em duas etapas e, quando o valor do campo magnético aplicado é majorado, ele afeta drasticamente a etapa responsável pelo acoplamento de grãos. Antes de finalizar este parágrafo é preciso destacar que em um recente estudo de STM<sup>[144]</sup> a condutância diferencial ("gap"), em baixas temperaturas, foi mapeada na superfície de um monocristal de  $Bi_2Sr_2CaCu_2O_{8+\delta}$  e em outros dopado com Ni. O mapeamento mostra a existência de estruturas granulares bem definida ao longo da superfície do monocristal, a qual, é constituída por ilhas de "low-gap" de aproximadamente 4 nm acomodados em um fundo constituído por um material de "high-gap". Este mapeamento do "gap" apresenta-se como uma maneira direta de visualização da inomogeneidade eletrônica onde estes resultados representem uma distribuição inomogênea do conteúdo de oxigênio no monocristal e que reflete a inomogeneidade supercondutora destes materiais. Provavelmente a distribuição de oxigênio encontra-se relacionada às impurezas e os defeitos de rede. Tal inomogeneidade de oxigênio pode também ser o fator responsável pela produção de granularidade supercondutora em nossas amostras.

Finalizamos esta seção concluindo que ambos modelos de vidro supercondutor e vidro de vórtices, simplificam excessivamente o tratamento do problema real de um HTSC inomogêneo. Enquanto o primeiro subestima os efeitos de intragranularidade, o segundo não incorpora adequadamente a dinâmica de fluxo intergranular na sua essência. Contudo, apesar de ambos modelos preverem a ocorrência de uma transição de "glass" ao longo de uma linha no diagrama  $H-T$ , estas linhas são completamente suaves e claramente não podem explicar os detalhes claros e sistemáticos observados na estrutura da LIM de nossos supercondutores

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

granulares. Enquanto um melhor “approch” teórico não é desenvolvido para a explicação do comportamento da LIM nos HTSC inomogêneos, continuaremos comparando nossos resultados com aqueles obtidos em sistemas vidro de spin os quais são intrigantemente iguais no que se refere ao comportamento da LIM em baixos campos magnéticos.

### 6.6.2 – Os Efeitos das Substituições Químicas na LIM

Além de reduzir o valor da temperatura crítica de transição,  $T_c$  (fig. 6.1 e 6.2) e introduzir granularidade supercondutora apontada pelo comportamento apresentado pela LIM em baixos campos magnéticos nas amostras monocristalinas, a substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por Zn ou Mg no  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7.8}$  ocasionam outros efeitos na LIM os quais serão discutidos nesta seção.

Nas amostras monocristalinas, a anisotropia da irreversibilidade magnética para  $H // ab$  e  $H // c$  na região de altos campos magnéticos é bem compreendida em termos da estrutura planar intrínseca dos HTSC, conforme apresentado na seção 3.3.2. Enquanto que, por um lado, não vemos porque esta anisotropia intrínseca afetaria a dinâmica de fluxo intergranular de Josephson e por outro lado, observamos uma inversão sistemática desta anisotropia (plano  $c$  / eixo  $ab$ ) na região de baixos campos em relação àquela na região de altos campos. De fato se observa que a declividade do ajuste  $AT$  é sistematicamente menor para  $H // ab$  do que  $H // c$  (veja os valores para  $H_0^{AT}$  na tab. 6.3). Este comportamento é oposto na região de campos intermediários onde o ajuste  $GT$  se aplica (veja os valores para  $H_0^{GT}$  na tab. 6.3). Estes fatos sugerem que na região de mais baixos campos o acoplamento entre os grãos supercondutores é mais frágil na configuração  $H // ab$ . Uma sugestão de explicação para este comportamento, seria o fato de que as junções ao longo do eixo  $c$ , quando temos  $H // ab$ , são mais frágeis devido as depressões do parâmetro de ordem supercondutor entre os planos de  $\text{CuO}_{(2)}$ .

O limite de irreversibilidade magnética,  $T_{irr}(H)$  pode ser visto como uma medida de eficácia do potencial de “pinning”. Os resultados observados para o comportamento da LIM em função do conteúdo de oxigênio revelam que o aumento do número de vacâncias de oxigênio melhora a capacidade de “pinning” dos fluxóides de Abrikosov nas regiões intragranulares ao passo que deteriora sensivelmente as junções entre os grãos que funcionam como barreiras para os fluxóides de Josephson nas amostras MCZnA e MCZnB. No entanto para as amostras PY e PSr a desoxigenação deteriora sensivelmente a capacidade de “pinning” dos fluxóides tanto para as dinâmicas de Josephson como de Abrikosov. Estas conclusões são obtidas através da observação dos valores do parâmetro  $H_0$  para os regimes  $AT$ ,  $GT$  e  $fc$  expressos nas tab. 6.24 e 6.25.

Observando às fig. 6.39 à 6.46 e os valores para  $T_{irr}(0)$  e  $H_0$  descritos na tab. 6.25, notamos que a substituição parcial do Cu por 1% de Zn ou Mg produz um deslocamento, sem modificação, da forma da LIM das amostras MCZnA e MCMg semelhante ao que foi observado na amostra MCSr05, onde 25 % do Ba é substituído por Sr ou seja, o valor de  $T_{irr}(0)$  apresenta-se aproximadamente 7 K inferior ao valor observado na amostra pura MCY1.

## Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)

Além disso podemos destacar que as substituições realizadas no sítio do Cu diminuem a região da LIM marcada pela dinâmica intergranular de Josephson ou seja, enquanto que para a amostra MCZnB a região *AT-GT* é observada até  $H \approx 2$  kOe, na amostra MCSr05 esta região é observada até  $H \approx 5$  kOe, compare as figs. 6.43 e 6.47.

Por outro lado, se compararmos o comportamento apresentado pela LIM juntamente com os valores de  $H_0$  para os regimes *AT*, *GT* e *fc*, tab. 6.25, notaremos que os efeitos produzidos pela utilização do Zn ou do Mg como elemento dopante no sítio do Cu se equivalem quando se trata da dinâmica de fluxo intragranular (parâmetro  $H_0^{fc}$ ) ao passo que na dinâmica intergranular (parâmetros  $H_0^{GT}$  e  $H_0^{AT}$ ) os efeitos se apresentam de maneira distinta. Podemos dizer que a amostra MCMg apresenta o mesmo comportamento para a LIM que a amostra MCZnA desoxigenada. Aparentemente, o Mg impede a otimização de oxigênio no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .

### **6.6.3 – Observação de Efeitos Fortemente Direcionais do "Pinning" na LIM dos Monocristais $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$**

As propriedades direcionais de “pinning” apresentadas pela LIM nos monocristais de  $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ , ilustradas pela *fig.* 6.43, e apresentados na seção 6.4.3 caracterizam-se pela maximização do mecanismo de “pinning” na região de campos magnético elevados quando o campo é aplicado paralelamente aos planos de maclas (PMCs). Apesar de não termos realizado um estudo detalhado sobre o comportamento do “pinning” em função do deslocamento angular do campo aplicado em relação aos PMCs ( $\phi$ ) nós acreditamos que este comportamento, tratando-se de nossas amostras, seria tipo “cusp”, conforme discutido no cap. 3, e observado em filmes,<sup>[87]</sup> texturizados<sup>[89]</sup> e em monocristais para o campo aplicado ao longo dos defeitos colunares<sup>[88]</sup> de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . Este comportamento fortemente direcional do “pinning” é entendido como a assinatura de uma fase vidro de Bose.<sup>[84]</sup>

Por outro lado, PMCs e os defeitos colunares devidos a irradiações por íons pesados, obviamente, não constituem o mesmo tipo de mecanismo de "pinning". Entretanto as intersecções entre as diferentes famílias de PMCs ou de cada PMC (ao longo dos planos [110] ou  $[1\bar{1}0]$ ) com as camadas supercondutores fracas entre os subsequentes pares de planos de  $CuO_{(2)}$  ( $[110]$ ) constituem arranjos unidimensionais (1D) de defeitos correlacionados análogos aos dos defeitos colunares. Para  $H // ab$  as linhas de fluxo, já aprisionadas entre os subsequentes pares de planos de  $CuO_{(2)}$  devido ao mecanismo de “pinning” intrínseco, são também aprisionadas por estes defeitos correlacionados quando os PMCs são alinhados com a direção do campo aplicado. Desta forma, as linhas de fluxo são aprisionadas ao longo de extensas distâncias, ganhando assim uma considerável energia de “pinning” adicional.

Em campos magnéticos elevados o conjunto formado pelas linhas de fluxo aprisionadas pelos defeitos estendidos juntamente com as muitas linhas de fluxo intersistiais não aprisionadas é denso o bastante para comportar-se como um corpo rígido quando o campo magnético é desalinhado em relação aos PMCs. Este

**Capítulo 6 - Resultados Experimentais: Linhas de Irreversibilidade Magnética (LIM)**

comportamento evita que as linhas de fluxo sejam aprisionadas pelos PMCs para deslocamentos angulares maiores do que um certo valor crítico. Isto reduz a ação do “pinning” devido aos PMCs e conseqüentemente reduz o valor de  $T_{irr}(H)$ . Contudo, este comportamento tipo corpo rígido é suavizado a medida em que o campo magnético aplicado é reduzido e as temperaturas aumentam. Isto ao mesmo tempo reduz a força de Lorentz entre os vórtices e aumenta a ativação térmica.

No ponto de campo  $H_M$  ("maching field"), o qual marca o "crossover" do regime vidro de Bose para o vidro de vórtices e vice-versa, ocorre a igualdade entre o número de defeitos estendidos e o número total de vórtices. Nos monocristais MCSr01 e MCSr037 os valores de  $H_M$  são aproximadamente 25 kOe e 20 kOe respectivamente. Nesta situação, cada defeito colunar abriga um vórtice. Isto é, algo análogo ao que ocorre na fase “Mott insulator”.

Por outro lado, na região de campo magnético compreendida entre  $H_M$  e o limite para o qual os regimes de campo magnético passam a apresentar um comportamento granular, (região *AT-GT*) os efeitos de flutuações térmicas, devidos ao elevado valor da temperatura, começam a colaborar para o “depinning” dos vórtices dos centro de "pinning" isotrópicos para o seu posterior aprisionamento coletivo pelos PMCs. As flutuações térmicas podem acarretar tunelamento de vórtices entre as maclas (colunares) vizinhos, conduzindo o sistema a um regime de “pinning” coletivo. Isto explica porque nesta região de campo o "pinning" pelas maclas se torna tão forte e isotrópico (comportamento vidro de vórtices). A região de campo situada entre  $H_M$  e os regimes de baixo campo (*AT-GT*) correspondem as regiões situadas entre 25 e 5 kOe, para o MCSr01, e 20 e 2.5 kOe para o MCSr037. Por outro lado, não existe evidência de acordo com a *fig. 6.43*, de que os valores de campos magnéticos os quais delimitam os efeitos de "pinning" anisotrópico e isotrópico dependam da concentração de Sr. Este fato precisa ser investigado com maiores detalhes.

O fato de que os dados de  $T_{irr}(H)$  obtidos para  $H // ab //$  PMCs nos monocristais MCSr01 e MCSr037, podem ser ajustados pela eq. (6.1), oriunda da teoria de “flux creep”, em toda a extensão da região de alto campo indicam que esses efeitos de “pinning” anisotrópico, que não são levados em consideração na teoria de “flux creep”, não invalidam a lei de potências que descreve o comportamento da LIM na região de campos elevados.

O repentino aumento da intensidade do "pinning" observado no conjunto de pontos de  $T_{irr}(H)$  localizados na região de "crossover" da dinâmica de fluxo de Josephson para a do fluxo de Abrikosov, proximamente a 7 kOe, pode ser compreendido como a ativação do "pinning" coletivo pelas maclas, análogo a um efeito de pico.

Como um último comentário, devemos destacar que o comportamento apresentado pelos dados de  $T_{irr}(H)$  nas amostras MCZnA, MCZnB e MCMg não proporcionou a verificação de efeitos direcionais de "pinning" na LIM. Acreditamos que isso se deva ao fato haver um número insuficiente de maclas.

## **Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

Neste capítulo caracterizaremos a transição resistiva e apresentaremos os resultados experimentais obtidos no estudo dos regimes dominados por flutuações supercondutoras na magnetocondutividade de nossas amostras em baixos campos magnéticos aplicados. As flutuações foram analisadas na região paracondutora, situada em temperaturas logo acima de  $T_c$  e na região paracoerente, situada entre  $T_c$  e  $T_{co}$ , os quais são mostrados na representação da *fig. 4.1*.

O objetivo central desse capítulo é verificar o comportamento granular de nossas amostras caracterizando a transição resistiva como um processo de duas etapas. A aproximação ao estado de resistência nula se dá na região paracoerente. O estado de resistência nula é alcançado através de uma transição de coerência, na qual são suprimidas as flutuações de fase do parâmetro de ordem dos grãos supercondutores. O estudo dos regimes de flutuações nas regiões paracondutora e paracoerente de nossas amostras granulares é realizado de forma qualitativa, onde a principal meta é caracterizar o comportamento destes regimes e compará-los a outros estudos já realizados.<sup>[103, 145]</sup>

### **7.1 - Identificação das Amostras Estudadas em Magnetoresistividade**

A tab. 7.1, apresenta as amostras selecionadas para esse estudo bem como os valores de corrente AC de medida,  $I$ , aplicados, a densidade de corrente,  $J$ , aplicada em cada amostra e o intervalo de intensidades de campo magnético,  $H$ , aplicados.

<b>AMOSTRAS</b>	<b>Parâmetros de Medida</b>		
	<b><math>I</math> (mA)</b>	<b><math>J</math> (A/cm<sup>2</sup>)</b>	<b><math>H</math> (kOe)</b>
<b>Policristais</b>			
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PY</b>	1.03	0.05	0 - 0.6
<b>YBa<sub>1,9</sub>Sr<sub>0,1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - PSr</b>	1.04	0.04	0 - 0.6
<b>Monocristais</b>			
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - MCY2</b>	0.58	1.81	0 - 0.6
<b>YBa<sub>1,9</sub>Sr<sub>0,1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - MCSr01</b>	0.54	1.40	0 - 0.6
<b>YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2,97</sub>Zn<sub>0,03</sub>O<sub>7-δ</sub> - MCZnB</b>	0.54	1.09	0 - 0.6

**Tab. 7.1** - Valores para corrente,  $I$ , densidade de corrente,  $J$  e campo magnético  $H$  empregados nas medidas de magnetocondutividade.

Nos monocristais, o campo magnético foi aplicado paralelamente ( $H // ab$ ) e perpendicularmente ( $H // c$ ) aos planos de  $Cu-O_2$ . A corrente de excitação foi

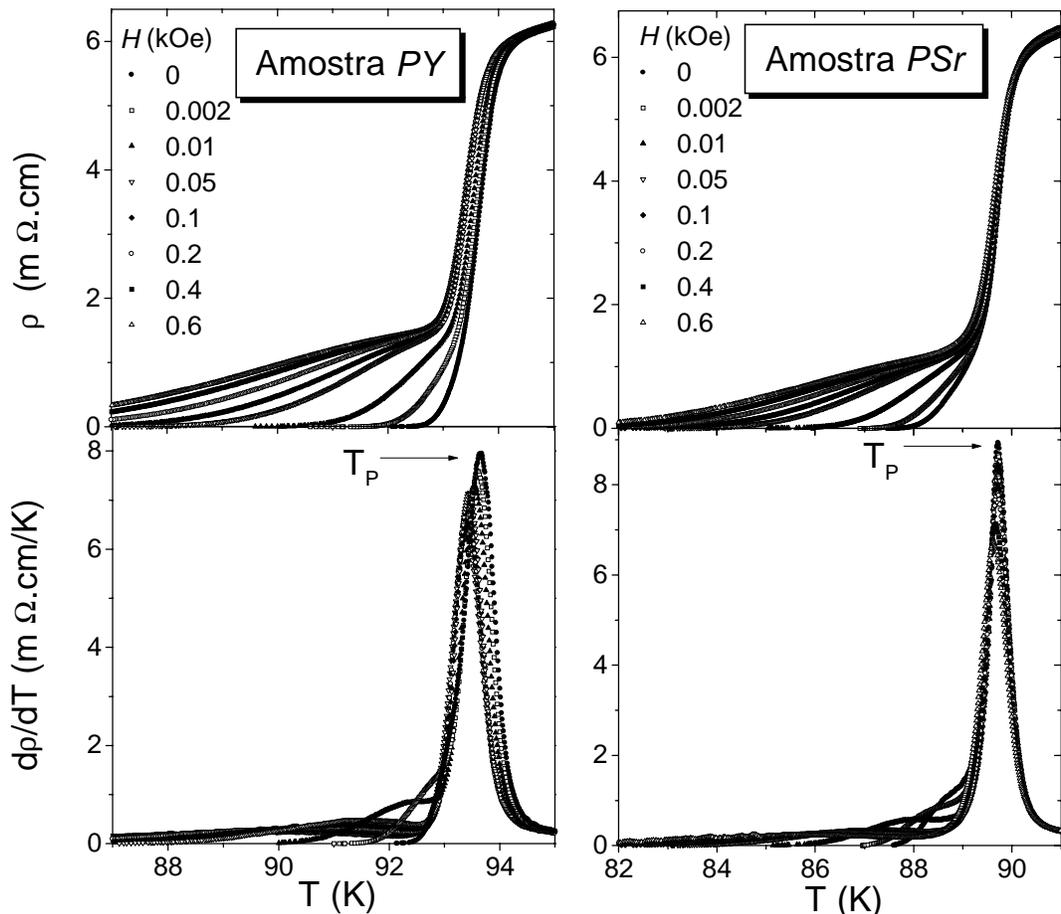
## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

aplicada na direção paralela aos planos de  $Cu-O_2$  ( $J // ab$ ). Para cada campo aplicado foram realizadas, medidas de magnetoresistividade ao longo de, no mínimo, dois ciclos de temperatura.

### 7.2 - Transição Resistiva

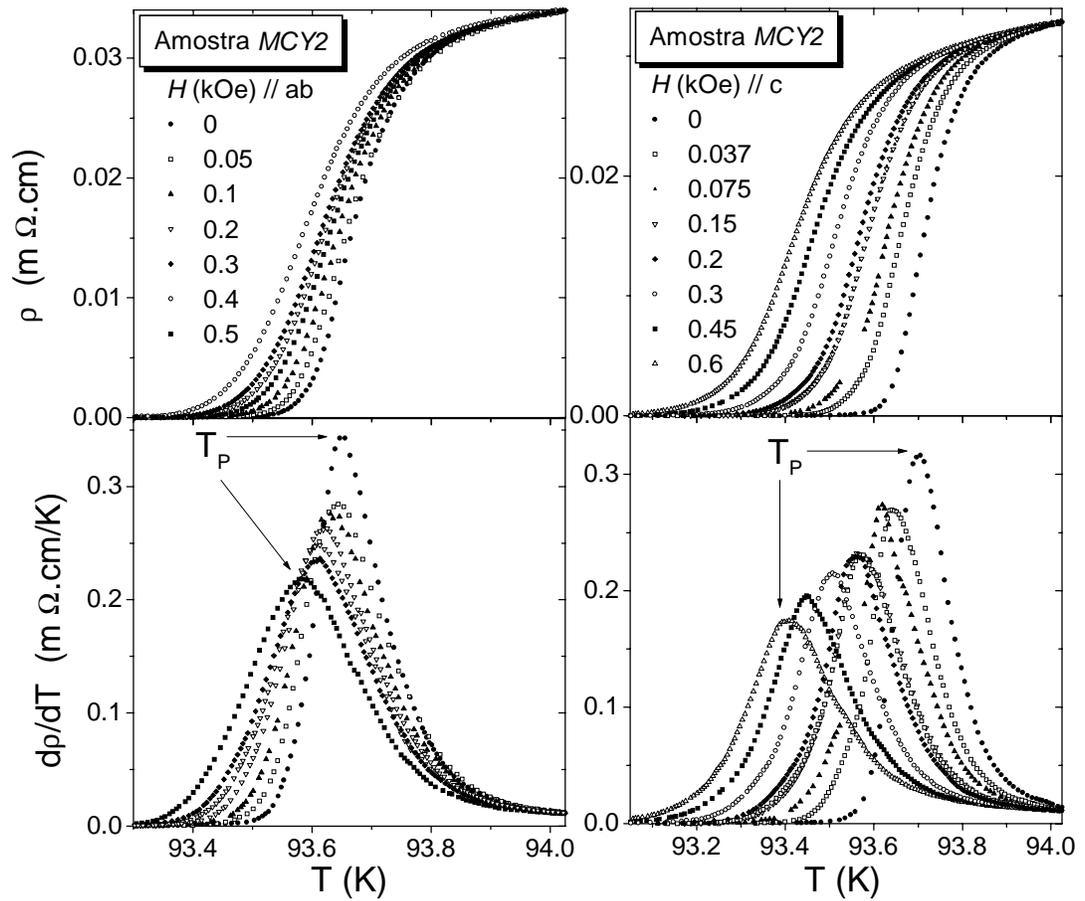
A transição resistiva das amostras  $PY-\delta = 0$ , PSr, MCY2, MCSr01 e MCZnB foi caracterizada em diversos campos magnéticos aplicados. As *fig. 7.1, 7.2, 7.3 e 7.4* mostram as curvas de magnetoresistividade, medidas em função da temperatura, nas proximidades da transição supercondutora, para alguns dos campos estudados.

#### 7.2.1 - Amostras Policristalinas



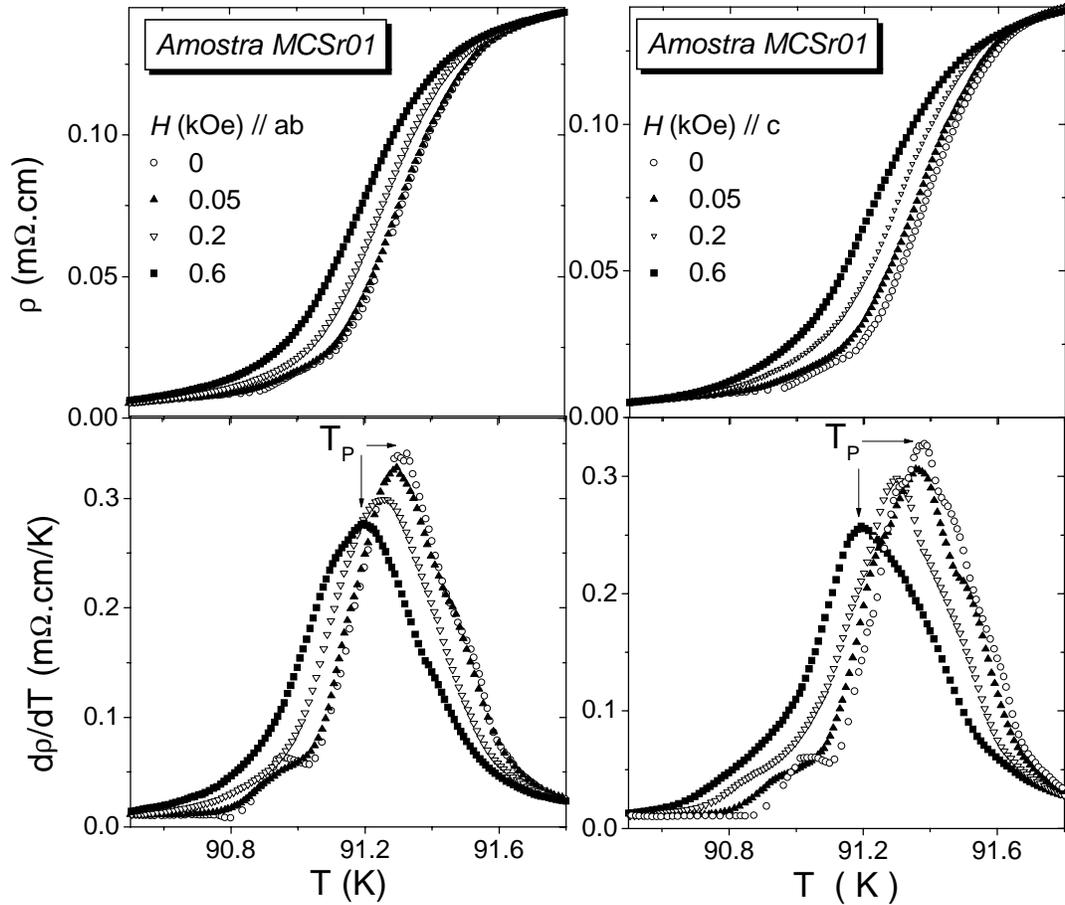
**Fig. 7.1** - Comportamento de  $\rho(H,T)$ , (quadros superiores), e suas respectivas  $d\rho/dT$ , (quadros inferiores), para as amostras PY (lado esquerdo) e PSr (lado direito), quando baixos campos magnéticos são aplicados.<sup>[128]</sup>

**7.2.1 - Amostras Monocristalinas**



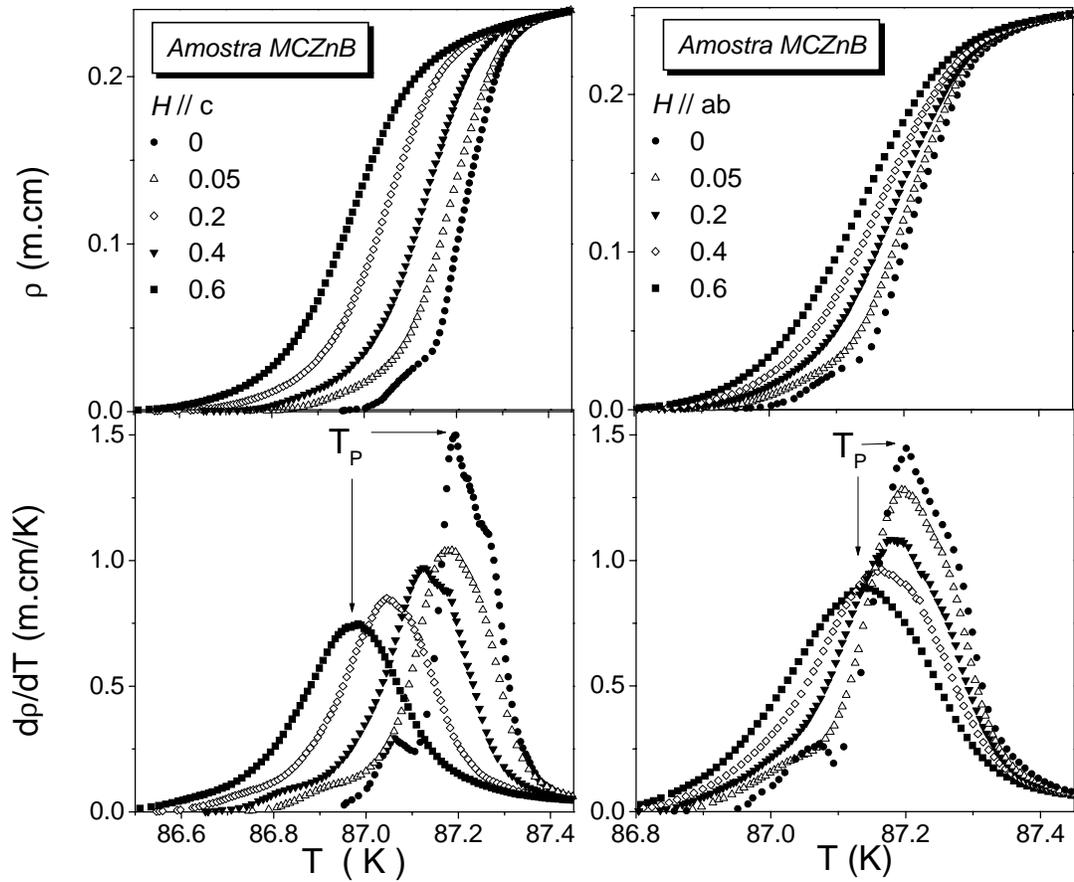
**Fig. 7.2** - Comportamento de  $\rho(H,T)$ , (quadros superiores), e suas respectivas  $dp/dT$ , (quadros inferiores), para a amostra MCY2 para  $H // ab$  (lado esquerdo) e  $H // c$  (lado direito), quando baixos campos magnéticos são aplicados. <sup>[128,129,131-133]</sup>

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**



**Fig. 7.3** - Comportamento de  $\rho(H,T)$ , (quadros superiores), e suas respectivas  $d\rho/dT$ , (quadros inferiores), para a amostra MCSr01 para  $H // ab$  (lado esquerdo) e  $H // c$  (lado direito), quando baixos campos magnéticos são aplicados.<sup>[128,129]</sup>

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetococondutividade**



**Fig. 7.4** - Comportamento de  $\rho(H,T)$ , (quadros superiores), e suas respectivas  $d\rho/dT$ , (quadros inferiores), para a amostra MCSr01 para  $H // c$  (lado esquerdo) e  $H // ab$  (lado direito), quando baixos campos magnéticos são aplicados.<sup>[132]</sup>

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

A temperatura onde se observa o máximo principal nas curvas de  $d\rho/dT$ , a qual denominamos de  $T_p(H)$ , denota aproximadamente a posição da transição de pareamento. Esta temperatura é um parâmetro útil que permite delimitar os efeitos de flutuações supercondutoras na região paracondutora ( $T > T_p$ ).

Começamos analisando a transição resistiva,  $\rho(T)$  da amostra monocristalina MCY2, *fig. 7.2*. O comportamento  $\rho(T)$  em função do campo magnético é o esperado para um supercondutor homogêneo<sup>[145]</sup> no qual a transição resistiva ocorre em apenas uma etapa. Nas curvas de  $d\rho/dT$ , onde a temperatura do máximo central,  $T_p(H)$  diminui em função do aumento do campo magnético aplicado porém, esta amostra não apresenta indícios de um comportamento granular. O comportamento da transição resistiva é compatível com a ausência completa de sinais da dinâmica intergranular de Josephson. Portanto, o estado supercondutor desta amostra é homogêneo e apenas a dinâmica de fluxo intragranular (Abrikosov) é relevante conforme verificado pelo comportamento da LIM na amostra MCY1, *fig. 6.10*. Por outro lado, nota-se que o comportamento das curvas de magnetoresistividade das amostras PY, PSr,<sup>[131]</sup> MCSr01<sup>[128]</sup> e MCZnB<sup>[132]</sup> difere claramente do observado na amostra MCY2.

Como já foi esposto, na seção 4.4, a transição resistiva em materiais supercondutores granulares consiste de um processo a duas etapas.<sup>[132,128]</sup> A derivada da resistividade em função da temperatura apresenta um máximo estreito e pronunciado cuja posição,  $T_p$ , coincide aproximadamente com a temperatura de pareamento  $T_c$ . Em geral, este máximo é assimétrico e mostra um alargamento na região de aproximação ao estado de resistência nula. Muitas vezes, este alargamento evolui para um máximo secundário que é fortemente dependente da corrente e campo magnético aplicados.<sup>[130]</sup> Este comportamento é claramente reproduzido nas curvas de  $d\rho/dT$ , *fig. 7.1*, para as amostras policristalinas PY e PSr. Embora de modo menos marcado, a transição em duas etapas é também observada nas curvas de  $d\rho/dT$ , *fig. 7.3 e 7.4*, para os monocristais MCSr01 e MCZnB nas configurações de campo  $H // ab$  e  $H // c$ .

A aplicação de baixos campos magnéticos ( $H < 0.6$  kOe) torna ainda mais evidente o caráter de duas etapas da transição resistiva. Nas *fig. 7.1, 7.3 e 7.4*, observa-se que o campo magnético desloca levemente a queda abrupta na resistividade que ocorre nas proximidades da transição intragranular (transição de pareamento). No entanto, a região de aproximação ao estado de resistência nula, dominada pela dinâmica de fluxo intergranular, é fortemente modificada pelo campo, cujo aumento ocasiona uma diminuição significativa do valor de  $T_{c0}(H)$ , a qual denota o estabelecimento do estado de resistência nula. As derivadas de  $d\rho/dT$  evidenciam um pico agudo nas vizinhanças da transição intragrão. Em temperaturas inferiores ocorre um máximo arredondado que se origina do processo percolativo de supercondução através das junções fracas do arranjo granular. Este regime, que é precursor à transição de coerência, é fortemente alargado com o aumento do campo aplicado, tal como se poderia esperar do comportamento de um arranjo granular multiconectado em que as energias de acoplamento intergrão distribuem-se sobre uma extensa faixa de valores e que respondem diferentemente ao campo aplicado, à corrente elétrica de medida e à temperatura.

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

Assim, a transição resistiva observada nesse dois monocristais dopados corrobora o comportamento apresentado pelas demais amostras monocristalinas dopadas com Sr, Zn e Mg, ou seja, estes sistemas exibem um comportamento granular semelhante ao apresentado pelas cerâmicas PY e PSr.

### **7.3 - Flutuações na Magnetocondutividade: Resultados Experimentais**

#### **7.3.1 - Método de Análise**

A contribuição das flutuações termodinâmicas à condutividade é obtida a partir da experiência mediante a diferença:

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_R \quad (7.1)$$

onde  $\sigma = 1/\rho$  é a condutividade medida e  $\sigma_R$  é a condutividade regular.

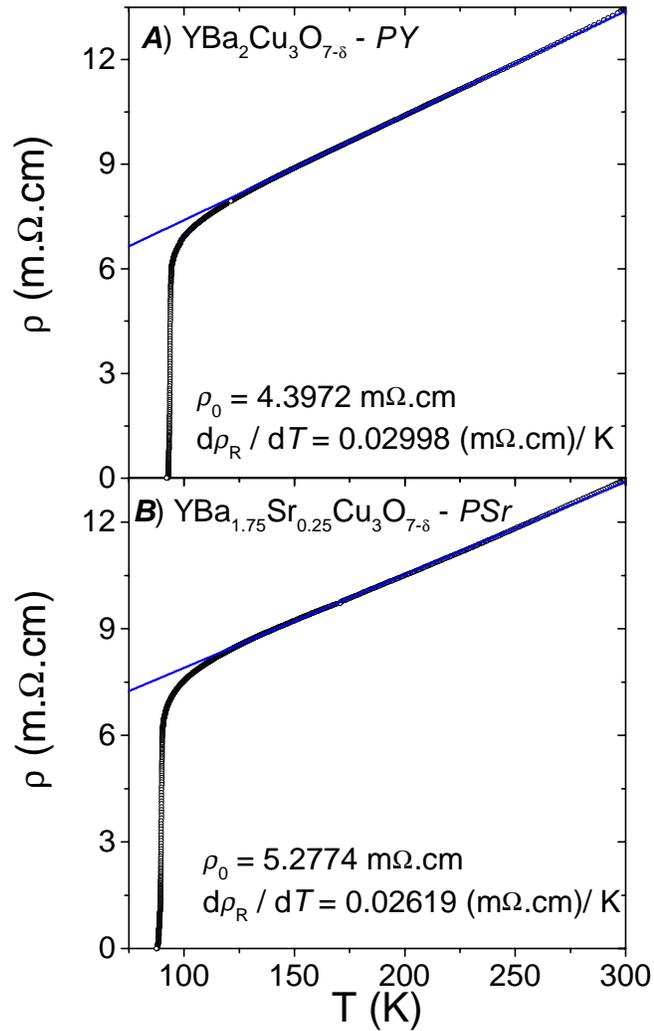
A condutividade regular é determinada a partir da extrapolação do comportamento linear apresentado pela resistividade em altas temperaturas, e pode ser expressa como:

$$\sigma_R = \frac{1}{\rho_R} \quad (7.2)$$

onde:

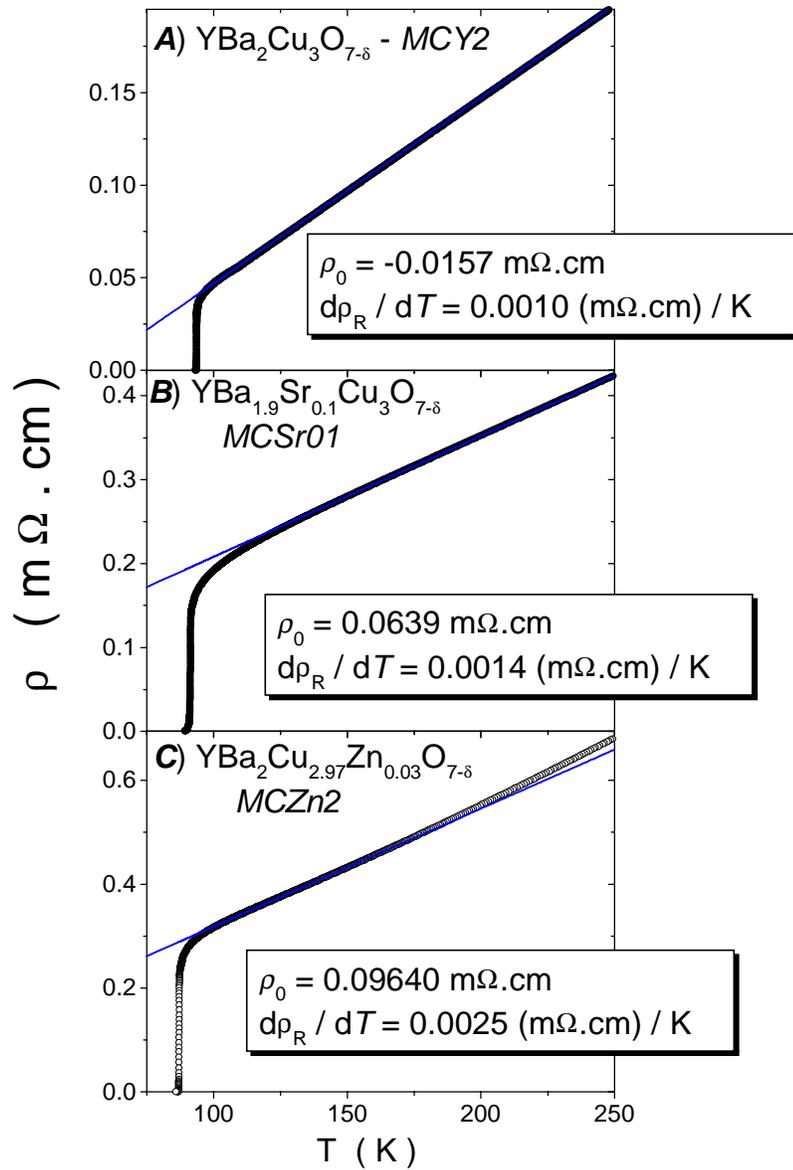
$$\rho_R = \rho_0 + \frac{d\rho_R}{dT}T \quad (7.3)$$

As constantes  $\rho_0$  e  $(d\rho_R/dT)$  são determinadas a partir do ajuste linear do comportamento da resistividade em altas temperaturas. O ajuste é realizado utilizando o intervalo de temperatura entre 120 K e 250 K. A *fig. 7.5* ilustra o ajuste que permite a determinação destas constantes e apresenta os valores obtidos para  $\rho_0$  e  $(d\rho_R/dT)$  nas amostras policristalinas ao passo que a *fig 7.6* mostra resultados para as amostras monocristalinas.



**Fig. 7.5** - Extrapolação do comportamento linear da resistividade elétrica em alta temperatura medida nas amostras policristalinas PY (quadro A) e PSr (quadro B).

Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade



**Fig. 7.6** - Extrapolação do comportamento linear da resistividade elétrica em alta temperatura medida nas amostras monocristalinas MCY2 (quadro A), MCSr01 (quadro B) e MCZn2 (quadro C).

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

Os resultados experimentais são analisados a partir da suposição que a contribuição das flutuações supercondutoras à condutividade, nas proximidades de  $T_c$ , diverge segundo uma lei de potência da forma:

$$\Delta\sigma = A \varepsilon^{-\lambda} \quad (7.4)$$

onde  $A$  é uma constante,  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  é a temperatura reduzida e  $\lambda$  é o expoente crítico.

Em analogia com o método de Kouvel-Fisher,<sup>[146]</sup> empregado na análise de fenômenos críticos, determina-se a derivada logarítmica de  $\Delta\sigma$  em relação à temperatura. Assim, define-se:

$$\chi_\sigma = -\frac{d}{dT} \ln(\Delta\sigma) = -\frac{1}{\Delta\sigma} \frac{d(\Delta\sigma)}{dT} \quad (7.5)$$

Substituindo a eq. (7.4) na eq. (7.5) e calculando a derivada, obtemos:

$$\frac{1}{\chi_\sigma} = \frac{1}{\lambda} (T - T_c) \quad (7.6)$$

Portanto, a simples identificação de um comportamento linear em um gráfico  $1/\chi_\sigma$  versus  $T$  permite que sejam identificados simultaneamente a temperatura crítica  $T_c$ , e o respectivo expoente crítico  $\lambda$ . A partir da interseção da reta com o eixo da temperatura obtemos  $T_c$ , enquanto que a inclinação da reta fornece o inverso do expoente crítico,  $\lambda^{-1}$ .

Uma vez que a quantidade medida é a resistividade, escreve-se:

$$\frac{d}{dT} (\Delta\sigma) = -\frac{1}{\rho^2} \frac{d\rho}{dT} + \frac{1}{\rho_R^2} \frac{d\rho_R}{dT} \quad (7.7)$$

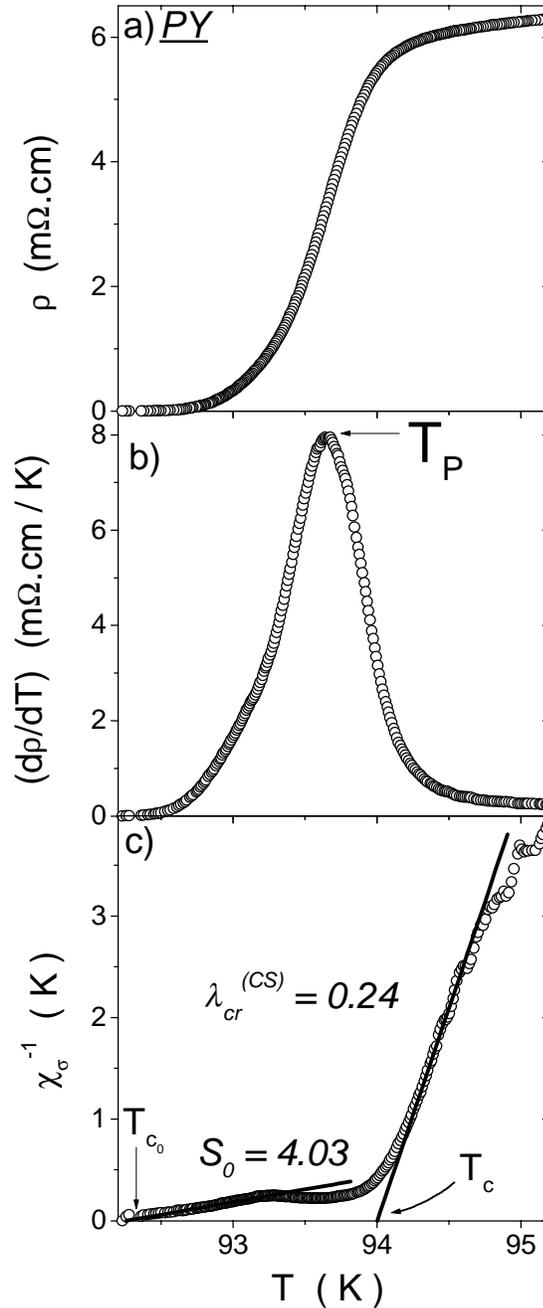
Assim, a derivada logarítmica  $\chi_\sigma$  é determinada numericamente por meio da expressão:

$$\chi_\sigma = \frac{\left( \frac{1}{\rho^2} \frac{d\rho}{dT} - \frac{1}{\rho_R^2} \frac{d\rho_R}{dT} \right)}{\left( \frac{1}{\rho} - \frac{1}{\rho_R} \right)} \quad (7.8)$$

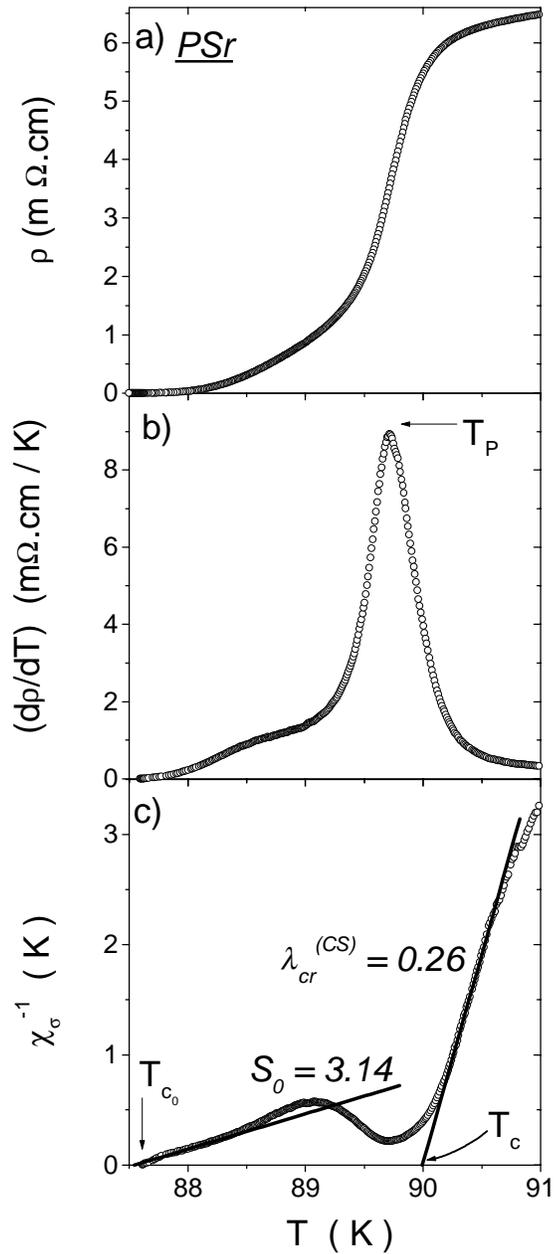
## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

As principais fontes de incertezas na análise dos dados com este método originam-se da extrapolação linear para a determinação da condutividade regular,  $\sigma_R$ , e do procedimento numérico para a determinação da derivada  $d\rho/dT$ . Porém, os erros assim introduzidos são pequenos nas proximidades da transição, pois neste caso, o termo que envolve  $\rho_R$  no numerador da eq. (7.8) é pequeno se comparado ao termo que contém a resistividade medida  $\rho$ . Por outro lado, a determinação numérica de  $d\rho/dT$  torna-se mais precisa nas proximidades da temperatura crítica  $T_c$ , onde a resistividade varia rapidamente em função da temperatura. Aumentando-se a temperatura, a diferença entre  $\rho$  e  $\rho_R$  diminui e os erros provenientes do procedimento numérico tendem a se tornar maiores.

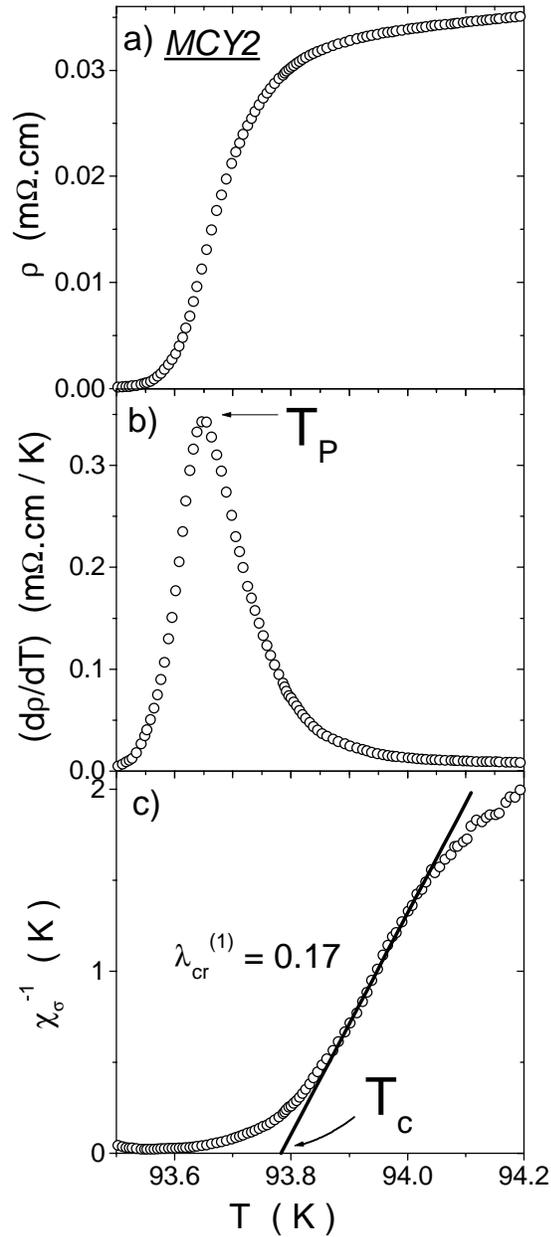
As *figs. 7.7, 7.8, 7.9, 7.10 e 7.11* mostram, em cada um dos seus três quadros, um resultado típico de medida de: (a) Resistividade em função da temperatura,  $\rho(T)$ , (b) da derivada da resistividade em função da temperatura  $d\rho(T)/dT$  e do inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para as amostras MCY2, MCSr01 e MCZn2 em campo magnético nulo. No quadro (b) foi denominado de  $T_p$  o máximo de  $d\rho(T)/dT$ , conforme discutido anteriormente. No quadro (c) a transição é mostrada na forma de um gráfico de  $\chi_\sigma^{-1} \times T$ . A reta indicada nas figuras, cuja extrapolação fornece o valor de  $T_c$ , corresponde ao ajuste dos dados utilizando-se a eq. 7.6, a qual expressa um comportamento do tipo lei de potências. O significado dos expoentes críticos  $\lambda_{cr}^{(1)}$  (MCY2, MCSr01 e MCZn2) e  $\lambda_{cr}^{(cs)}$  (PY e PSr) bem como o do expoente  $S_0$  (PY, PSr e MCZn2) cuja extrapolação nos fornece o valor da temperatura na qual a resistividade torna-se nula,  $T_{c0}$  serão discutidos posteriormente.



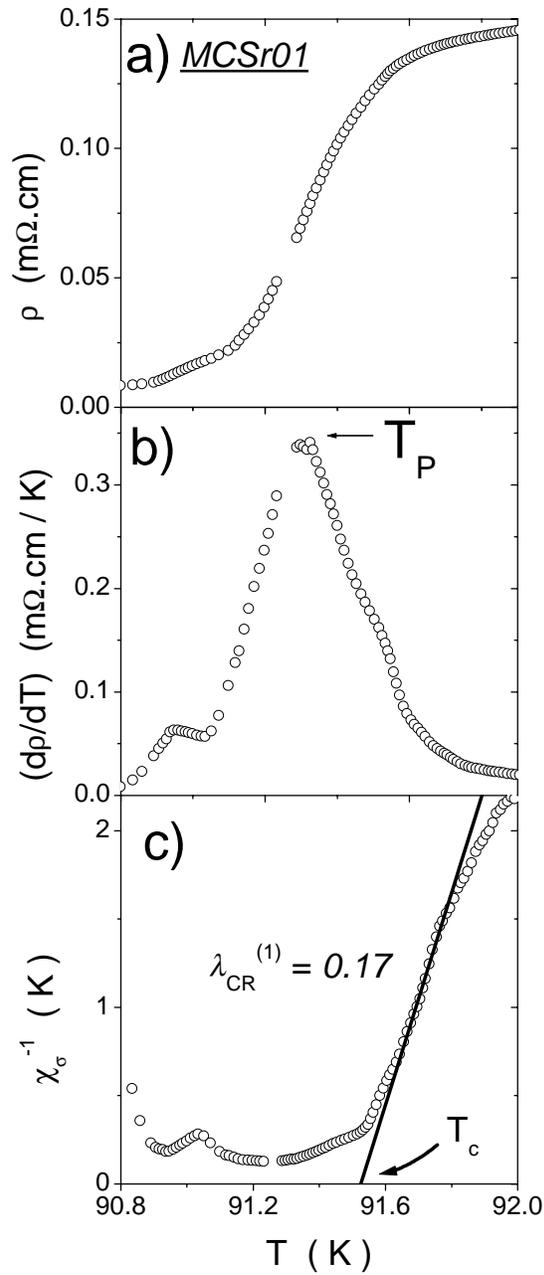
**Fig. 7.7** - (a) Transição resistiva normal-supercondutor  $\rho(T)$ , (b) derivada numérica da resistividade  $d\rho(T)/dT$  e (c) o inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para a amostra PY. A extrapolação da reta que representa os expoentes críticos  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  e  $S_0$  fornece os valores de  $T_c$  e  $eT_{c0}$  respectivamente em  $H = 0$ .



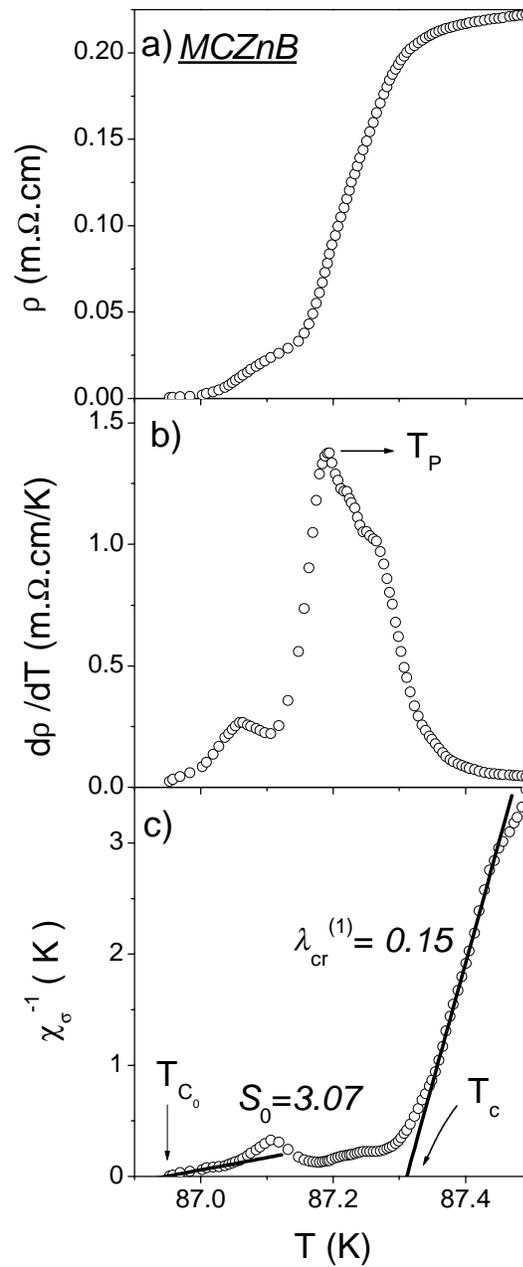
**Fig. 7.8** - (a) Transição resistiva normal-supercondutor  $\rho(T)$ , (b) derivada numérica da resistividade  $d\rho(T)/dT$  e (c) o inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para a amostra PSr. A extrapolação da reta que representa os expoentes críticos  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  e  $S_0$  nos fornece os valores de  $T_c$  e  $T_{c_0}$  respectivamente em  $H = 0$ .



**Fig. 7.9** - (a) Transição resistiva normal-supercondutor  $\rho(T)$ , (b) derivada numérica da resistividade  $d\rho(T)/dT$  e (c) o inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para a amostra MCY2. A extrapolação da reta que representa o expoente crítico  $\lambda_{cr}^{(1)}$  fornece o valor de  $T_c$  em  $H = 0$



**Fig. 7.10** - (a) Transição resistiva normal-supercondutor  $\rho(T)$ , (b) derivada numérica da resistividade  $d\rho(T)/dT$  e (c) o inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para a amostra MCSr01. A extrapolação da reta que representa o expoente crítico  $\lambda_{cr}^{(1)}$  fornece o valor de  $T_c$  em  $H = 0$



**Fig. 7.11** - (a) Transição resistiva normal-supercondutor  $\rho(T)$ , (b) derivada numérica da resistividade  $dp(T)/dT$  e (c) o inverso da derivada logarítmica,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para a amostra MCZnB. A extrapolação da reta que representa os expoentes críticos  $\lambda_{cr}^{(1)}$  e  $S_0$  fornece o valores de  $T_c$  e  $T_{c_0}$  respectivamente em  $H = 0$ .<sup>[132]</sup>

## **Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

### **7.3.2 - Flutuações na Fase Paracondutora ( $T > T_c$ )**

Utilizando-se o método de análise descrito na seção 7.3.1, foram identificados sistematicamente a ocorrência de regimes gaussianos e críticos a medida em que a temperatura se aproxima de  $T_p(H)$ . Apesar dos baixos valores de campos magnéticos utilizados,  $H \leq 0.6$  kOe, estes foram suficientes para o desaparecimento de alguns dos regimes críticos observados nos monocristais. Por outro lado, os regimes gaussianos mostram-se inalterados para esta faixa de campos magnéticos aplicados.

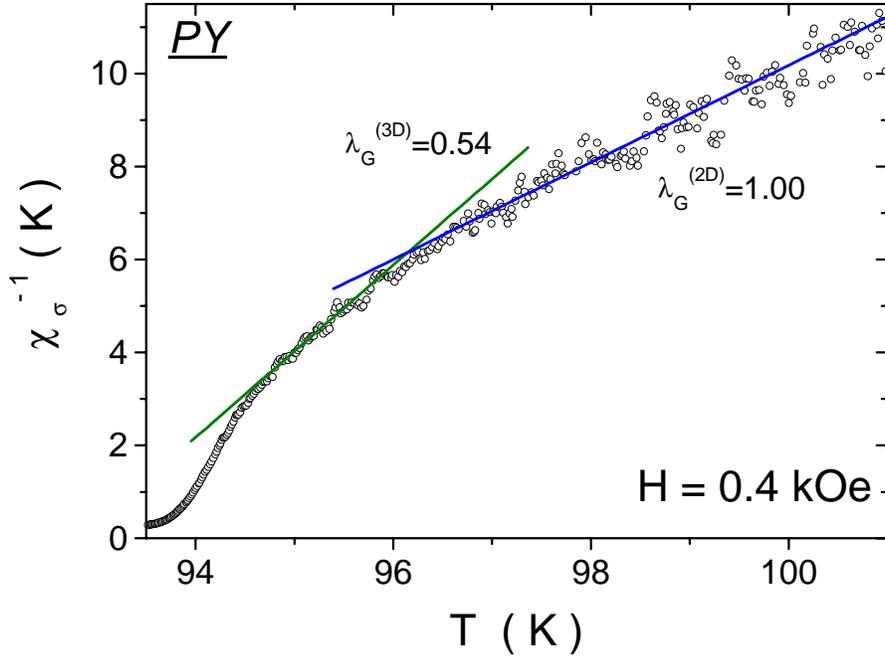
#### **7.3.2.1 - Flutuações Gaussianas**

##### **7.3.2.1.1 - Análise dos Resultados**

Em temperaturas afastadas de  $T_c$  predominam os efeitos de flutuações gaussianas na condutividade elétrica. A partir da análise de dados, foram identificados três regimes de lei de potência dominados por flutuações gaussianas, que são flutuações não correlacionadas e correspondem às regiões identificadas pelos expoentes  $\lambda_G^{(3D)}$ ,  $\lambda_G^{(2D)}$  e  $\lambda_G^{(1D)}$  os quais denotam a existência de flutuações gaussianas tri, bi e unidimensionais respectivamente. As *fig. 7.12 à 7.16* ilustram a localização destes regimes nas curvas de  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  para as amostras PY, PSr, MCY2, MCSr01 e MCZnB.

Os valores dos expoentes gaussianos, determinados a partir da realização de ajustes lineares sobre os dados de  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$ , das amostras listadas no parágrafo anterior são apresentados nas tabelas 7.2 à 7.6 respectivamente. Nestas, a barra de erro associada aos valores dos expoentes críticos, foi determinada através da propagação de erro de cada ajuste linear e a média aritmética das várias medidas (no mínimo duas) efetuadas sob a mesmas condições. Este procedimento foi adotado para a determinação da barra de erro nos demais expoentes que serão apresentados neste trabalho.

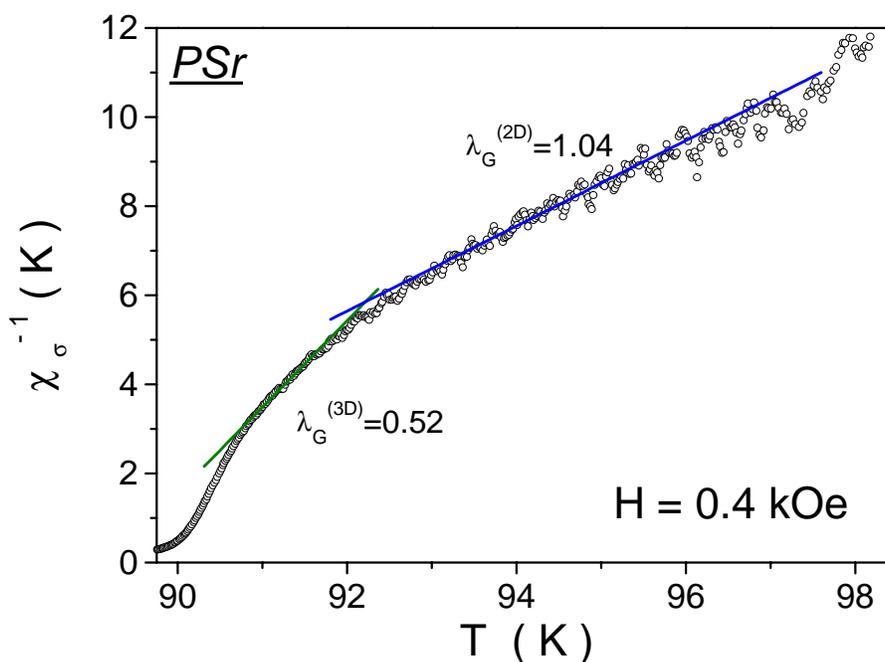
**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**



**Fig. 7.12** - Regimes gaussianos tridimensional,  $\lambda_G^{(3D)}$  e bidimensional,  $\lambda_G^{(2D)}$  identificados na amostra PY em  $H = 0.4$  kOe.

<i>PY - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></i>			<i>Flutuações Gaussianas;</i>	
			<i>3D</i>	<i>2D</i>
<i>Campos Magnéticos Aplicados</i>	<i>Inter. Temperatura (K)</i>		<i>94.77 &lt; T &lt; 95.62</i>	<i>96.30 &lt; T &lt; 99.15</i>
	----- <i>Temperatura Reduzida</i>		----- <i>0.0110 &lt; ε &lt; 0.0172</i>	----- <i>0.0254 &lt; ε &lt; 0.0581</i>
<i>H (kOe)</i>	<i>T<sub>P</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>λ<sub>G</sub><sup>(3D)</sup></i>	<i>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></i>
0	93.68	94.00	0.48 ± 0.11	1.01 ± 0.05
0.002	93.61	93.91	0.47 ± 0.05	0.92 ± 0.08
0.01	93.55	93.87	0.50 ± 0.05	0.96 ± 0.04
0.05	93.46	93.74	0.50 ± 0.07	0.95 ± 0.04
0.1	93.45	93.73	0.51 ± 0.09	0.97 ± 0.05
0.2	93.42	93.73	0.42 ± 0.08	0.99 ± 0.05
0.4	93.43	93.72	0.50 ± 0.04	1.00 ± 0.06
0.6	93.42	93.71	0.54 ± 0.05	1.00 ± 0.04
<i>Médias</i>			<i>0.49 ± 0.07</i>	<i>0.98 ± 0.05</i>

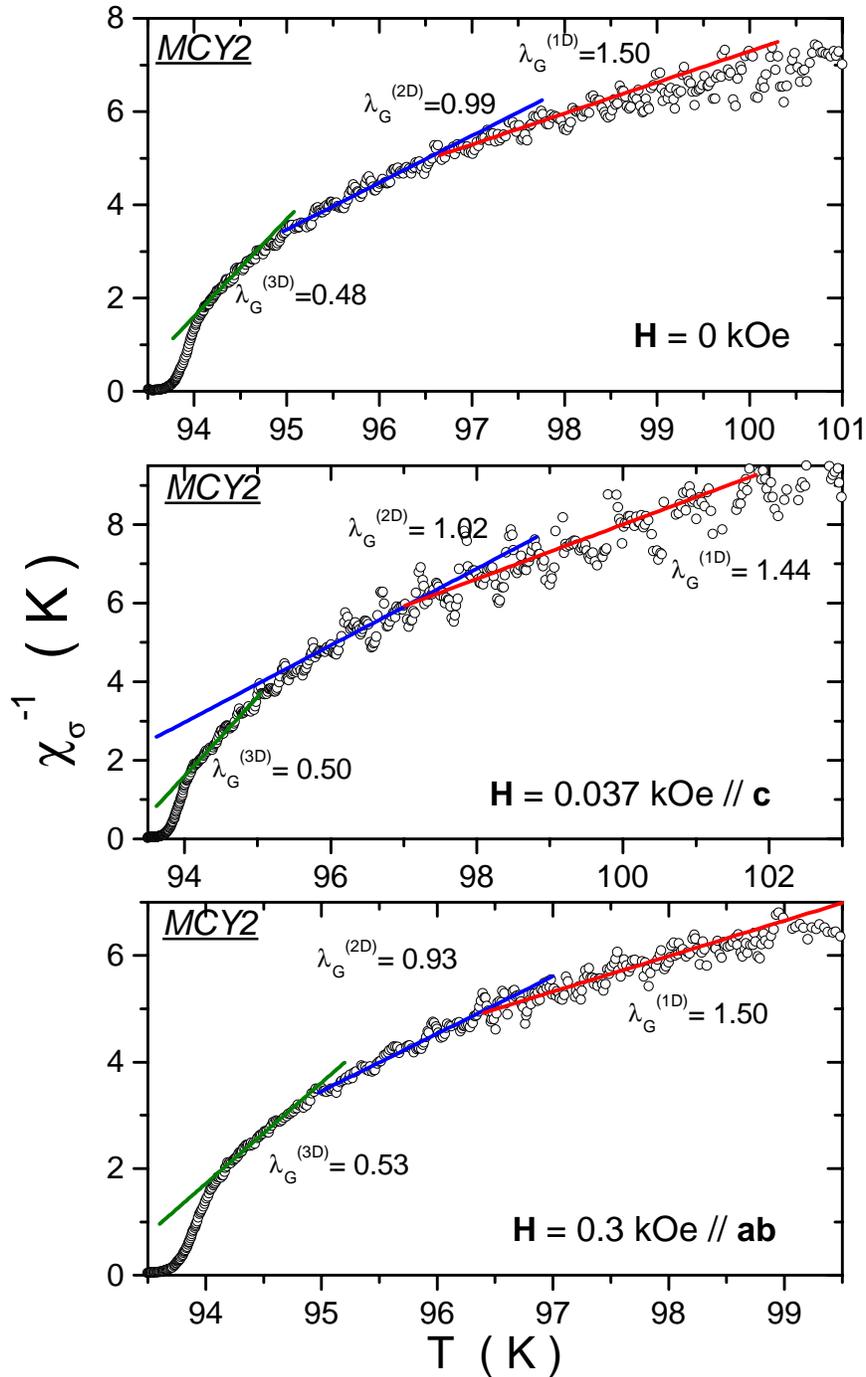
**Tab. 7.2** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas da amostra PY. Os intervalos de temperatura reduzidas  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico,  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  para cada campo aplicado.



**Fig. 7.13** - Regimes gaussianos tridimensional,  $\lambda_G^{(3D)}$  e bidimensional,  $\lambda_G^{(2D)}$  identificados na amostra PSr em  $H = 0.4$  kOe.

<i>PSr - YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></i>			<i>Flutuações Gaussianas;</i>	
			<i>2D</i>	<i>1D</i>
<i>Campos Magnéticos Aplicados</i>	<i>Inter. Temperatura (K)</i>		<i>90.82 &lt; T &lt; 91.60</i>	<i>92.40 &lt; T &lt; 96.00</i>
	<i>Temperatura Reduzida</i>		<i>0.0092 &lt; ε &lt; 0.0178</i>	<i>0.0271 &lt; ε &lt; 0.0668</i>
<i>H (kOe)</i>	<i>T<sub>P</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></i>	<i>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></i>
0	89.71	89.99	0.50 ± 0.03	0.91 ± 0.11
0.002	89.72	90.00	0.49 ± 0.02	0.93 ± 0.08
0.01	89.71	89.99	0.50 ± 0.04	1.00 ± 0.03
0.05	89.72	89.99	0.48 ± 0.03	1.00 ± 0.02
0.1	89.70	90.00	0.50 ± 0.03	1.00 ± 0.04
0.2	89.72	89.99	0.49 ± 0.04	0.99 ± 0.03
0.4	89.66	89.96	0.52 ± 0.04	1.04 ± 0.05
0.6	89.62	89.96	0.52 ± 0.05	0.95 ± 0.07
<i>Médias</i>			<i>0.50 ± 0.04</i>	<i>0.98 ± 0.05</i>

**Tab. 7.3** - Exponentes de ajuste para as flutuações gaussianas da amostra PSr. Os intervalos de temperatura reduzidas  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico,  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  para cada campo aplicado.



**Fig. 7.14** - Regimes gaussianos tridimensional  $\lambda_G^{(3D)}$ , bidimensional  $\lambda_G^{(2D)}$  e unidimensional  $\lambda_G^{(1D)}$  identificados na amostra MCY2 para  $H // ab$  e  $H // c$ .

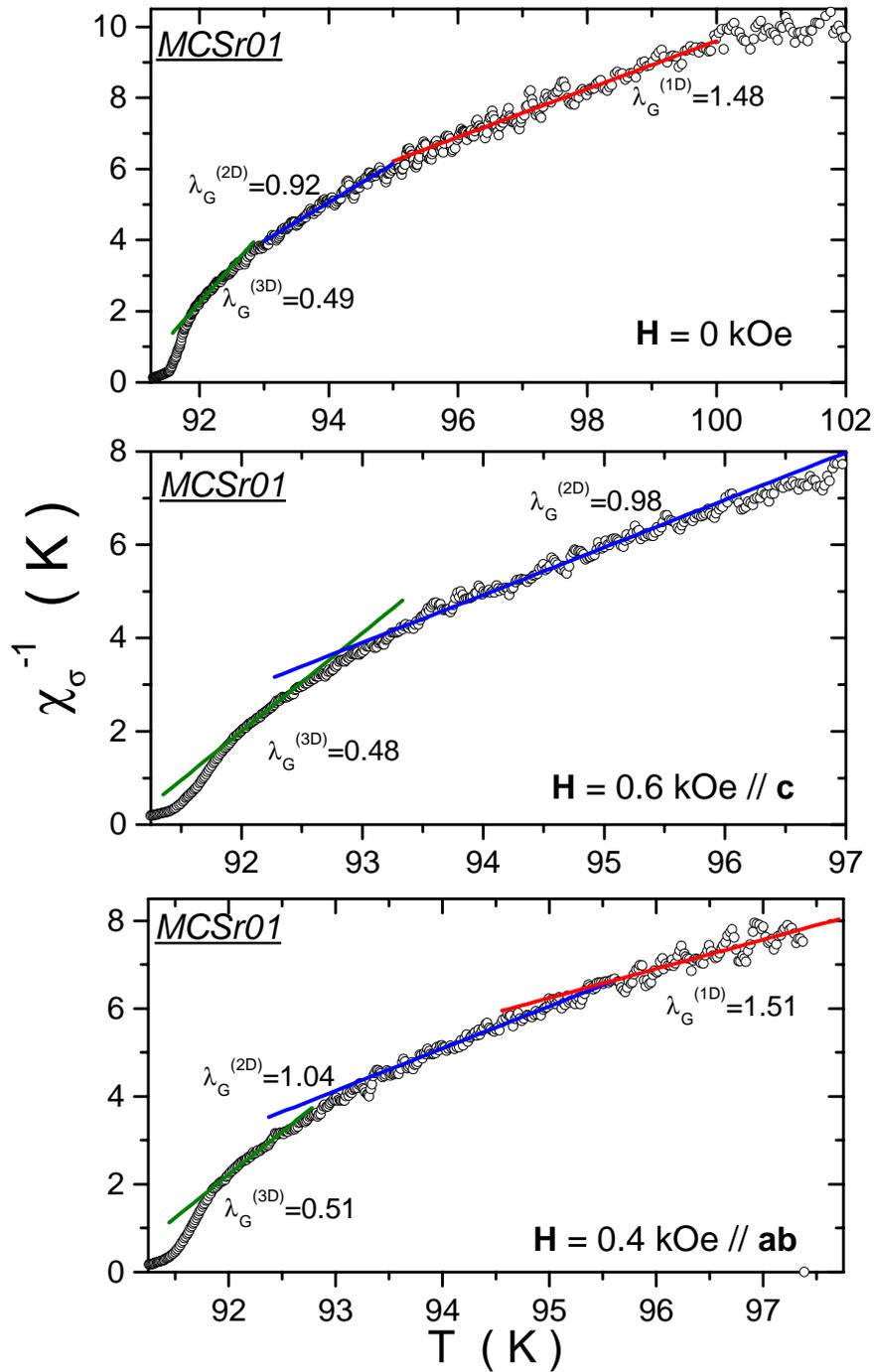
**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

<b>MCY2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // c</b>		
			<b>3D</b>	<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>94.14 &lt; T &lt; 95.39</b>	<b>95.32 &lt; T &lt; 98.12</b>	<b>96.97 &lt; T &lt; 102.16</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0053 &lt; ε &lt; 0.0208</b>	<b>0.0188 &lt; ε &lt; 0.0487</b>	<b>0.0356 &lt; ε &lt; 0.0919</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(3D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	93.65	93.78	0.48 ± 0.11	0.99 ± 0.02	1.50 ± 0.04
0.037	93.64	93.77	0.50 ± 0.04	1.02 ± 0.11	1.44 ± 0.04
0.075	93.62	93.76	0.43 ± 0.02	1.10 ± 0.03	1.57 ± 0.07
0.15	93.56	93.72	0.53 ± 0.05	1.00 ± 0.02	1.52 ± 0.02
0.175	93.56	93.68	0.44 ± 0.06	1.05 ± 0.06	1.50 ± 0.10
0.2	93.56	93.67	0.44 ± 0.03	1.00 ± 0.04	1.49 ± 0.05
0.3	93.51	93.61	0.56 ± 0.06	1.02 ± 0.06	1.56 ± 0.06
0.45	93.45	93.54	0.45 ± 0.07	0.92 ± 0.03	-----
0.6	93.41	93.49	0.47 ± 0.02	0.98 ± 0.03	1.53 ± 0.03
<b>Médias</b>			<b>0.48 ± 0.04</b>	<b>1.01 ± 0.05</b>	<b>1.54 ± 0.07</b>

**Tab. 7.4** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MCY2 para H // c. Os intervalos de temperatura reduzidas  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado.

<b>MCY2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // ab</b>		
			<b>3D</b>	<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campo Magnético Aplicado</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>94.11 &lt; T &lt; 94.93</b>	<b>94.90 &lt; T &lt; 97.10</b>	<b>96.40 &lt; T &lt; 98.25</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0054 &lt; ε &lt; 0.0139</b>	<b>0.0135 &lt; ε &lt; 0.0371</b>	<b>0.0298 &lt; ε &lt; 0.0496</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(3D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	93.65	93.78	0.48 ± 0.06	0.99 ± 0.02	1.50 ± 0.04
0.05	93.64	93.78	0.48 ± 0.08	0.96 ± 0.02	1.53 ± 0.04
0.1	93.63	93.75	0.52 ± 0.15	1.01 ± 0.03	1.56 ± 0.05
0.2	93.63	93.75	0.50 ± 0.11	1.09 ± 0.03	1.53 ± 0.04
0.3	93.61	93.74	0.53 ± 0.05	0.93 ± 0.03	1.50 ± 0.03
0.4	93.61	93.74	0.49 ± 0.04	0.98 ± 0.03	-----
0.5	93.6	93.72	0.47 ± 0.08	0.96 ± 0.02	-----
<b>Médias</b>			<b>0.50 ± 0.02</b>	<b>0.99 ± 0.05</b>	<b>1.52 ± 0.04</b>

**Tab. 7.5** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MCY2 para H // ab. Os intervalos de temperaturas reduzidas  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado.



**Fig. 7.15** - Regimes gaussianos tridimensional  $\lambda_G^{(3D)}$ , bidimensional  $\lambda_G^{(2D)}$  e unidimensional  $\lambda_G^{(1D)}$  identificados na amostra MCSr01 para  $H // ab$  e  $H // c$ .

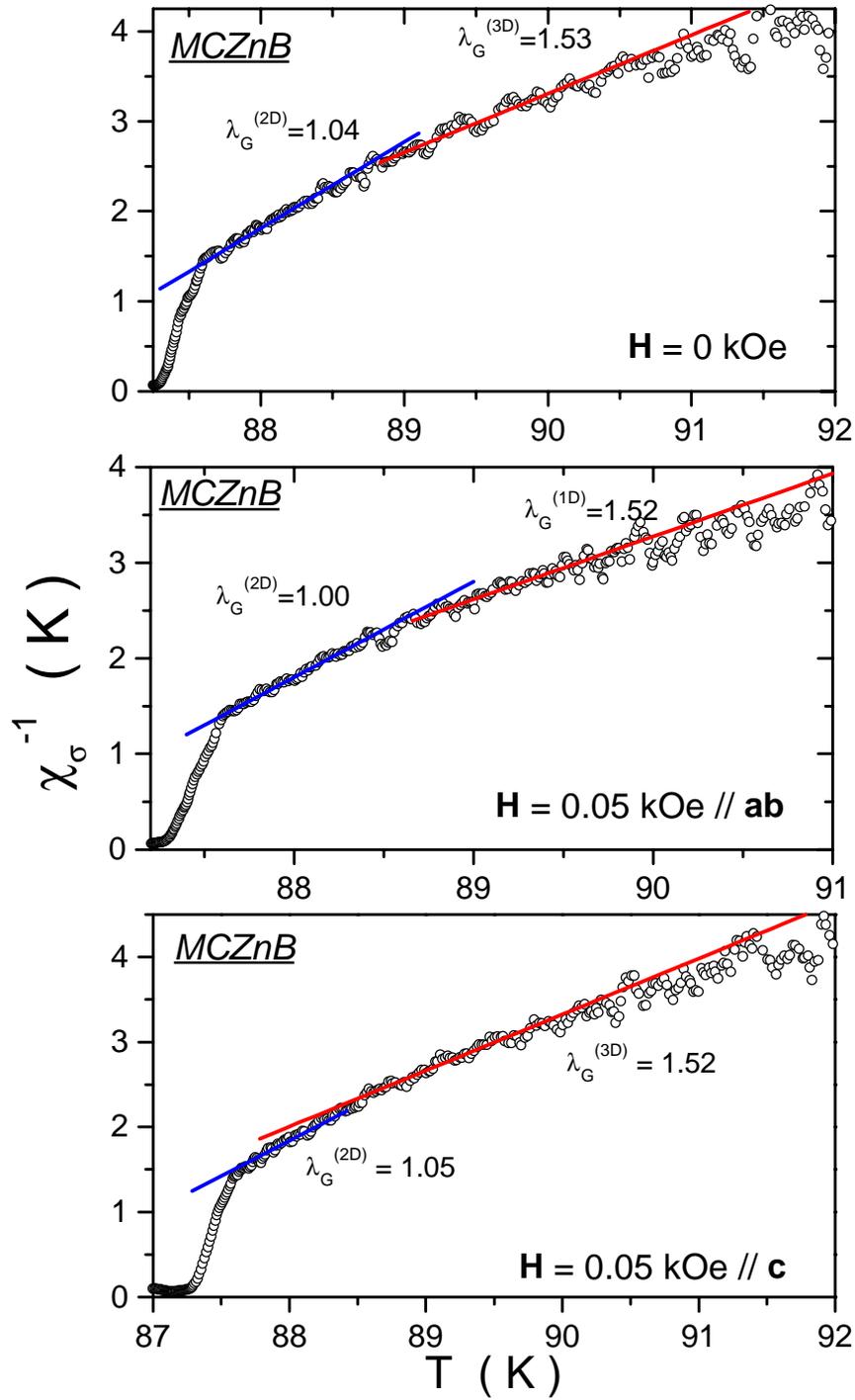
**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

<b>MCSr01 - YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // ab</b>		
			<b>3D</b>	<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>91.89 &lt; T &lt; 92.40</b>	<b>93.31 &lt; T &lt; 95.63</b>	<b>95.00 &lt; T &lt; 99.80</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0076 &lt; ε &lt; 0.0125</b>	<b>0.0217 &lt; ε &lt; 0.0481</b>	<b>0.0402 &lt; ε &lt; 0.0927</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(3D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	91.33	91.53	0.49 ± 0.03	0.92 ± 0.02	1.48 ± 0.01
0.01	91.29	91.52	0.55 ± 0.03	1.00 ± 0.02	1.49 ± 0.07
0.05	91.29	91.50	0.51 ± 0.04	0.96 ± 0.02	1.47 ± 0.05
0.1	91.27	91.47	0.51 ± 0.05	0.99 ± 0.02	1.41 ± 0.04
0.2	91.26	91.45	0.51 ± 0.04	0.99 ± 0.03	1.41 ± 0.04
0.4	91.24	91.41	0.51 ± 0.08	1.04 ± 0.02	1.51 ± 0.05
0.6	91.20	91.38	0.47 ± 0.04	0.99 ± 0.03	1.50 ± 0.07
<b>Médias</b>			<b>0.51 ± 0.02</b>	<b>0.98 ± 0.03</b>	<b>1.47 ± 0.04</b>

**Tab. 7.6** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MSr01 para H // ab. Os intervalos de temperaturas reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado.

<b>MCSr01 - YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // c</b>		
			<b>3D</b>	<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>91.96 &lt; T &lt; 92.65</b>	<b>93.15 &lt; T &lt; 95.58</b>	<b>95.00 &lt; T &lt; 99.80</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0090 &lt; ε &lt; 0.0148</b>	<b>0.0213 &lt; ε &lt; 0.0479</b>	<b>0.0402 &lt; ε &lt; 0.0927</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(3D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	91.33	91.53	0.49 ± 0.03	0.92 ± 0.02	1.48 ± 0.01
0.01	91.31	91.52	0.51 ± 0.05	1.02 ± 0.02	-----
0.05	91.31	91.51	0.54 ± 0.03	1.02 ± 0.03	-----
0.1	91.30	91.49	0.54 ± 0.02	0.95 ± 0.03	-----
0.2	91.25	91.47	0.50 ± 0.06	0.99 ± 0.02	-----
0.4	91.21	91.42	0.50 ± 0.07	0.97 ± 0.01	-----
0.6	91.14	91.37	0.48 ± 0.02	0.98 ± 0.02	-----
<b>Médias</b>			<b>0.51 ± 0.02</b>	<b>0.98 ± 0.03</b>	<b>1.48 ± 0.01</b>

**Tab. 7.7** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MSr01 para H // c. Os intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado.



**Fig. 7.16** - Regimes gaussianos bidimensional  $\lambda_G^{(2D)}$  e unidimensional  $\lambda_G^{(1D)}$  identificados na amostra MCZnB para  $H // ab$  e  $H // c$ .

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

<b>MCZn2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // ab</b>	
			<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>87.60 &lt; T &lt; 88.46</b>	<b>88.56 &lt; T &lt; 89.81</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0047 &lt; ε &lt; 0.0146</b>	<b>0.0162 &lt; ε &lt; 0.0300</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	87.20	87.32	0.92 ± 0.02	1.48 ± 0.01
0.01	87.19	87.32	0.98 ± 0.03	1.52 ± 0.02
0.05	87.19	87.32	1.00 ± 0.01	1.52 ± 0.02
0.1	87.19	87.31	0.99 ± 0.02	1.58 ± 0.03
0.2	87.19	87.27	1.03 ± 0.01	1.47 ± 0.02
0.4	87.16	87.26	0.98 ± 0.02	1.49 ± 0.03
0.6	87.15	87.24	1.05 ± 0.01	1.52 ± 0.02
<b>Médias</b>			<b>0.99 ± 0.04</b>	<b>1.54 ± 0.03</b>

**Tab. 7.8** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MZnB para H // ab. Os intervalos de temperaturas reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado

<b>MCZn2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Gaussianas; H // c</b>	
			<b>2D</b>	<b>1D</b>
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>87.61 &lt; T &lt; 88.51</b>	<b>88.31 &lt; T &lt; 90.17</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0048 &lt; ε &lt; 0.0168</b>	<b>0.0128 &lt; ε &lt; 0.0341</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(2D)</sup></b>	<b>λ<sub>G</sub><sup>(1D)</sup></b>
0	87.20	87.32	1.04 ± 0.02	1.53 ± 0.02
0.01	87.19	87.30	1.01 ± 0.02	1.51 ± 0.02
0.05	87.18	87.30	1.05 ± 0.02	1.52 ± 0.03
0.1	87.16	87.26	0.94 ± 0.02	1.47 ± 0.04
0.2	87.13	87.24	0.99 ± 0.02	1.57 ± 0.02
0.4	87.05	87.16	1.00 ± 0.02	1.49 ± 0.03
0.6	86.98	87.07	0.99 ± 0.02	1.52 ± 0.02
<b>Médias</b>			<b>0.99 ± 0.05</b>	<b>1.52 ± 0.03</b>

**Tab. 7.9** - Expoentes de ajuste para as flutuações gaussianas na amostra MZnB para H // c. Os intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  são calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico obtido em cada campo magnético aplicado.

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

### 7.3.2.1.2 - Discussão dos Resultados

A análise dos resultados foi feita seguindo as considerações da teoria AL, introduzida na seção 4.2.1. De acordo com esta teoria, os expoentes gaussianos são dados por:

$$\lambda = 2 - \frac{d}{2} \quad (7.9)$$

onde  $d$  representa a dimensionalidade relevante ao espectro de flutuações.

Assim, o regime gaussiano mais próximo de  $T_c$ , caracterizado pelo expoente  $\lambda_G^{(3D)} = 0.49 \pm 0.07$  na amostra PY,  $\lambda_G^{(3D)} = 0.50 \pm 0.04$  na amostra PSr,  $\lambda_G^{(3D)} = 0.48 \pm 0.04$  na amostra MCY2 ( $H // c$ ),  $\lambda_G^{(3D)} = 0.51 \pm 0.02$  na amostra MCY2 ( $H // ab$ ),  $\lambda_G^{(3D)} = 0.51 \pm 0.02$  na amostra MCSr01 ( $H // ab$ ) e  $\lambda_G^{(3D)} = 0.51 \pm 0.02$  para amostra MCSr01; ( $H // c$ ), corresponde a um regime homogêneo de flutuações tridimensionais (3D), pois segundo a eq. (7.9) se deduz que a dimensão do espaço onde as flutuações são definidas é  $d = 3$ .

Em temperaturas mais elevadas, os expoentes  $\lambda_G^{(2D)} = 0.98 \pm 0.05$  na amostra PY,  $\lambda_G^{(2D)} = 0.98 \pm 0.05$  na amostra PSr,  $\lambda_G^{(2D)} = 1.01 \pm 0.05$  na amostra MCY2 ( $H // c$ ),  $\lambda_G^{(2D)} = 0.99 \pm 0.05$  na amostra MCY2 ( $H // ab$ ),  $\lambda_G^{(2D)} = 0.98 \pm 0.03$  na amostra MCSr01 ( $H // ab$ ) e  $\lambda_G^{(2D)} = 0.98 \pm 0.03$  para amostra MCSr01; ( $H // c$ ),  $\lambda_G^{(2D)} = 0.99 \pm 0.04$  na amostra MCZnB ( $H // ab$ ) e  $\lambda_G^{(2D)} = 0.99 \pm 0.05$  para amostra MCZnB; ( $H // c$ ), caracterizam um regime homogêneo de flutuações definidas num espaço bidimensional (2D) relacionado com o estabelecimento de flutuações nos planos de  $\text{CuO}_2$ , pois estes valores apresentados por  $\lambda$  permite deduzir que  $d = 2$  da eq. (7.9).

Apesar das grandes incertezas que são inerentes ao método de análise em temperaturas muito afastadas de  $T_c$ , onde os efeitos devido as flutuações são pequenos, podemos ressaltar que a observação sistemática dos expoentes  $\lambda_G^{(1D)} = 1.54 \pm 0.07$  para  $H // c$  e  $\lambda_G^{(1D)} = 1.51 \pm 0.02$  para  $H // c$  na amostra MCY2,  $\lambda_G^{(1D)} = 1.47 \pm 0.04$  para  $H // ab$  na amostra MCSr01 e  $\lambda_G^{(1D)} = 1.54 \pm 0.03$  para  $H // ab$  e  $\lambda_G^{(1D)} = 1.52 \pm 0.03$  para  $H // c$  na amostra MCZnB, correspondem a um regime homogêneo de flutuações unidimensionais (1D), pois segundo a eq. (7.9) se deduz que a dimensão do espaço onde as flutuações são definidas é  $d = 1$ .

Os regimes gaussianos (3D) e (2D) observados em nossas amostras também foram obtidos em monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,<sup>[145]</sup> policristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{D}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0.5$  e  $1.0$ ) e ( $D = \text{Sr}$  ou  $\text{Ca}$ )<sup>[130]</sup> e em outros HTSC.<sup>[18,104,113]</sup>

De acordo com os dados apresentados pelas tab. 7.2 - 7.7, podemos concluir que os regimes dominados por flutuações gaussianas se mantêm praticamente inalterados frente a aplicação de baixos campos magnéticos. Por outro lado, a observação do regime  $\lambda_G^{(3D)}$  na amostra MCZnB bem como do regime  $\lambda_G^{(1D)}$  para  $H // c$  na amostra MCSr01 não ocorreu de maneira sistemática portanto, os valores para os expoentes relativos a estes regimes não foram apresentados e discutidos.

## **Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

A observação de regimes gaussianos onde as flutuações se desenvolvem em um espaço com topologia fractal, seção 4.2.3, em nossas amostras também se enquadra na situação dos regimes discutidos no parágrafo anterior.

### **7.3.2.2 - Flutuações Críticas**

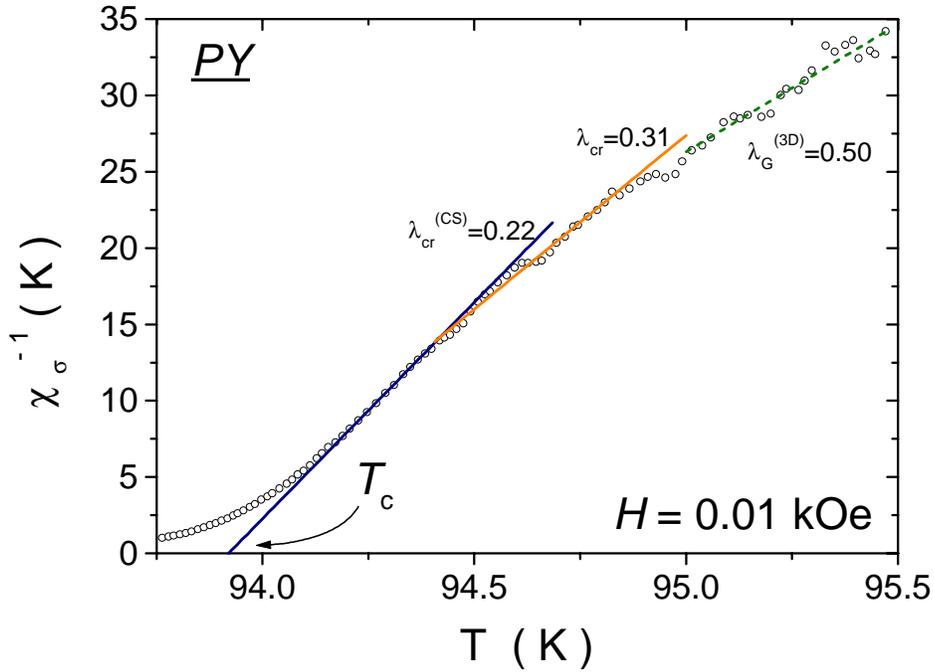
#### **7.3.2.2.1 - Análise dos Resultados**

Analisando as *fig. 7.17 à 7.19*, percebemos que ao decrescermos a temperatura em direção a  $T_p$  observamos uma mudança nítida no comportamento do regime de flutuações de nossas amostras ou seja, o regime de flutuações deixa de ser descrito por um comportamento gaussiano e passa a apresentar um comportamento genuinamente crítico representado pelos expoente  $\lambda_{cr}^{(2)}$ ,  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  e  $\lambda_{cr}^{(1)}$ . Em geral, observa-se a ocorrência de um "crossover" de um regime gaussiano  $\lambda_G^{(3D)} \approx 0.50$  para um regime crítico com expoente  $\lambda_{cr}^{(2)} \approx 0.33$  nas amostras estudadas. Entretanto, exceções a esta regra são observadas.

Segundo as *fig. 7.17 a 7.21*, o valor de  $T_c(H)$  é obtido a partir da extrapolação do comportamento linear dos regimes críticos assintóticos mais próximos de  $T_p$ .

De acordo com as *tab. 7.10 e 7.11*, notamos que a aplicação de campo magnético,  $H \leq 0.6$  kOe, não afeta a estabilidade dos expoentes  $\lambda_{cr}^{(2)}$  e  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  nas amostras policristalinas PY e PSr. Por outro lado, nas amostras monocristalinas MCY2, MCSr01 e MCZn2 os regimes  $\lambda_{cr}^{(1)}$  e  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  mostram-se fortemente afetados pela aplicação de campo magnético (veja as *tab. 7.12 a 7.17*). Particularmente, os resultados mostrados pelas *tab. 7.14 (MCSr01; H // ab)*, *7.15 (MCSr01; H // c)* e *tab. 7.17 (MCZnB; H // c)*, sugerem que com a elevação do valor do campo magnético aplicado o regime crítico representado pelo expoente  $\lambda_{cr}^{(1)}$  sofre um crossover para um regime representado pelo expoente  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  e para campos magnéticos mais elevados este regime desaparece, restando assim, apenas o regime crítico  $\lambda_{cr}^{(2)}$ , que dos três é o mais robusto frente a aplicação de campos magnéticos, conforme observado por Costa et al<sup>[145]</sup> em um monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

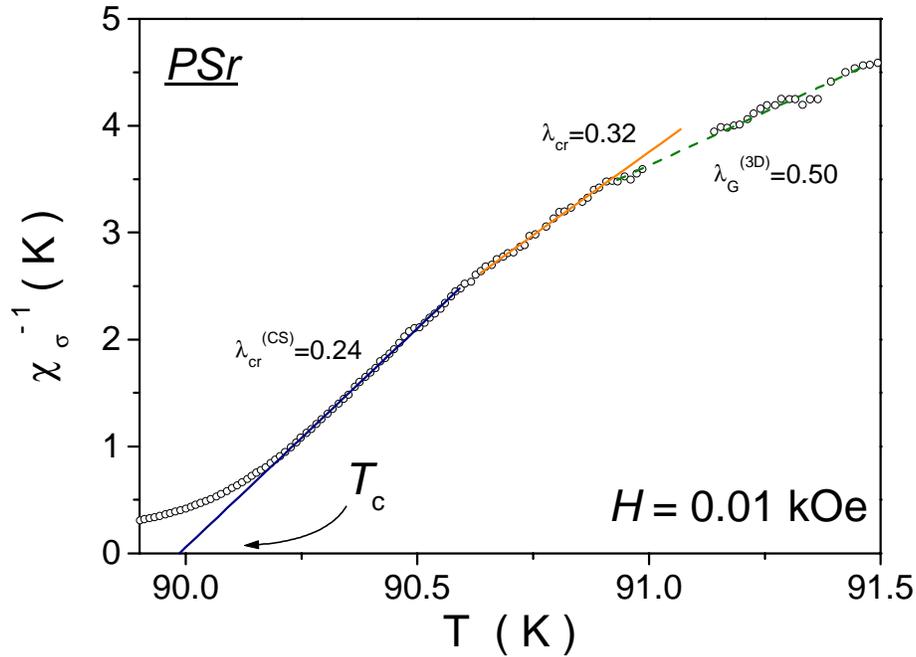


**Fig. 7.17** - Regimes críticos identificados na amostra PY em  $H = 0.01$  kOe

<b>PY- <math>YBa_2Cu_3O_{7-\delta}</math></b>			<b>Flutuações Críticas</b>	
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b><math>93.94 &lt; T &lt; 94.60</math></b>	<b><math>94.40 &lt; T &lt; 95.02</math></b>
	-----		-----	-----
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b><math>0.0021 &lt; \epsilon &lt; 0.0064</math></b>	<b><math>0.0071 &lt; \epsilon &lt; 0.0109</math></b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b><math>T_P(H)</math> (K)</b>	<b><math>T_c(H)</math> (K)</b>	<b><math>\lambda_{cr}^{(CS)}</math></b>	<b><math>\lambda_{cr}^{(2)}</math></b>
0	93.68	94.00	$0.24 \pm 0.03$	$0.36 \pm 0.03$
0.002	93.61	93.91	$0.25 \pm 0.02$	$0.35 \pm 0.05$
0.01	93.55	93.87	$0.22 \pm 0.03$	$0.31 \pm 0.03$
0.05	93.46	93.74	$0.24 \pm 0.03$	$0.34 \pm 0.02$
0.1	93.45	93.73	$0.24 \pm 0.05$	$0.36 \pm 0.04$
0.2	93.42	93.73	$0.24 \pm 0.05$	$0.37 \pm 0.04$
0.4	93.43	93.72	$0.25 \pm 0.03$	$0.37 \pm 0.05$
0.6	93.42	93.71	$0.27 \pm 0.04$	$0.37 \pm 0.04$
<b>Médias</b>			<b><math>0.24 \pm 0.04</math></b>	<b><math>0.35 \pm 0.04</math></b>

**Tab. 7.10** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra PY com intervalos de temperatura reduzida  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.

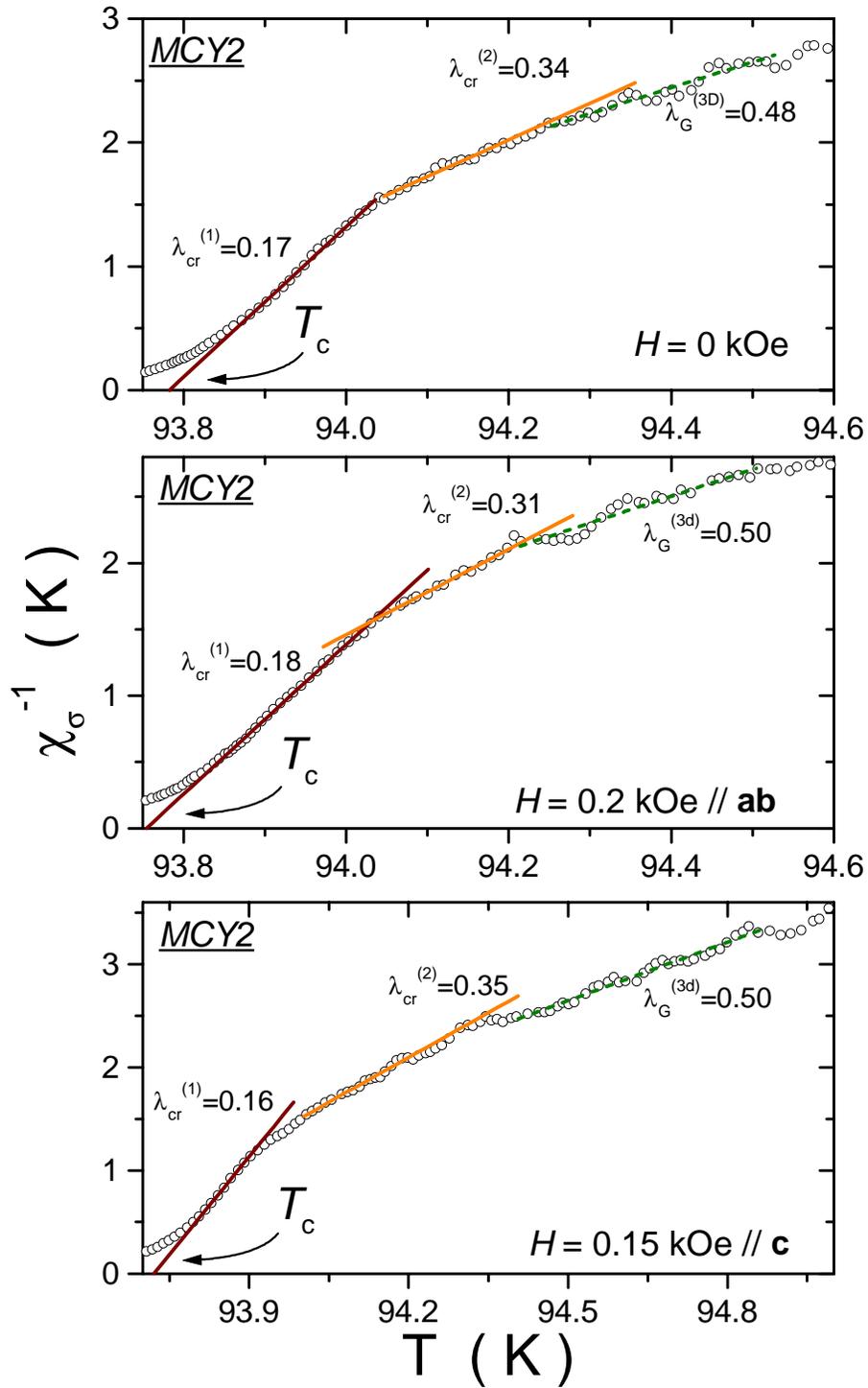
**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**



**Fig. 7.18** - Regimes críticos identificados na amostra PSr em  $H = 0.01$  kOe

<i>PSr - YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></i>			<i>Flutuações Críticas</i>	
<i>Campos Magnéticos Aplicados</i>	<i>Inter. Temperatura (K)</i>		<i>90.22 &lt; T &lt; 90.62</i>	<i>90.58 &lt; T &lt; 90.92</i>
	<i>Temperatura Reduzida</i>		<i>0.0026 &lt; ε &lt; 0.0069</i>	<i>0.0066 &lt; ε &lt; 0.0103</i>
<i>H (kOe) // c</i>	<i>T<sub>P</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>λ<sub>cr</sub><sup>(CS)</sup></i>	<i>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></i>
0	89.71	89.99	0.26 ± 0.04	0.33 ± 0.03
0.002	89.72	90.00	0.25 ± 0.02	0.35 ± 0.02
0.01	89.71	89.99	0.24 ± 0.03	0.32 ± 0.04
0.05	89.72	90.00	0.25 ± 0.02	0.34 ± 0.05
0.1	89.70	90.00	0.24 ± 0.05	0.34 ± 0.06
0.2	89.72	89.99	0.25 ± 0.06	0.35 ± 0.02
0.4	89.66	89.96	0.26 ± 0.03	0.37 ± 0.05
0.6	89.62	89.96	0.26 ± 0.02	0.31 ± 0.03
<i>Médias</i>			<b>0.25 ± 0.04</b>	<b>0.34 ± 0.04</b>

**Tab. 7.11** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra PSr com intervalos de temperatura reduzidas  $\epsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.



**Fig. 7.19** - Regimes críticos identificados na amostra MCY2 em  $H = 0, 0.15$  kOe ( $H // c$ ) e  $0.2$  kOe ( $H // ab$ ).

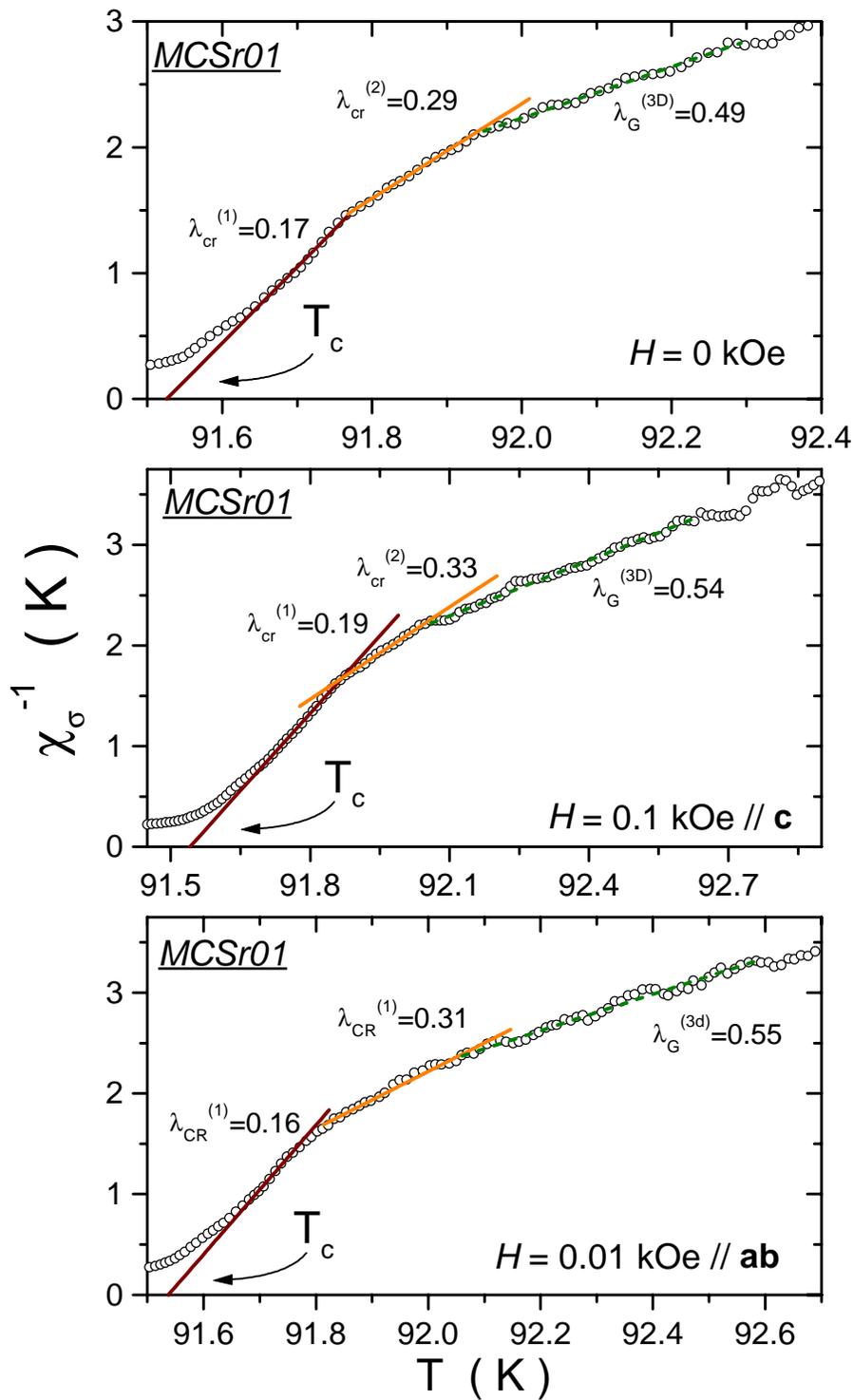
**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

<b>MCY2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // ab</b>	
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>93.82 &lt; T &lt; 94.13</b>	<b>93.99 &lt; T &lt; 94.40</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0020 &lt; ε &lt; 0.0053</b>	<b>0.0042 &lt; ε &lt; 0.0082</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	93.65	93.78	0.17 ± 0.04	0.34 ± 0.06
0.05	93.64	93.78	0.17 ± 0.04	0.35 ± 0.06
0.1	93.63	93.75	0.19 ± 0.03	0.36 ± 0.05
0.2	93.63	93.75	0.18 ± 0.05	0.31 ± 0.06
0.3	93.61	93.74	0.19 ± 0.04	0.32 ± 0.05
0.4	93.61	93.74	0.18 ± 0.04	0.30 ± 0.03
0.5	93.60	93.72	0.19 ± 0.03	0.31 ± 0.05
<b>Médias</b>			<b>0.18 ± 0.01</b>	<b>0.33 ± 0.02</b>

**Tab. 7.12** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCY2 (H // ab) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.

<b>MCY2 - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // c</b>	
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>93.81 &lt; T &lt; 94.04</b>	<b>93.60 &lt; T &lt; 94.47</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0020 &lt; ε &lt; 0.0053</b>	<b>0.0020 &lt; ε &lt; 0.0109</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	93.65	93.78	0.17 ± 0.04	0.34 ± 0.06
0.037	93.64	93.77	0.17 ± 0.03	-----
0.075	93.62	93.76	0.16 ± 0.05	0.31 ± 0.03
0.15	93.56	93.72	0.16 ± 0.05	0.35 ± 0.05
0.175	93.56	93.68	-----	0.35 ± 0.05
0.2	93.56	93.67	-----	0.35 ± 0.05
0.3	93.51	93.61	-----	0.38 ± 0.03
0.45	93.45	93.54	-----	0.35 ± 0.05
0.6	93.41	93.49	-----	0.32 ± 0.02
<b>Médias</b>			<b>0.17 ± 0.01</b>	<b>0.34 ± 0.02</b>

**Tab. 7.13** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCY2 (H // c) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.



**Fig. 7.20** - Regimes críticos identificados no MCSr01 em  $H = 0, 0.1\text{kOe}$  ( $H // c$ ) e  $0.01$  kOe ( $H // ab$ )

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

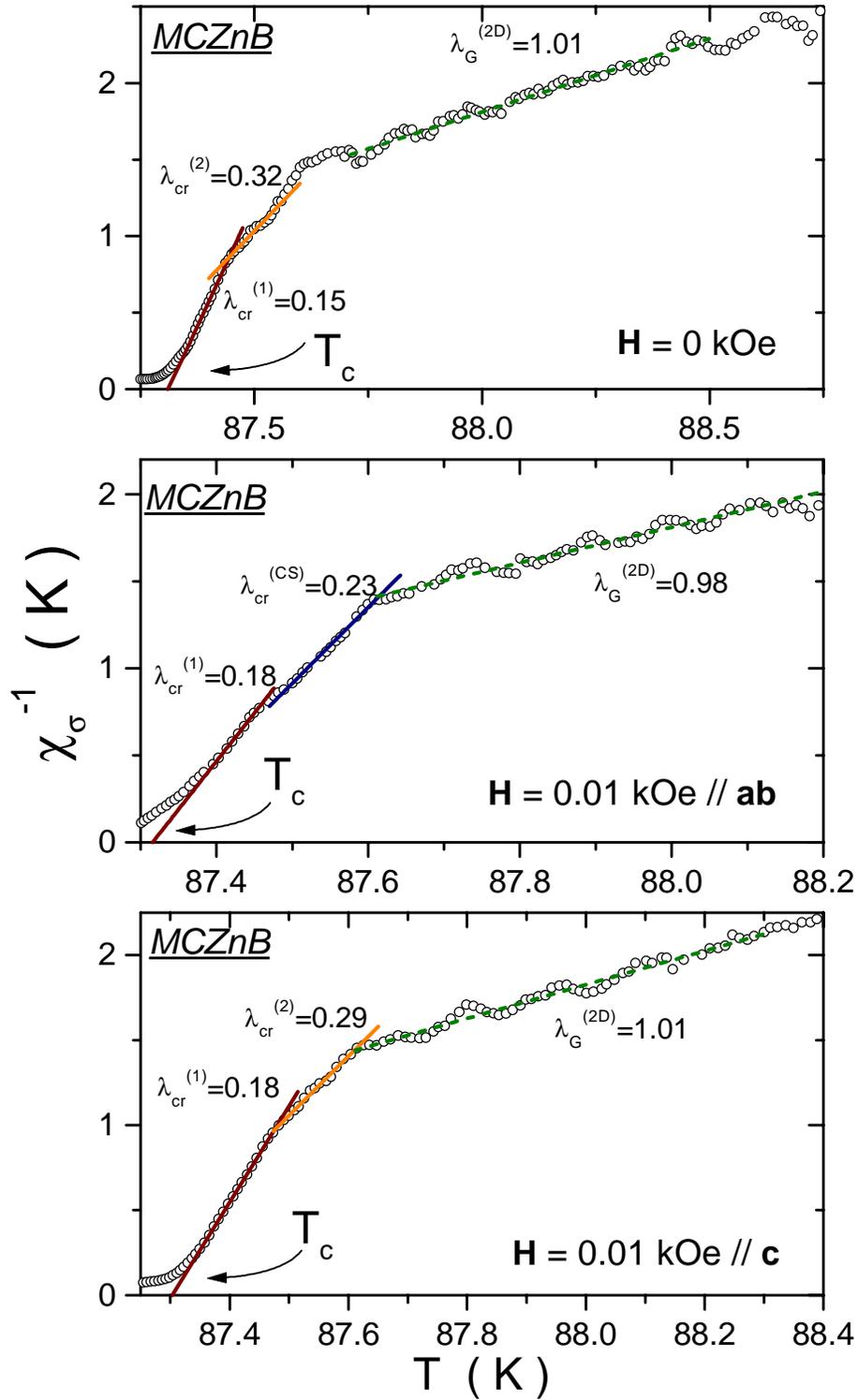
<b>MCSr01 - YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // ab</b>		
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>91.64 &lt; T &lt; 91.80</b>	<b>91.55 &lt; T &lt; 91.86</b>	<b>91.77 &lt; T &lt; 92.11</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0038 &lt; ε &lt; 0.0056</b>	<b>0.0038 &lt; ε &lt; 0.0068</b>	<b>0.0063 &lt; ε &lt; 0.0095</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(CS)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	91.33	91.53	0.17 ± 0.04	-----	0.29 ± 0.07
0.01	91.29	91.52	0.16 ± 0.05	-----	0.31 ± 0.07
0.05	91.29	91.50	0.19 ± 0.05	-----	0.29 ± 0.06
0.1	91.27	91.47	-----	0.20 ± 0.04	0.33 ± 0.08
0.2	91.26	91.45	-----	0.21 ± 0.05	0.32 ± 0.08
0.4	91.24	91.41	-----	0.24 ± 0.04	0.38 ± 0.07
0.6	91.20	91.38	-----	0.24 ± 0.03	0.30 ± 0.05
<b>Médias</b>			<b>0.17 ± 0.01</b>	<b>0.22 ± 0.02</b>	<b>0.32 ± 0.03</b>

**Tab. 7.14** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCSr01 (H // ab) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.

<b>MCSr01 - YBa<sub>1.9</sub>Sr<sub>0.1</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // c</b>		
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>91.69 &lt; T &lt; 91.87</b>	<b>91.64 &lt; T &lt; 91.89</b>	<b>91.82 &lt; T &lt; 92.11</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0042 &lt; ε &lt; 0.0062</b>	<b>0.0055 &lt; ε &lt; 0.0075</b>	<b>0.0062 &lt; ε &lt; 0.0099</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(CS)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	91.33	91.53	0.17 ± 0.04	-----	0.29 ± 0.03
0.01	91.31	91.52	0.18 ± 0.06	-----	0.29 ± 0.04
0.05	91.31	91.51	0.19 ± 0.05	-----	0.31 ± 0.05
0.1	91.30	91.49	0.19 ± 0.05	-----	0.33 ± 0.04
0.2	91.25	91.47	0.19 ± 0.04	-----	0.30 ± 0.04
0.4	91.21	91.42	-----	0.24 ± 0.03	0.35 ± 0.06
0.6	91.14	91.37	-----	0.27 ± 0.02	0.33 ± 0.04
<b>Médias</b>			<b>0.18 ± 0.01</b>	<b>0.26 ± 0.02</b>	<b>0.31 ± 0.02</b>

**Tab. 7.15** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCSr01(H // c) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**



**Fig. 7.21** - Regimes críticos identificados na amostra MCZnB em  $H = 0$  e  $0.01$  kOe para  $H // c$  e  $ab$

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

<b>MCZnB - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // ab</b>		
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>87.36 &lt; T &lt; 87.47</b>	<b>87.31 &lt; T &lt; 87.64</b>	<b>87.45 &lt; T &lt; 87.56</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0018 &lt; ε &lt; 0.0032</b>	<b>0.0017 &lt; ε &lt; 0.0052</b>	<b>0.0029 &lt; ε &lt; 0.0041</b>
<b>H (kOe) // ab</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(CS)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	87.20	87.32	0.15 ± 0.03	-----	0.32 ± 0.01
0.01	87.19	87.32	0.18 ± 0.02	0.23 ± 0.02	-----
0.05	87.19	87.32	0.17 ± 0.02	0.24 ± 0.02	-----
0.1	87.19	87.31	0.19 ± 0.05	0.26 ± 0.05	-----
0.2	87.19	87.27	-----	0.23 ± 0.02	-----
0.4	87.16	87.26	-----	0.24 ± 0.02	-----
0.6	87.15	87.24	-----	0.25 ± 0.02	-----
<b>Médias</b>			<b>0.17 ± 0.01</b>	<b>0.24 ± 0.01</b>	<b>0.32 ± 0.01</b>

**Tab. 7.16** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCZnB (H // ab) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.<sup>[132]</sup>

<b>MCZnB - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub></b>			<b>Flutuações Críticas; H // c</b>		
<b>Campos Magnéticos Aplicados</b>	<b>Inter. Temperatura (K)</b>		<b>87.35 &lt; T &lt; 87.49</b>	<b>87.30 &lt; T &lt; 87.49</b>	<b>87.21 &lt; T &lt; 87.64</b>
	<b>Temperatura Reduzida</b>		<b>0.0019 &lt; ε &lt; 0.0036</b>	<b>0.0016 &lt; ε &lt; 0.0038</b>	<b>0.0026 &lt; ε &lt; 0.0053</b>
<b>H (kOe) // c</b>	<b>T<sub>P</sub>(H) (K)</b>	<b>T<sub>c</sub>(H) (K)</b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(1)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(CS)</sup></b>	<b>λ<sub>cr</sub><sup>(2)</sup></b>
0	87.20	87.32	0.15 ± 0.05	-----	0.32 ± 0.01
0.01	87.19	87.30	0.18 ± 0.04	-----	0.29 ± 0.05
0.05	87.18	87.30	0.18 ± 0.04	-----	0.33 ± 0.02
0.1	87.16	87.26	-----	0.21 ± 0.02	0.33 ± 0.04
0.2	87.13	87.24	-----	0.21 ± 0.03	0.31 ± 0.05
0.4	87.05	87.16	-----	0.25 ± 0.05	0.36 ± 0.05
0.6	86.98	87.07	-----	-----	0.34 ± 0.03
<b>Médias</b>			<b>0.17 ± 0.01</b>	<b>0.22 ± 0.02</b>	<b>0.33 ± 0.02</b>

**Tab. 7.17** - Regimes de flutuações críticas identificados na amostra MCZnB (H // c) com intervalos de temperatura reduzidas  $\varepsilon = (T - T_c)/T_c$  calculados utilizando o valor de  $T_c(H)$  determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico correspondente a cada valor de campo magnético aplicado.<sup>[132]</sup>

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

### 7.3.2.2.2 - Discussão dos Resultados

No intervalo de temperaturas onde o comportamento das flutuações na magnetocondutividade é caracterizado por expoentes críticos, a teoria de campo médio perde a sua validade e cede lugar a teoria de "scaling" estático e dinâmico apresentada na seção 4.2.4. De acordo com esta teoria, as flutuações genuinamente críticas são descritas com a utilização da seguinte equação:

$$\lambda = \nu(2 + z - d - \eta) \quad (7.10)$$

onde  $\nu$  é o expoente crítico para o comprimento de coerência,  $z$  é o expoente dinâmico,  $d$  é a dimensionalidade e  $\eta$  é o expoente da função de correlação para o parâmetro de ordem.

O expoente  $\lambda_{cr}^{(2)}$  encontrado no regime de flutuações de nossas amostras é interpretado utilizando-se a teoria de "scaling" estático e dinâmico.<sup>[108]</sup> Segundo as previsões do modelo 3D-XY, os expoentes estáticos são dados por  $\nu = 0.67$  e  $\eta = 0.03$ .<sup>[147]</sup> Supondo-se, ademais, que a dinâmica crítica é dada pelo modelo-E de Hohenberg e Halperin,<sup>[148]</sup> para o qual  $z = 1.5$ , obtemos a partir da equação acima, com  $d = 3$ , o valor para o expoente crítico,  $\lambda \approx 0.32$ , o qual reproduz com boa precisão o valor experimental obtido para  $\lambda_{cr}^{(2)}$ . Assim, nesta região de temperatura, o parâmetro de ordem complexo GL tem duas componentes, e sugere que a simetria do parâmetro de ordem do tipo puro (onda- $s$  ou onda- $d$ ). Este "scaling" 3D-XY-E parece ser uma característica universal dos supercondutores  $\text{RBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , sendo observado em várias amostras.<sup>[18,103,104,113,130,154]</sup>

Nas temperaturas mais próximas a  $T_p$  e em baixos campos aplicados, verificou-se a existência de um regime crítico representado pelo expoente  $\lambda_{cr}^{(1)}$ . Este expoente foi observado originalmente em um monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .<sup>[145]</sup> Outros expoentes menores que  $\lambda = 0.31$  também foram observados, como por exemplo, no  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  texturizado ( $\lambda = 0.20$ ),<sup>[149]</sup>  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  policristalino ( $\lambda = 0.25$ )<sup>[150]</sup> e no  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  policristalino ( $\lambda = 0.27$ ) e ( $\lambda = 0.17$ ).<sup>[151]</sup> A variedade de valores para os expoentes críticos identificados no regime de flutuações além do 3D-XY não são previstos por nenhuma teoria de transição crítica, o que dificulta a sua interpretação física. Uma das hipóteses propostas e que estes intervalos denominados de super críticos na transição supercondutora correspondam a regimes precursores de uma transição fracamente de primeira ordem.<sup>[145, 152]</sup> Em uma transição de primeira ordem, o valor efetivo para o expoente crítico seria  $\lambda = 0$ . Comportamentos em leis de potência com expoentes pequenos sugerem a aproximação a uma transição descontínua. Porém, a descontinuidade nas medidas de condutividade elétrica não é observada, provavelmente em virtude da estreiteza do intervalo de temperatura relevante.

O possível caráter fracamente de primeira ordem da transição supercondutora tem sido discutido teoricamente como sendo uma consequência das flutuações do campo eletromagnético,<sup>[152]</sup> porém, várias alternativas têm sido propostas.

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

Num dos casos, a aproximação à transição de primeira ordem se efetuaria dentro do cenário descrito pelo modelo 3D-XY estático, porém com uma evolução contínua na dinâmica, de modo que o expoente  $z$  assumisse sucessivamente valores menores dados por<sup>[152]</sup>

$$z = 1 + \left( \frac{3}{2m} \right) \quad (7.11)$$

onde  $m = 3, 4, 5, \dots$

Assim,  $m = 3$  corresponde a  $z = 1.5$  e  $\lambda \approx 0.32$ , que é o comportamento previsto pela teoria de "scaling" dinâmico para a transição supercondutora. A expressão permite então prever diferentes valores para  $\lambda$ , os quais tem sido identificados em diferentes amostras.

Então, seguindo esta sugestão, teríamos que os expoentes  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.18 \pm 0.01$  ( $H // ab$ ) e  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.17 \pm 0.01$  ( $H // c$ ) observados no regime de flutuações da amostra MCY2,  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.17 \pm 0.01$  ( $H // ab$ ) e  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.18 \pm 0.01$  ( $H // c$ ) igualmente observados para amostra MCSr01 e  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.17 \pm 0.01$  ( $H // ab$ ) e  $\bar{\lambda}_{cr}^{(1)} = 0.17 \pm 0.01$  ( $H // c$ ) da mesma forma para a amostra MCZnB podem ser interpretados empregando-se a eq. (7.11) e adotando-se  $m = 5$  e o expoente dinâmico  $z = 1.3$ , o que resulta em um expoente crítico  $\lambda \approx 0.18$ .

Por outro lado, o expoente crítico  $\lambda_{cr}^{(cs)}$  encontrado no regime de flutuações das amostras PY, PSr, MCSr01 e MCZnB de acordo com a discussão do parágrafo anterior, este expoente representaria um comportamento intermediário entre os regimes  $\lambda \approx 0.31$  e  $\lambda \approx 0.18$  ou seja, um indicativo de "crossover" entre os dois regimes.

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

### 7.3.3 - Flutuações na Fase Paracoerente ( $T_{c0} < T < T_c$ )

Na seção 4.4 foi considerada que a transição de um supercondutor granular ocorre num processo constituído por duas etapas. As transições resistivas das amostras PY, PSr, MCSr01 e MCZnB, *fig. 7.1, 7.3 e 7.4*, confirmam esta suposição. Nesta seção é feita a análise das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica na região paracoerente ( $T_{c0} < T < T_c$ ). Nesta região, a condutividade é dominada por flutuações na fase do parâmetro de ordem supercondutor em diferentes grãos. Os efeitos de desordem e frustração, induzidos pelo campo magnético, têm grande importância no regime de transição ao estado de resistência nula, caracterizando o comportamento do sistema mediante uma transição paracoerente-coerente,<sup>[113]</sup> que ocorre em  $T_{c0}$  e que é um genuíno fenômeno termodinâmico de transição de fase.

#### 7.3.3.1 - Método de Análise

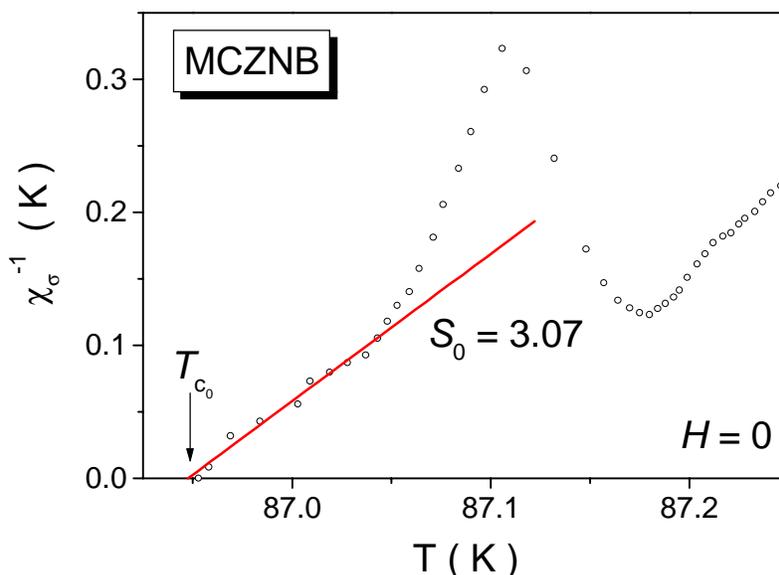
Os resultados de condutividade elétrica sob aplicação de diversos campos magnéticos são estudados, na região abaixo da temperatura de pareamento  $T_p$ , utilizando-se o mesmo conceito de derivada logarítmica empregado na seção 7.3.1 para a análise das flutuações na fase normal (eq. 7.4). Neste caso, denotamos o excesso de condutividade através de leis de potência do tipo:

$$\Delta\sigma \propto \varepsilon_0^{S_0} \quad (7.12)$$

onde  $S_0$  é o expoente crítico associado ao regime precursor à transição de coerência e  $\varepsilon_0$ , a temperatura reduzida, é definida por  $\varepsilon_0 = \frac{T - T_{c0}}{T_{c0}}$  onde  $T_{c0}$  é a temperatura crítica da transição paracoerente-coerente.

Da mesma forma que anteriormente, a determinação de um comportamento linear no gráfico  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  identifica o regime caracterizado pelo expoente crítico  $S_0$  e a respectiva temperatura crítica  $T_{c0}$ . A *fig. 7.22* ilustra a identificação do regime precursor à transição de coerência na amostra MCZnB em  $H = 0$ . Observa-se que, contrariando com o comportamento observado na fase normal,  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  apresenta uma curvatura positiva em função da temperatura na região paracoerente. Este comportamento assemelha-se àquele que em geral é mostrado pelo inverso da suscetibilidade magnética de um paramagneto nas proximidades da transição a um estado magneticamente ordenado. A analogia entre as transições paracoerente-coerente e paramagneto-ferromagneto foi denotada e explorada por Rosenblatt e col.<sup>[153]</sup>

Na amostra MCZnB em campo nulo, *fig. 7.22*, identifica-se um regime linear em  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  na aproximação ao estado de resistência nula, consistente com a lei de potências da eq. 7.12.



**Fig. 7.22** - Determinação do comportamento linear da curva de  $(\chi_{\sigma}(T))^{-1}$  permitindo a identificação do expoente crítico  $S_0$  e da temperatura crítica  $T_{c0}$  para a transição de coerência na amostra MCZnB em  $H = 0$ .<sup>[132]</sup>

### 7.3.3.2 - Análise dos Resultados

A aproximação ao estado de resistência nula das amostras PY, PSr e MCZnB foi estudado a partir da análise do comportamento apresentado pelas flutuações na magnetocondutividade destas amostras em curvas de  $(\chi_{\sigma}(T))^{-1}$ , conforme ilustram as fig. 7.23 a 7.26. Os valores encontrados para o expoente  $S_0(H)$  são apresentados nas tabelas 7.18 (PY), 7.19 (PSr), 7.20 (MCZnB;  $H // ab$ ) e 7.21 (MCZn;  $H // c$ ).

Podemos observar claramente que o valor de  $T_{c0}$  decresce rapidamente à medida que elevamos o valor do campo magnético aplicado ao passo que o valor de  $T_c(H)$  apresenta uma variação praticamente insignificante (compare a variação apresentada por  $T_c(H)$  e  $T_{c0}(H)$  em função do campo magnético nas tabelas) confirmando assim o comportamento granular de nossas amostras. Este fato ocorre com maior intensidade nas amostras policristalinas (variação de aproximadamente 12.41 K no valor de  $T_{c0}(H)$  para campos aplicados entre 0 e 0.6 kOe na amostra PY) que no monocristal MCZnB (variação de aproximadamente 0.51 K no valor de  $T_{c0}(H)$  para campos aplicados entre 0 e 0.6 kOe na amostra MCZnB;  $H // c$ ).

O comportamento das flutuações nas amostras policristalinas na ausência de campo magnético apresentou os seguintes valores para o expoente crítico,  $S_0 = 3.14 \pm 0.30$  para a amostra PSr e  $S_0 = 4.07 \pm 0.20$  para a amostra PY ao passo que sob

## Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade

aplicação de campos magnéticos o valor médio para  $S_0$  (tomado sob a média de sete valores em diferentes campos magnéticos) foi de  $\bar{S}_0 = 3.68 \pm 0.32$  para PSr e  $\bar{S}_0 = 3.88 \pm 0.42$  para PY. Estes valores estão de acordo com os observados em amostras policristalinas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,<sup>[103]</sup>  $\text{YBa}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ,<sup>[130]</sup>  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ <sup>[18]</sup> e  $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ .<sup>[154]</sup> e mostram que o expoente aumenta, passando, de 3 para 4 quando as amostras são submetidas a campo magnético (ver tabelas 7.18 e 7.19).

Por outro lado, podemos observar que a amostra MCZnB não apresenta a mesma tendência para o comportamento de  $S_0$  em função do campo magnético ou seja, em média os valores de obtidos para  $S_0$  se mantêm aproximadamente fixos em  $\bar{S}_0 = 2.84 \pm 0.40$  para  $H // ab$  e  $\bar{S}_0 = 2.65 \pm 0.38$  para  $H // c$  (ver tabelas 7.20 e 7.21).

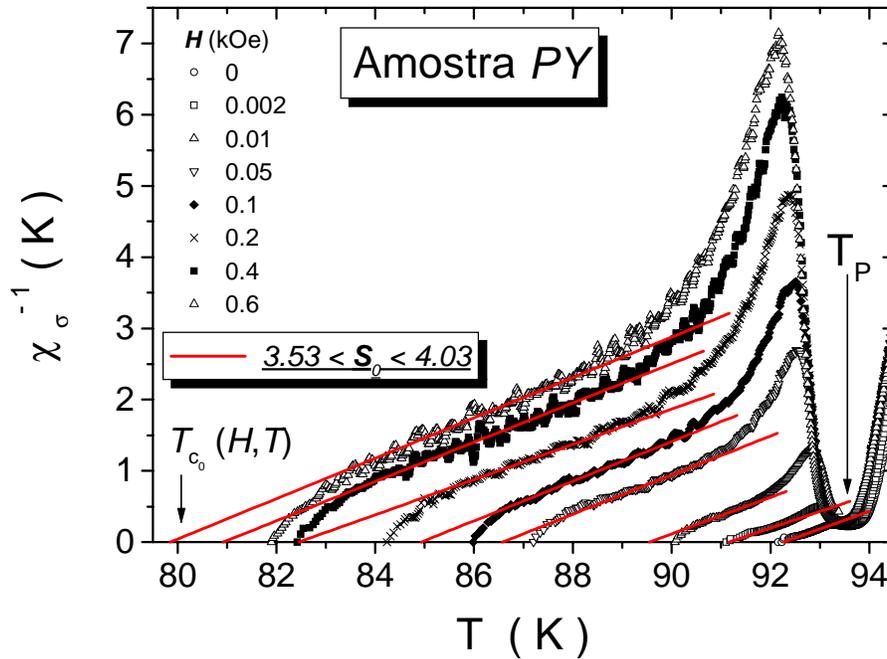
Outra peculiaridade que devemos ressaltar é o fato de que o aumento do valor do campo magnético aplicado alarga consideravelmente em temperatura a extensão do regime  $S_0$  nas amostras policristalinas. Por outro lado, na amostra monocristalina MCZnB este efeito é muito pequeno.

Segundo a *fig. 7.27*, que ilustra o comportamento das curvas de  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  em função do campo magnético aplicado para a mostra MCSr01 na configuração  $H // c$ , podemos notar que a aproximação ao estado de resistência nula nesta amostra apresenta uma estrutura peculiar que a diferencia dos resultados observados nas amostras PY, PSr e MCZnB.

A exibição de dois picos anômalos na região de temperaturas entre  $T_p$  e  $T_{c0}$  sugerem a existência de inomogeneidades nas características granulares desta amostra.

Por outro lado, os resultados para o comportamento de  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  em função de  $H$  obtidos para o monocristal de MCY2 mostrados na *fig. 7.28* revelam que efeitos de granularidade não estão presentes nesta amostra. O estado supercondutor que nela se estabelece é provavelmente homogêneo, mesmo em escala macroscópica, como sugerem os resultados de paracondutividade mostrados na *tab. 7.13* e *figura 7.19*.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

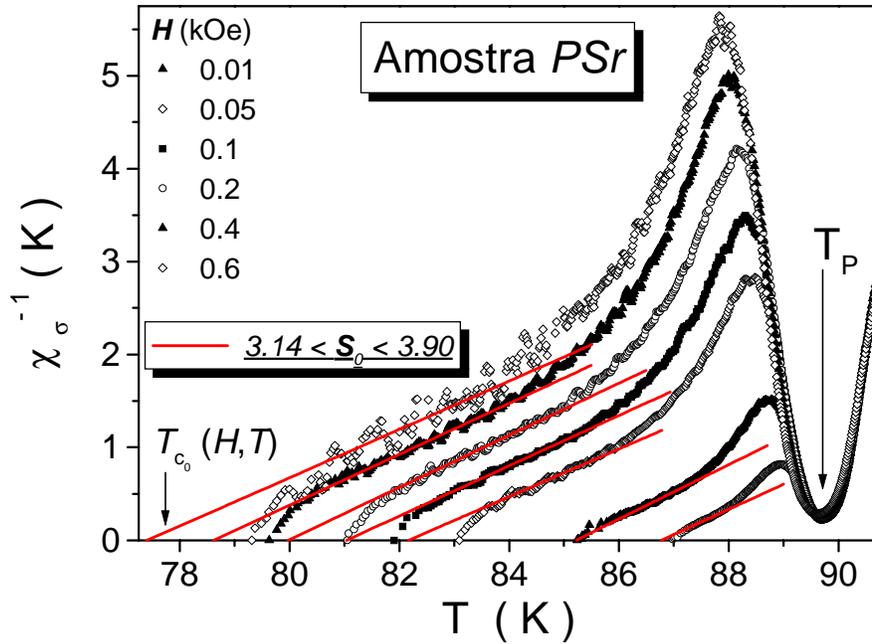


**Fig. 7.23** - Regimes de aproximação ao estado de resistência nula na amostra PY na presença de campo magnético.

<i>MPY - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> - Aproximação ao Estado de Resistência Nula</i>				
<i>H (kOe)</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c0</sub>(H) (K)</i>	<i>S<sub>0</sub> (H)</i>	<i>Intervalo de Temperatura (K)</i>
0	94.00	92.26	4.03 ± 0.20	92.95 - 92.65
0.002	93.91	91.15	4.30 ± 0.60	92.28 - 91.90
0.01	93.87	89.50	4.07 ± 0.70	91.35 - 90.43
0.05	93.74	86.57	3.64 ± 0.40	90.60 - 88.92
0.1	93.74	84.93	3.59 ± 0.15	89.40 - 86.70
0.2	93.73	82.45	4.04 ± 0.20	88.40 - 85.73
0.4	93.72	80.65	3.82 ± 0.45	88.80 - 84.45
0.6	93.71	79.85	3.53 ± 0.65	88.25 - 84.70
		<i>Média:</i>	<b>3.88 ± 0.42</b>	

**Tab. 7.18** - Expoentes na região de temperatura inferiores a  $T_c$  para a amostra PY onde o valor de  $S_0$  e determinado a partir da média de todos os valores.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetococondutividade**

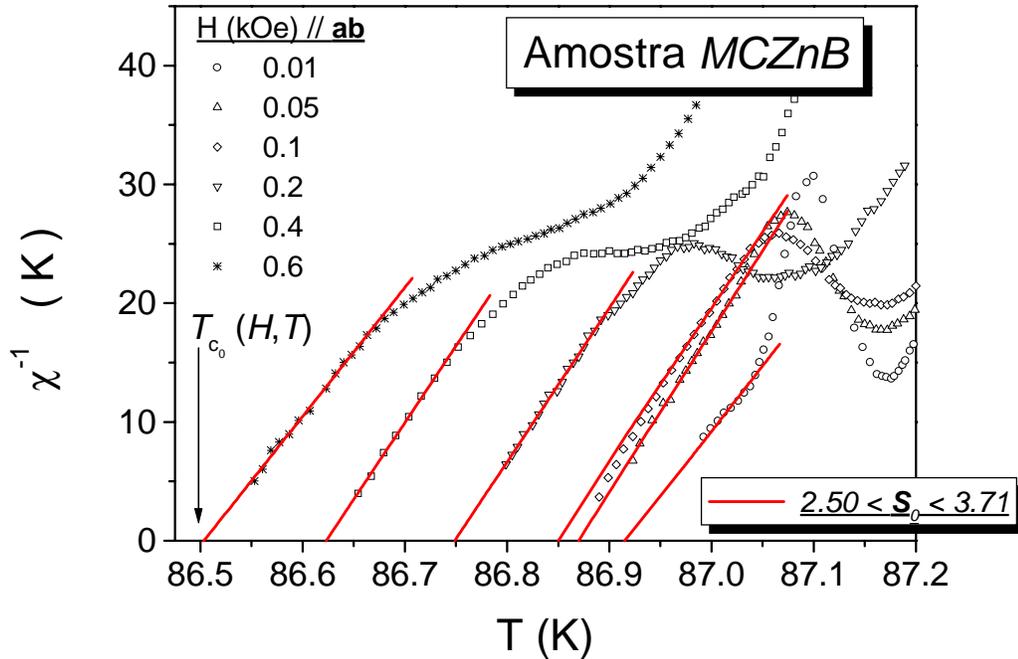


**Fig. 7.24** - Regimes de aproximação ao estado de resistência nula na amostra PSr na presença de campo magnético aplicado.

<i>PSr - YBa<sub>1.75</sub>Sr<sub>0.25</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-<math>\delta</math></sub> - Aproximação ao Estado de Resistência Nula</i>				
<i>H (kOe)</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c0</sub>(H) (K)</i>	<i>S<sub>0</sub> (H // ab)</i>	<i>Intervalo de Temperatura (K)</i>
0	89.99	87.54	3.14 ± 0.30	88.28 - 87.88
0.002	90.00	86.77	3.70 ± 0.25	87.70 - 87.35
0.01	89.99	85.23	3.42 ± 0.40	87.15 - 86.30
0.05	90.00	82.17	3.90 ± 0.42	85.50 - 83.90
0.1	90.00	81.04	3.70 ± 0.32	85.20 - 83.00
0.2	89.99	79.97	3.56 ± 0.15	84.70 - 82.45
0.4	89.96	78.62	3.65 ± 0.30	83.80 - 81.70
0.6	89.96	77.40	3.86 ± 0.40	83.40 - 80.80
		<i>Média:</i>	<b>3.68 ± 0.32</b>	

**Tab. 7.19** - Expoentes na região de temperatura inferiores a  $T_c$  para a amostra PSr onde o valor médio de  $S_0$  é obtido sobre a média dos valores obtidos sob a aplicação de campo.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocodutividade**

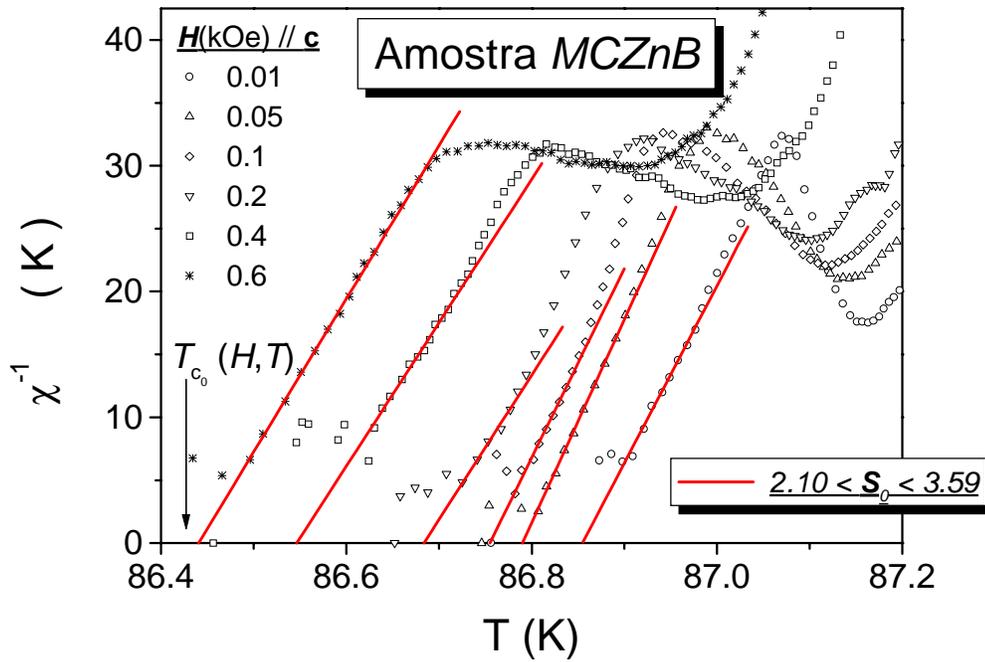


**Fig. 7.25** - Regimes de aproximação ao estado de resistência nula na amostra MCZnB na presença de campo magnético aplicado ( $H // ab$ ).

<i>MCZnB - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub> - Aproximação ao Estado de Resistência Nula</i>				
<i>H (kOe) // ab</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c0</sub>(H) (K)</i>	<i>S (H // ab)</i>	<i>Intervalo de Temperatura (K)</i>
0	87.32	86.95	3.07 ± 0.05	86.96 - 87.05
0.01	87.30	86.90	3.71 ± 0.80	87.00 - 87.05
0.05	87.30	86.88	2.50 ± 0.40	86.92 - 87.03
0.1	87.26	86.86	2.52 ± 0.35	86.97 - 87.05
0.2	87.24	86.75	2.58 ± 0.22	86.79 - 86.89
0.4	87.16	86.62	2.60 ± 0.25	86.65 - 86.75
0.6	87.07	86.50	3.13 ± 0.15	86.55 - 86.67
		<i>Média:</i>	<b>2.84 ± 0.40</b>	

**Tab. 7.20** - Expoentes na região de temperatura inferiores a  $T_c$  para a amostra MCZnB na presença de campo magnético aplicado ( $H // ab$ ) onde o valor médio de  $S_0$  é obtido sobre a média dos valores obtidos sob a aplicação de campo.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

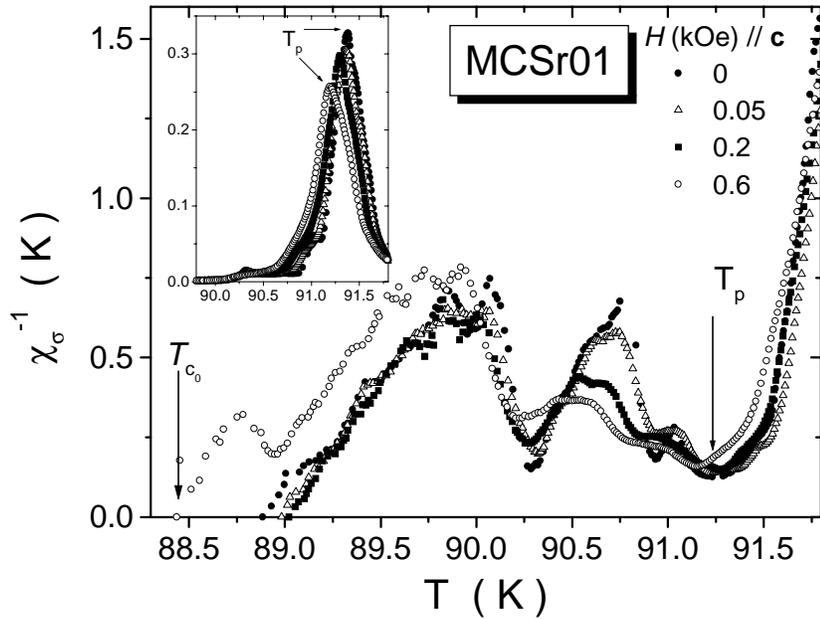


**Fig. 7.26** - Regimes de aproximação ao estado de resistência nula na amostra MCZnB na presença de campo magnético aplicado,  $H // c$ .

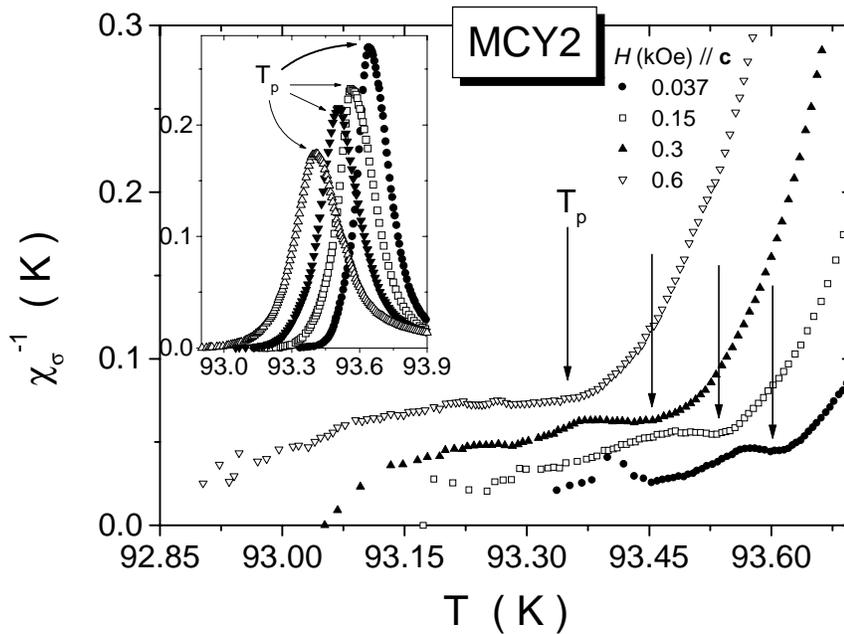
<i>MCZnB - YBa<sub>2</sub>Cu<sub>2.97</sub>Zn<sub>0.03</sub>O<sub>7-δ</sub> - Aproximação ao Estado de Resistência Nula</i>				
<i>H (kOe) // c</i>	<i>T<sub>c</sub>(H) (K)</i>	<i>T<sub>c0</sub>(H) (K)</i>	<i>S (H // c)</i>	<i>Intervalo de Temperatura (K)</i>
0	87.32	86.95	3.07 ± 0.05	86.96 - 87.05
0.01	87.30	86.85	2.54 ± 0.40	86.93 - 86.98
0.05	87.30	86.79	2.10 ± 0.80	86.82 - 86.90
0.1	87.26	86.75	2.28 ± 0.50	86.78 - 86.84
0.2	87.24	86.68	3.13 ± 0.22	86.71 - 86.78
0.4	87.16	86.54	3.03 ± 0.25	86.63 - 86.71
0.6	87.07	86.44	2.80 ± 0.35	86.49 - 86.61
		<i>Média:</i>	<b>2.65 ± 0.38</b>	

**Tab. 7.21** - Expoentes na região de temperatura inferiores a  $T_c$  para a amostra MCZnB para  $H // c$  onde  $S_0$  é obtido a partir do valor médio sob aplicação de campo.

**Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetococondutividade**



**Fig. 7.27** - Aproximação ao estado de resistência nula na amostra MCSr01 para  $H // c$ . O "inset" mostra o comportamento de  $dp/dT$  em função de  $H$ .



**Fig. 7.28** - Aproximação ao estado de resistência nula na amostra MCY2 para  $H // c$ . O "inset" mostra o comportamento de  $dp/dT$  em função de  $H$ .

**7.3.3.3 - Discussão dos Resultados**

O regime identificado pelo expoente  $S_0$  correspondente à região genuinamente crítica da fase paracoerente e escala com a temperatura  $T_{c0}(H)$ , que denota a transição de coerência.

O valor de  $S_0 \approx 3$ , encontrado na amostra PSr quando  $H = 0$  e na amostra MCZnB quando  $0 \leq H \leq 0.6$  kOe para  $H // ab$  ou  $H // c$ , é compatível com as previsões obtidas por Wengel e Yong.<sup>[155]</sup> a partir de simulações Monte Carlo baseadas no Hamiltoniano da eq. (3.13) ou seja:

$$H = - \sum_{\langle i,j \rangle} J_{ij} (\vec{r}_{ij}, \vec{B}, T) \cos(\theta_i - \theta_j - A_{ij}) \quad (3.13)$$

Para os modelos , "gauge glass" (frustração induzida pelo campo) e "chiral glass" (frustração causada pela aleatoriedade dos acoplamentos  $J_{ij}$ ), ambas versões descritas pelo Hamiltoniano acima, tais simulações encontraram  $\nu = 1.3$  (expoente crítico relativo ao comprimento de coerência) e  $z = 3.1$  (expoente crítico dinâmico). Portanto, assumindo que  $\eta \approx 0$ ,  $d = 3$ ,  $\nu = 1.3$  e  $z = 3.1$  e utilizando-se a eq. (4.16) (na qual, substituindo-se  $\lambda = S_0$ ), obteremos  $S_0 \approx 3$ .

Por outro lado, o valor de  $S_0 \approx 4$  encontrado para a amostra PY em campo magnético nulo ( $S_0 = 4.07 \pm 0.20$ ) e sob a aplicação de campo ( $\bar{S}_0 = 3.88 \pm 0.42$ ) e igualmente verificado na amostra PSr quando campos magnéticos são aplicados ( $\bar{S}_0 = 3.62 \pm 0.32$ ) é compreendido novamente adotando a eq. (4.16) com os valores de  $\nu = 1.3$ ,  $d = 3$ ,  $\eta \approx 0$  e  $z \approx 4$ . Este valor para  $z$  corresponde a sistemas cuja dinâmica é do tipo vidro de spin.<sup>[156]</sup> Assim, o comportamento para a condutividade nas proximidades do estado de resistência nula de fato indica a ocorrência de uma genuína transição de fase quando atingido  $T_{c0}$ , na qual efeitos de frustração e desordem tornam-se relevantes. Tal transição é descrita pelo Hamiltoniano da eq. (3.13) o que nos permite interpretar a fase de baixas temperaturas como vidro de fases, que é uma versão aplicável a sistemas granulares do modelo mais geral de vidro de vórtices.<sup>[67]</sup>

Sendo assim, a aproximação ao estado de resistência nula dessas amostras é descrita por uma transição de coerência a qual integra a classe de universalidade 3D-XY com efeitos de desordem relevantes. Por outro lado, na amostra MCSr01 a não ocorrência de um estado homogeneamente granular, dificulta a formação de uma fase nitidamente paracoerente nas proximidades de  $T_{c0}$ . Assim, embora seja possível a observação de efeitos de granularidade nesta amostra, a dopagem com Sr, de alguma forma, colaborou para a não observação de uma transição de coerência neste supercondutor. A não observação de uma transição de coerência em um filme fino de  $\text{HoBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , o qual apresenta um comportamento de  $(\chi_\sigma(T))^{-1}$  semelhante ao

## **Capítulo 7 - Resultados Experimentais: Transição Resistiva e Flutuações na Magnetocondutividade**

observado no monocristal MCSr01, deve-se, segundo Rojas et al<sup>[151]</sup> a características particulares da amostra como a anisotropia e ligações fortes entre grãos.

As diferenças observadas na largura do regime de flutuações que anteceda a transição de coerência frente a aplicação de baixos campos magnéticos nas amostras policristalinas PY e PSr e no monocristal MCZnB estaria ligada à natureza das junções existentes em cada material. Nas amostras policristalinas provavelmente ocorra uma ampla distribuição nas energias de acoplamento das junções que proporcionaria uma grande sensibilidade do regime paracoerente frente a presença de campos magnéticos. Por outro lado, nos monocristais dopados as junções seriam mais homogêneas com fortes energias de acoplamento. Em outras palavras, a aplicação de campo magnético provoca um alargamento da região de aproximação ao estado de resistência nula nas amostras policristalinas que é significativamente maior que aquele observado no monocristal MCZnB. Para finalizar esta seção devemos dizer que a transição de coerência observada nas amostras policristalinas e, especialmente, nos monocristais dopados é consistente com o caráter granular evidenciado pelo comportamento da LIM, discutido no cap. 6. Por outro lado, as causas físicas exatas pelas quais a substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por Zn ou Mg no monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  colabora para o estabelecimento de um estado supercondutor granular neste material e uma questão que se encontra em aberto.

## Conclusões:

Realizamos um estudo experimental dos efeitos das substituições químicas no comportamento da irreversibilidade magnética e da transição resistiva do supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . Para isso, foram preparados supercondutores cerâmicos de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0$  e  $0.25$ ) e monocristalinos de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  ( $x = 0, 0.1, 0.25, 0.37$  e  $0.5$ ) e de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{D}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  ( $\text{D} = \text{Zn}$  ou  $\text{Mg}$ ). Nestas amostras foram pesquisados, em detalhes, as linhas de irreversibilidade magnética (LIM) e os regimes de flutuações na magnetocondutividade.

### Irreversibilidade Magnética

Medidas de magnetização DC, utilizando o método ZFC e FC, permitiram a determinação precisa da LIM para cada amostra, levando às seguintes conclusões:

**A)** O fato da LIM da amostra monocristalina de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (AM1), com caráter granular irrelevante, ser descrita por uma lei de potências prevista pela teoria de “flux creep” gigante aponta a dinâmica de fluxo convencional como responsável pelas propriedades magnéticas irreversíveis nesta amostra.

**B)** Nas amostras policristalinas e monocristalinas com caráter granular, os dados experimentais de  $T_{\text{irr}}(H)$ , de um modo geral, seguem a lei de potência prevista pela teoria de “flux creep” gigante somente na região de altos campos magnéticos. Numa região de baixo campo, onde se sabe que a dinâmica de fluxo intergranular dos vórtices de Josephson domina, os dados de  $T_{\text{irr}}(H)$  se desviam sistematicamente desta lei de potências. Na parte de mais baixos campos desta região ( $H \leq 1$  kOe), os dados são bem descritos pela lei de potências de Almeida-Thouless (AT). Porém, numa região de campos intermediários seguem a lei de potências de Gabay-Toulouse (GT) o comportamento AT-GT por parte da LIM é a assinatura de um sistema dominado pela desordem e frustração.

**C)** Os modelos de vidro supercondutor e de vidro de vórtices que estudam a origem da LIM nos HTSC inhomogêneos, embora ambos prevêem a ocorrência de uma transição de “glass” ao longo de uma linha em um diagrama  $H$ - $T$ , não conseguem interpretar, nem de forma qualitativa, os nossos resultados obtidos na região de baixos campos. Por outro lado, o comportamento AT-GT na LIM de nossas amostras inhomogêneas pode ser interpretado, na falta de um modelo teórico mais consistente, com base em uma analogia com as LIM de sistemas magnéticos desordenados e frustrados, os vidro de spin Cu-Mn. Na região de altos campos magnéticos a LIM de nossos supercondutores granulares pode ser bem interpretada pela teoria de “flux creep” gigante.

**D)** A substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por Mg ou Zn no supercondutor  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  além de reduzir o valor de  $T_c$  introduz granularidade supercondutora nas amostras monocristalinas. Além desses efeitos, também devemos ressaltar que as substituições realizadas no sítio do Cu se mostraram mais nocivas ao valor de  $T_c$  do que as

realizadas no sítio do Ba. Este comportamento reafirma a relevância dos planos de  $\text{CuO}_{(2)}$  no mecanismo supercondutor deste sistema. No que tange a LIM, podemos concluir que ela mantém o mesmo perfil independente das substituições transcorrerem no sítio do Cu ou do Ba, apenas devemos ressaltar que a região da LIM dominada pelos efeitos de granularidade (dinâmica de Josephson) é maior para as amostras dopadas com Sr do que as dopadas com Zn ou Mg.

**E)** Os resultados observados para o comportamento da LIM em função do conteúdo de oxigênio nas amostras policristalinas e monocristalinas revelam que a desoxigenação deteriora sensivelmente as junções entre os grãos.

**F)** As anisotropias para a LIM (eixo  $c$  / plano  $ab$ ) observadas na região de alto campo e a sua inversão, sistemática, na região de baixo campo são devidas aos mecanismos planares de “pinning” intrínscio dos HTSC.

**G)** O comportamento tipo “cusp” apresentado pela LIM nos monocristais de  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ , para  $H \geq 20$  kOe //  $ab$ , quando variamos angularmente a direção dos PMCs em relação ao campo magnético aplicado ( $\phi > \phi_{cr}$ ), constitui-se em uma assinatura das propriedades de vidro de Bose. Por outro lado, o comportamento isotrópico da LIM para  $\phi > \phi_{cr}$  quando  $H \geq 20$  kOe e para qualquer valor de  $\phi$  quando o campo aplicado estiver entre  $20 \text{ kOe} \geq H \geq 5 \text{ kOe}$  deve-se aos mecanismos de “pinning” coletivo isotrópico dos PMCs que é uma característica da fase vidro de vórtices.

### Flutuações na Magnetocondutividade

O estudo das flutuações na magnetocondutividade, em baixo campo, realizados nas amostras cerâmicas de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (PY) e  $\text{YBa}_{1.75}\text{Sr}_{0.25}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (PSr) e nos monocristais de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (MCY2),  $\text{YBa}_{1.9}\text{Sr}_{0.1}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (MCSr01) e  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{2.97}\text{Zn}_{0.03}\text{O}_{7-\delta}$  (MCZnB) nos proporcionou as seguintes conclusões:

**A)** As curvas da derivada da resistividade em função da temperatura,  $dp/dT$ , revelam que a transição supercondutora no monocristal de  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  (MCY2) ocorre em apenas uma etapa ao passo que nas amostras PY, PSr, MCSr01 e MCZnB esta transição se dá em duas etapas. Inicialmente, a medida em que a temperatura decresce, observa-se a ocorrência da transição de pareamento no interior dos grãos. Em temperaturas inferiores, nas proximidades do estado de resistência nula, ocorre a transição de coerência, na qual as fases do parâmetro de ordem dos grãos supercondutores adquire ordem de longo alcance. Este comportamento apresentado pelas curvas de  $dp/dT$  caracteriza as amostras PY, PSr, MCSr01 e MCZnB como supercondutores granulares quando comparadas ao comportamento observado por  $dp/dT$  para o monocristal MCY2, tido como um supercondutor homogêneo.

**B)** Na região normal ( $T > T_{cp}$ ), observa-se o efeito das flutuações sobre a magnetocondutividade caracterizadas pelos expoentes críticos  $\lambda_G^{(3D)} \approx 0,5$  e  $\lambda_G^{(2D)} \approx 1,0$  nas

amostras cerâmicas PY e PSr. Nos monocristais, o regime de flutuações descrito pelo expoente  $\lambda_G^{(3D)}$  foi observado nas amostras MCY2 e MCSr01 ao passo que o expoente  $\lambda_G^{(2D)}$  ocorreu nos três monocristais. Por outro lado, também foram observados, pela primeira vez, um expoente crítico  $\lambda_G^{(1D)} \approx 1,5$  nas amostras MCY2, MCSr01 ( $H // ab$ ) e MCZnB. Os regimes de flutuações descritos pelos expoentes  $\lambda_G^{(3D)}$ ,  $\lambda_G^{(2D)}$  e  $\lambda_G^{(1D)}$  correspondem a flutuações Gaussianas definidas em espaços com geometrias 3D, 2D e 1D descritas pela teoria de Aslamazov-Larkin e não são afetadas pelos campos na faixa por nós utilizada ( $H \leq 0.6$  kOe). A medida em que a temperatura é reduzida, aproximando-se de  $T_c$ , são identificados três regimes de flutuações genuinamente críticas em nossas amostras,  $\lambda_{cr}^{(2)} \approx 0.33$ ,  $\lambda_{cr}^{(CS)} \approx 0.24$  e  $\lambda_{cr}^{(1)} \approx 0.17$ . O regime  $\lambda_{cr}^{(2)}$  foi identificado nas curvas de  $\chi''^{-1}(T)$  das amostras PY, PSr, MCY2, MCSr01 e MCZnB ( $H // c$ ), o regime  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  nas amostras PY, PSr, MCSr01 e MCZnB ao passo que a existência do regime  $\lambda_{cr}^{(1)}$  foi verificado apenas nas amostras monocristalinas. A faixa de campos magnéticos aplicados não afeta a estabilidade dos regimes  $\lambda_{cr}^{(2)}$  e  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  nas amostras policristalinas bem como o regime  $\lambda_{cr}^{(2)}$  nos monocristais. Entretanto, o regime  $\lambda_{cr}^{(1)}$  mostra-se fortemente afetado pela aplicação de campo magnético. A região de flutuações caracterizada pelo expoente  $\lambda_{cr}^{(2)}$  é consistente com uma transição de fase supercondutora cuja termodinâmica é descrita pelo modelo 3D-XY com dinâmica descrita pelo modelo E. Por outro lado, a hipótese proposta para interpretar a ocorrência do regime  $\lambda_{cr}^{(1)}$  propõe que estes intervalos estejam relacionados com regimes precursores a uma transição fracamente de primeira ordem,  $\lambda = 0$ . Esta hipótese supõe que a aproximação de uma transição de primeira ordem se efetue dentro de um cenário descrito pelo modelo 3D-XY estático. Porém, uma evolução dinâmica, na qual o expoente crítico dinâmico assuma valores menores que  $z = 1.5$ , corresponde à previsão do modelo E. O expoente  $\lambda_{cr}^{(CS)}$  é tratado como um regime de "crossover" entre os regimes  $\lambda_{cr}^{(2)}$  e  $\lambda_{cr}^{(1)}$ , conforme igualmente observado em amostras monocristalinas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ .<sup>[145]</sup>

C) A aproximação ao estado de resistência nula ( $T_{c0} \leq T \leq T_{cp}$ ) das amostras PSr, quando  $H = 0$ , e MCZnB, quando  $0 \leq H \leq 0.6$  kOe para  $H // ab$  ou  $H // c$ , foi descrita por um regime de flutuações genuinamente críticas da fase paracoerente representadas pelo expoente  $S_0 \approx 3$  o qual é compatível com as previsões obtidas por Wengel e Yong para o Hamiltoniano 3D-XY frustrado e desordenado. Por outro lado, o comportamento  $S_0 \approx 4$  encontrado nas amostras PY para  $0 \leq H \leq 0.6$  kOe e PSr quando campos magnéticos são aplicados corresponde a sistemas cuja dinâmica é do tipo vidro de spin. Assim, o comportamento para as flutuações na magnetocondutividade nas proximidades do estado de resistência nula de fato indica a ocorrência de uma genuína transição de fase quando atingido  $T_{c0}$ , na qual efeitos de frustração e desordem tornam-se relevantes. Portanto, a aproximação ao estado de resistência nula dessas amostras é descrita por uma transição de coerência a qual integra a classe de universalidade 3D-XY com efeitos de desordem relevantes. A análise das curvas de  $\chi^{-1}(T)$  da amostra MCSr01 mostra claramente que ela apresenta um caráter granular. No entanto, sua aproximação, ao estado de resistência nula, não pode ser descrito como sendo uma legítima transição de coerência como foi verificado ocorrer na amostra MCZnB.

# Referências

- [1] BERDNORZ, J. G.; MÜLLER, K. A.; TAKASHIGE, M. Superconductivity in alkaline earth-substituted  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ . *Science*, Washington, v. 236, n. 4797, p. 73-75, Apr. 1987.
- [2] CHU, C. W. et al. Evidence for superconductivity above 40K in La-Ba-Cu-O compound system. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n.4, p. 405-407, Jan. 1987.
- [3] WU, M. K. Superconductivity at 93K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 9, p. 908-910, Mar. 1987.
- [4] CAVA, R. J. et al. Bulk superconductivity at 91K in single phase oxygen-deficient perovskite  $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_{9-\delta}$ . *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 16, p. 1676-1679, Apr. 1987.
- [5] BEYERS, R. et al. Crystallography and microstructure of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{9-\delta}$  a perovskite-based superconducting oxide. *Applied Physics Letters*, Woodbury, v. 50, n. 26, p. 1918-1920, June 1987.
- [6] TARASCON, J. M. et al. Oxygen and rare-earth doping of the 90 K superconducting perovskite  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 1, p. 226-234, July 1987.
- [7] JORGENSEN, J. D. Defects and superconductivity in the cooper oxides. *Physics Today*, Woodbury, v. 44, n. 6, p. 34-40, June 1991.
- [8] JORGENSEN, J. D. et al. Structural properties of oxygen-deficient  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 41, n. 4, p. 1863-1877, Feb. 1990.
- [9] TALLON, J. L. The relationship between bond-valence sums and  $T_c$  in cuprate superconductors. *Physica C*, Amsterdã, v. 168, n. 1/2, p. 85-90, June 1990.
- [10] BARAN, M.; GLADCHUK, L.; SZYMCZAK, G. Oxygen ordering in the system  $\text{YBa}_{1.5}\text{Sr}_{0.5}\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  under pressure. *Physics Solid State*, Woodbury, v. 38, n. 7, p. 1101-1108, July 1996.
- [11] CAVA, R. J. et al. Structural anomalies oxygen ordering and superconductivity in oxygen deficient  $\text{Ba}_2\text{YCu}_3\text{O}_x$ . *Physica C*, Amsterdam, v. 165, n. 5/6, p. 419-433, Feb. 1990.

- [12] SODERHOLM, L.; GOODMAN, G. L. The oxidation state of Pr in  $\text{PrBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ . *Journal of Solid State Chemistry*, Orlando, v. 81, n. 1, p. 121-128, July 1989.
- [13] KAKIHANA, M. et al. Charge-transfer and compression effects of isomorphous substitutions in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 9, p. 359-366, Mar. 1993.
- [14] FRIEDMANN, T. A. et al. Direct measurements of the anisotropy of the resistivity in a-b plane of twin-free, single-crystal, superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 1, p. 226-234, July 1987.
- [15] BATLOGG, B. Physical properties of high- $T_c$  superconductors. *Physics Today*, Woodbury, v. 44, n. 6, p. 44-50, June 1991.
- [16] PANDE, C. S. et al. Domainlike defects observed in the high-temperature superconductor Y-Ba-Cu-O. *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 10, p. 5669-5671, Oct. 1987.
- [17] JOSEPHSON, B. D. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Physics Letters*, Amsterdam, v.1, n. 7, p. 251-253, July 1962.
- [18] ROA-ROJAS, J. et al. Pairing transition, coherence transition, and the irreversibility line in granular  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Melville, v. 61, n. 18, p. 12457-12462, May 2000.
- [19] MATSUDA, Y.; YOSHIDA, M.; HINOTANI, S. Raman studies of orthorhombic  $\text{Y}(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ . *Japanese Journal of Applied Physics*, Tokyo, v. 28, n. 7, p. L1128-L1130, July 1989.
- [20] ONO, A. et al. Superconductivity in  $(\text{Ba}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{YCu}_3\text{O}_{7-y}$ . *Japanese Journal of Applied Physics*, Tokyo, v. 26, n. 10, p. L1687- L1689, Oct. 1987.
- [21] JAYARAM, B.; AGARWAL, S. K.; GUPTA, A. High temperature superconductivity in Y-Ba-Cu-O and Y-Ba-Sr-Cu-O systems. *Solid State Communications*, Oxford, v. 63, n. 8, p. 713-716, Aug. 1987.
- [22] RAO, C. N. R.; NAGARAJAN, R.; MAHESH, R. Structure and properties of oxyanion derivatives of 123 cuprate superconductors: Effect of substitution of carbonate and nitrate ions in the Cu(1) position of  $\text{YBaSrCu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Solid State Communications*, Oxford, v. 88, n. 10, p. 757-760, Dec. 1993.
- [23] VEAL, B. W.; KWOK, W. K.; UMEZAWA, A. Superconductivity in

- YBa<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-y</sub>. *Applied Physics Letters*, Woodbury, v. 51, n. 4, p. 279-281, July 1987.
- [24] CAO, Y. et al. High-temperature superconducting YSr<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7.5</sub> under pressure. *Physical Review B*, Woodbury, v. 58, n. 17, p. 11201-1203, Nov. 1998.
- [25] KAKIHANA, M. et al. Charge-transfer and compression effects of isomorphous substitutions in YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub>. *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 9, p. 5359-5366, Mar. 1993.
- [26] TAKADA, Y. et al. Structure and properties of YBaSrCu<sub>3</sub>O<sub>y</sub> (y = 6.2 - 7.3). *Physica C*, Amsterdam, v. 157, n. 2, p. 358-364, Feb. 1989.
- [27] GALLO, C. F. et al. Local structure distortion in a YBa<sub>2-0,52</sub>Sr<sub>0,52</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7</sub> superconductor. *Physical Review B*, Woodbury, v. 39, n. 4, p. 2788-2791, Feb. 1989.
- [28] MAREZIO, M.; LICCI, F.; GAUZZI, A. Chemical pressure for optimizing T<sub>c</sub> in a given superconducting system. *Physica C*, Amsterdam, v. 337, n. 1/4 p. 195-199, July 2000.
- [29] SAITO, K. et al. Influence of Sr doping on twin-wall structure and flux pinning of YBa<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> single crystals. *Physical Review B*, Woodbury, v. 58, n. 10, p. 6645-6649, Sept. 1998.
- [30] FUEKI, K.; IDEMOTO, Y.; ISHIZUKA, H. Oxygen nonstoichiometry of a YBa<sub>2-x</sub>Sr<sub>x</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> superconductor. *Physica C*, Amsterdam, v. 166, n. 3/4, p. 261-265, Mar. 1990.
- [31] CAVA, R. J. et al. Single-phase 60-K bulk superconductor in annealed in Ba<sub>2</sub>YCu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub> (0,3<δ<0,4) with correlated oxygen vacancies in the Cu-O chains. *Physical Review B*, Woodbury, v. 36, n. 10, p. 5719-5721, Oct. 1987.
- [32] LICCI, F.; GAUZZI, A.; MAREZIO, M. Structural and electronic effects of Sr substitution for Ba in Y(Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>w</sub> at varying w. *Physical Review B*, Woodbury, v. 58, n. 22, p. 15208-15217, Dec. 1998.
- [33] CHANG, C. N. et al. The oxygen 1s X-ray absorption near edge structure of Y(Ba<sub>1-x</sub>Sr<sub>x</sub>)<sub>2</sub>Cu<sub>3</sub>O<sub>7-δ</sub>. *Solid State Communication*, Oxford, v. 99, n. 12, p. 901-906, Sept. 1996.
- [34] YANG, I. S. et al. Electronic states in rare-earth 1:2:3 oxides: photoemission and Raman studies. *Physical Review B*, Woodbury, v. 43, n.13, p. 10544-10547, May 1991.

- [35] ULUG, A.; ULUG, B.; SENER, E. Semiconductivity in  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_y$ . *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 80, n. 4, p. 2317-2320, Aug. 1996.
- [36] GOLBEN, J.; VLASSE, M. Study of bulk and single crystal  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  superconducting materials. *Superconductor Science and Technology*, Bristol, v. 5, n. 2, p. 231-235, Jan. 1991.
- [37] XIAO G. et al. High-temperature superconductivity in tetragonal perovskite structures: is oxygen- vacancy order important? *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 60, n. 14, p. 1446-1449, Apr. 1988.
- [38] ZAGOULAEV, S.; MONOD, P.; JÉGOUDEZ, J. Magnetic and transport properties of Zn-doped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  in the normal state. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 15, p. 2088-2091, Oct. 1991.
- [39] ADACHI, S. et al. Lowered  $T_c$  of  $\text{YBa}_2(\text{Cu,Zn})_3\text{O}_{7-\delta}$  by homogenizing procedure and annealing treatments. *Physica C*, Amsterdam, v. 351, n. 4, p. 323-328, Apr. 2001.
- [40] RAFFO, L. et al. Effects of Mg doping on the superconducting properties of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  and  $\text{La}_{1.85}\text{Sr}_{0.15}\text{CuO}_4$  systems. *Superconductor Science and Technology*, Bristol, v. 8, n. 6, p. 409-414, June 1995.
- [41] LORAM, J. W.; MIRZA, K. A.; FREEMAN, P. F. The electronic specific heat of  $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Zn}_x)_3\text{O}_{6-x}$  from 1.6 K to 300 K. *Physica C*, Amsterdam, v. 171, n. 3/4, p. 243-256, Nov. 1990.
- [42] ALLUL, H. et al. Correlations between magnetic and superconducting properties of Zn-Substitued  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{6+x}$ . *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 22, p. 3140-3143, Nov. 1991.
- [43] MAHAJAN, A. V. et al. NMR probe of Zn induced local moments in  $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-y}\text{Zn}_y)_3\text{O}_{6+x}$ . *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 19, p. 3100-3103, May 1994.
- [44] SUN, Y.; MAKI, K. Impurity effects in d-wave superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 51, n. 9, p. 6059-6063, Mar. 1995.
- [45] PODLESNYAK, A. et al. Neutron spectroscopic studies of crystalline electric fields in high- $T_c$   $\text{ErBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  doped with Zn and Ni. *Physica C*, Amsterdam, v. 175, n. 5/6, p.587-594, May 1991.
- [46] XU, Y. et al. Rare earth ion size effect on  $T_c$  and  $\rho_n$  in the Ga and Zn doped  $\text{RBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Ga}_x\text{O}_{7+y}$  and  $\text{RBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_{7-y}$  systems (R = Yb, Er, Y, Dy, Gd, Eu, Sm and Nd). *Physica C*, Amsterdam, v. 235/240, p. 823-824, Dec. 1994. pt. 2.

- [47] GUPTA, R.; GUPTA, M. Effect of nickel and zinc substitutions on the electronic charge-density redistribution in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  superconductor. *Physical Review B*, Melville, v. 59, n. 5, p. 3381-3384, Feb. 1999.
- [48] SAITO, Y. et al. High superconducting properties in  $\text{Y}_{1-x}\text{Tl}_x\text{Ba}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ ,  $\text{YBa}_{2-x}\text{K}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$  and  $\text{YBa}_2(\text{Cu}_{1-x}\text{Mg}_x)_3\text{O}_{7-y}$ . *Physica B*, Amsterdam, v. 148, n. 1/3, p. 336-338, Dec. 1987.
- [49] TIERNAN, W. M. et al. Linear depression in Mg-doped  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 44, n. 9, p. 4661-4663, Sept. 1991.
- [50] FIGUEIRAS, J. et al. In plane Mg doping in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ : influence on the superconducting anisotropy. *Superconductor Science and Technology*, Bristol, v. 13, n. 7, p. 1067-1073, July 2000.
- [51] GREEN, L.H.; BAGLEY B. G. *Physical properties of high temperature Superconductors II*. Singapore: World Scientific, 1990.
- [52] SHAKED, H. et al. The site preference of Cu substituted Zn and Ni in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Solid State Communications*, Oxford, v. 75, n. 5, p. 445-449, Aug. 1990.
- [53] CHIEN, T. R.; WANG, Z. Z.; ONG, N. P. Effect of Zn impurities on the normal-state Hall angle in single-crystal  $\text{YBa}_2\text{Cu}_{3-x}\text{Zn}_x\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 15, p. 2088-2091, Oct. 1991.
- [54] YESHURUN, Y.; MALOZEMOFF, A. P.; SHAULOV, A. Magnetic relaxation in high-temperature superconductors. *Reviews of Modern Physics*, Woodbury, v. 68, n. 3, p. 911-949, July 1996.
- [55] BEAN, C. P. Magnetization of hard superconductors. *Physical Review Letters*, New York, v. 8, n. 6, p. 250-253, Mar. 1962.
- [56] ANDERSON, D. W. et al. Photoneutron cross-section resonances in  $\text{O}^{16}$ . *Physical Review Letters*, New York, v. 10, n. 6, p. 250-253, Mar. 1963.
- [57] JAKLEVIC, R. C. et al. Quantum interference effects in Josephson tunnelling. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 12, n. 7, p. 159-160, Feb. 1964.
- [58] CLEM, J. R. Granular and superconducting glass properties of the high-temperature superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 153/155, p. 50-55,

June 1988.

- [59] JUNG, J.; ISAAC, I.; MOHAMED, M. A-K. Effect of the intergrain junctions and flux pinning on transport critical currents in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  granular superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 48, n. 10, p. 7526-7536, Sept. 1993.
- [60] GAYLE, F. W.; KAISER, D. L. The nature of [001] tilt grain boundaries in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$ . *Journal of Material Research*, Pittsburg, v. 6, n. 5, p. 908-915, May 1991.
- [61] JIN, S. et al. Critical currents and magnetization in c-axis textured Bi-Pb-Sr-Ca-Cu-O superconductors, *Applied Physics Letters*, Woodbury, v. 58, n. 8, p. 868-870, Feb. 1991.
- [62] EIBL, O. Special grain boundaries in high- $T_c$   $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *Physica C*, Amsterdam, v. 168, n. 1/2, p. 239-248, June 1990.
- [63] VINOKUR, V. M.; KES, P. H.; KOSHELEV, A. E. Flux pinning and creep in the very anisotropic high temperature superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 168, n. 1/2, p. 29-39, June 1990.
- [64] YESHURUN, Y.; MALOZEMOFF, A. P. Giant flux creep and irreversibility in an Y-Ba-Cu-O crystal: an alternative to the superconducting-glass model. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 60, n. 21, p. 2202-2205, May 1988.
- [65] FARRELL, D. E.; RICE, J. P.; GINSBERG, D. M. Experimental evidence for flux-lattice melting. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 9, p. 1165-1168, Aug. 1991.
- [66] MULLER, K. A.; TAKASHIGE, M.; BEDNORZ, J. G. Flux trapping and superconductive glass state in  $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ : Ba. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 58, n. 11, p. 1143-1146, Mar. 1987.
- [67] FISHER, D. S.; FISHER, M. P. A.; HUSE, D. A. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 43, n.1, p. 130-159, Jan. 1991.
- [68] NELSON, D. R.; VINOKUR, V. M. Boson localization and correlated pinning of superconducting vortex arrays. *Physical Review B*, Woodbury, v. 48, n. 17, p. 13060-13097, Nov. 1993.
- [69] ANDERSON, P. W.; KIM, Y. B. Hard superconductivity: theory of the motion

- of Abrikosov flux lines. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 36, n. 1, p. 39-43, Jan. 1964.
- [70] FISHER, D. S. Flux-lattice melting in thin-film superconductors. *Physical Review B*, New York, v. 22, n. 3, p. 1190-1199, Aug. 1980.
- [71] NELSON, D. R. Defect-mediated phase transitions. In: DOMB, C.; LEBOWITZ, Y. L. (Eds.) *Phase transition and critical phenomena*. London: Academic Press, 1983. v. 7, p. 1-99.
- [72] NELSON, D. R.; SEUNG, H. S. Theory of melted flux liquids. *Physical Review B*, Woodbury, v. 39, n. 13, p. 9153-9174, May 1989.
- [73] HOUGHTON, R. A.; PELCOVITS, R. A.; SUDBO, A. Flux lattice melting in high- $T_c$  superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 40, n. 10, p. 6763-6770, Oct. 1989.
- [74] LINDEMANN, F. A. Molecular frequencies. *Phys. Zeitschr.*, Leipzig, v.11, p. 609-612, July 1910.
- [75] EBNER C.; STROUD, D. Diamagnetic susceptibility of superconducting clusters: spin-glass behavior. *Physical Review B*, Woodbury, v. 31, n. 1, p. 165-171, Jan. 1985.
- [76] CAMPBELL, A. M.; EVETTS, J. E. Flux vortices and transport currents in type II superconductors. *Advanced Physics*, London, v. 21, n. 89/94, p. 199-428, Mar. 1972.
- [77] KENNING, G. G.; CHU, D.; ORBACH, R. Irreversibility crossover in a Cu:Mn spin glass in high magnetic fields: evidence for the Gabay-Toulouse transition. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 66, n. 22, p. 2923-2926, June 1991.
- [78] ALMEIDA, J. R. L. de; THOULESS, D. J. Stability of the Scherrington-Kirkpatrick solution of a spin glass model. *Journal of Physics A*, Bristol, v. 11, n. 5, p. 983-990, May 1978.
- [79] RODRIGUES, P. JR.; SCHAF, J.; PUREUR, P. Field and oxygen dependence of the magnetic irreversibility line in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 49, n. 21, p. 15292-15298, June 1994.
- [80] JURELO, A. R.; PUREUR, P.; SCHAF, J. Separated suppression of the transverse and longitudinal Josephson flux mobility in a  $\text{Bi}_{1.6}\text{Pb}_{0.4}\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$  superconductor. *Physical Review B*, Melville, v. 64, n. 17, 174502 8p., Nov. 2001.

- [81] GABAY, M.; TOULOUSE, G. Coexistence of spin-glass and ferromagnetic orderings. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 47, n. 3, p. 201-204, July 1981.
- [82] FISHER, M. P. A. Vortex-glass superconductivity: a possible new phase in bulk high- $T_c$  oxides. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 62, n. 12, p. 1415-1418, Mar. 1989.
- [83] HUSE, D. A.; SEUNG, H. S. Possible vortex-glass transition in a model random superconductor. *Physical Review B*, Woodbury, v. 42, n. 1, p. 1059-1061, July 1990.
- [84] NELSON, D. R.; VINOKUR, V. M. Boson localization and pinning correlated disorder in high-temperature superconductors. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 68, n. 15, p. 2398-2401, Apr. 1992.
- [85] FISHER, M. P. A. et al. Boson localization and superfluid-insulator transition. *Physical Review B*, Woodbury, v. 40, n. 1, p. 546-570, July 1989.
- [86] NELSON, D. R. Vortex entanglement in high-  $T_c$  superconductors. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 60, n. 19, p. 1973-1975, May 1988.
- [87] SAFAR, H. et al. Bose glass vortex phase transition in twinned  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  superconductors. *Philosophical Magazine B*, London, v. 74, n. 5, p. 647-654, Nov. 1996.
- [88] JIANG, W. et al. Evidence of a Bose-glass transition in superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  single crystals with columnar defects. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 4, p. 550-553, Jan. 1994.
- [89] SANFILIPPO, S. et al. Experimental evidence of twin-planes in the ab plane studied in large c-axis  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  samples. *Physical Review B*, Woodbury, v. 58, n. 22, p. 15189-15197, Dec. 1998.
- [90] OLSSON, R. J. et al. Bose glass transition in columnar-defected untwinned  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Physical Review B*, Melville, v. 65, n. 10, 104520 6p., Mar 2002.
- [91] KRUSIN-ELBAUM, L. et al. Bose-glass melting in  $\text{YBaCuO}$  crystals with correlated disorder. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 12, p. 1914-1917, Mar. 1994.
- [92] YAO, Z. et al. Path of magnetic flux lines through high- $T_c$  copper oxides

- superconductors. *Nature*, London, v. 371, n. 6500, p. 777-779, Oct. 1994.
- [93] CIVALE, L. et al. Vortex confinement by columnar defects in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  crystals: enhanced pinning at high fields and temperatures. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 5, p. 648-651, July 1991.
- [94] CRISAN, M. *Theory of superconductivity*. Singapore: World Scientific, 1989. p. 13-23.
- [95] GINZBURG, V. L. Superconductivity and superfluidity (What was done and what was not). *Physics-Uspekhi*, Letchworth, v. 40, n. 4, p. 407-432, April 1997.
- [96] GINZBURG, V. L. Several remarks on second-order phase transitions and microscopic theory of ferroelectrics. *Soviet Physics-Solid State*, New York, v. 2, n. 9, p. 1824-1834, Mar. 1961.
- [97] GORKOV, L.P. Microscopic derivation of the Ginzburg-Landau equations in the theory of superconductivity. *Soviet Physics JETP*, New York, v. 36, n. 6, p. 1364-1367, Dec. 1959.
- [98] BARDEEN, J.; COOPER, L. N.; SCHRIEFFER, J. R. Theory of superconductivity. *Physical Review*, New York, v. 108, n. 5, p.1175-1204, Dec. 1957.
- [99] ASLAMAZOV, L. G.; LARKIN, A. I. Effect of fluctuations on the properties of a superconductor above the critical temperature. *Soviet Physics-Solid State*, New York, v.10, n. 4, p. 875-880, Oct. 1968.
- [100] Di CASTRO, C. et al. Fluctuation conductivity of high- $T_c$  superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 42, n. 4, p. 10211-10214, Oct. 1990.
- [101] LAWRENCE, W. E.; DONIACH, S. Theory of layer structure superconductors. In: INTERNATIONAL CONFERENCE ON LOW TEMPERATURE PHYSICS, 12, 1970, Kyoto. *Proceedings of the...* Edited by E. Kando. Kyoto: Academic Press of Japan, 1971. p. 361-362.
- [102] THOMPSON, R. S. Microwave, flux flow, and fluctuations resistance of dirty type-II superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 1, n. 1, p. 327-333, Jan. 1970.
- [103] PUREUR, P. et al. Critical and Gaussian conductivity fluctuations in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-y}$ . *Physica Review B*, Woodbury, v. 47, n. 17, p. 11420-11425, May 1993.

- [104] PUREUR, P. et al. Critical and Gaussian conductivity fluctuations in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  and  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ . *Physica C*, Amsterdam, v. 235/240, p. 1939-1940, Dec. 1994. pt. 3.
- [105] POMAR, A. et al. Fluctuation-induced in-plane conductivity, magnetoconductivity, and diamagnetism of  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$  single crystals in weak magnetic fields. *Physical Review B*, Woodbury, v. 54, n. 10, p. 7470-7480, Sept. 1996.
- [106] CHAR, K.; KAPITULNIK, A. Fluctuation conductivity inhomogeneous superconductors. *Zeitschrift fur Physik B*, Berlin, v. 72, n. 2, p. 253-259, Aug. 1988.
- [107] HOHENBERG, P. C.; HALPERIN, B. I. Theory of dynamic critical phenomena. *Review of Modern Physics*, Woodbury, v. 49, n. 3, p. 435-480, July 1977.
- [108] LOBB, C. J. Critical fluctuations in high  $T_c$  superconductors. *Physical Review B*, Woodbury v. 36, n. 7, p. 3930-3932, Sept. 1987.
- [109] PIERSON, S. W. et al. Critical fluctuations and lowest-Landau-level scaling of the specific heat of high-temperature superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 53, n. 13, p. 8638-8642, Apr. 1996.
- [110] WELP, U.; FLESHLER, S.; KWOK, W. K. High-field scaling behavior of thermodynamic and transport quantities of  $\text{YBaCuO}$  near the superconducting transition. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 67, n. 22, p. 3180-3183, Nov. 1991.
- [111] LAWRIE, I. D. Scaling in high-temperature superconductors. *Physical Review B*, Woodbury, v. 50, n. 13, p. 9456-9462, Oct. 1994.
- [112] OVEREND, N.; HOWSON, M. A.; LAWRIE, I. D. 3d X-Y scaling of the specific heat of  $\text{YBaCuO}$  single crystals. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 72, n. 20, p. 3238-3241, May 1994.
- [113] JURELO, A. R. et al. Coherence transition in granular high temperature superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 311, n. 2, p. 133-139, Jan. 1999.
- [114] SALAMON, M. B. et al. XY-like critical behavior of the thermodynamic and

- transport properties of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  in magnetic fields near  $T_c$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 47, n. 9, p. 5520-5523, Mar. 1993.
- [115] ROSENBLATT, J. *Percolation, localization and superconductivity*. New York: Plenum, 1984. p. 564.
- [116] PEYRAL, P.; LEBEAU, C.; ROSENBLATT, J. Scaling in superconducting ceramics. *Journal of Less Common Metals*, Lausanne, v. 151, n. 1/2, p. 49-54, May 1989.
- [117] KOCH, R.H. et al. Experimental evidence for vortex-glass superconductivity in Y-Ba-Cu-O. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 63, n. 14, p. 1511-1514, Oct. 1989.
- [118] ABRIKOSOV, A. A. *Fundamentals of the theory of metals*. Amsterdam: North-Holland, 1988. p. 120-135.
- [119] JURELO, A. R. *Efeitos de flutuações térmicas em supercondutores de alta temperatura crítica*. 1998. 172 f. Tese (Doutorado em Ciências)-Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [120] KAISER, D. L. et al. Growth and microstructure of superconducting  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  single crystals. *Journal of Crystal Growth*, Amsterdam, v. 85, n. 4, p. 593-598, Dec. 1987.
- [121] KEESTER, K. L.; HOUSLEY, R. M.; MARSHALL, D. B. Growth and characterization of large  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  single crystals. *Journal of Crystal Growth*, Amsterdam, v. 91, n. 3, p. 295-301, Aug. 1988.
- [122] LIN, C. T. et al. Growth of large and untwinned single crystal of YBCO. *Physica C*, Amsterdam, v. 195, n. 3/4, p. 291-300, June 1992.
- [123] WANG, Y. et al. Crystal growth and surface morphology of Pb, Bi, Sr, Ca, Cu, O high  $T_c$  superconductors. *Applied Physics A*, Berlin, v. 52, n. 5, p. 348-352, May 1991.
- [124] SANO, M.; HAYAKAWA, Y.; KUMAGAWA, M. Crystal growth of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$  in boat crucibles under a horizontal thermal gradient. *Superconductor Science and Technology*, Bristol, v. 9, n. 10, p. 864-868, Oct. 1996.
- [125] ROUTBORT, J. L.; ROTHMAN, S. J. Oxygen diffusion in cuprate superconductors. *Journal of Applied Physics*, Woodbury, v. 76, n. 10, p. 5615-5628, Nov. 1994.

- [126] CONDER, K.; KRUGER, C. Low temperature (< 325 °C) chemical diffusion of oxygen in the orthorhombic  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_x$ . *Physica C*, Amsterdam, v. 269, n. 1/2, p. 92-98, Sept. 1996.
- [127] GANGNOM, R.; OUSSENA, M.; AUBIN, M. Growth of large  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-x}$  crystals in the presence of a temperature gradient. *Journal of Crystal Growth*, Amsterdam, v. 114, n. 1/2, p. 186-190, Oct. 1991.
- [128] VIEIRA, V. N.; SCHAF, J. Anisotropic irreversibility of the Abrikosov and Josephson flux dynamics in  $\text{YBa}_{2-x}\text{Sr}_x\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  single crystals: Bose-glass and vortex glass features. *Physical Review B*, Melville, v. 65, n. 14, 144531 9p., Apr. 2002.
- [129] VIEIRA, V. N.; SCHAF, J. Bose-glass, vortex-glass and superconducting-glass properties in Sr doped  $\text{YBaCuO}$  single crystals. *Physica C*, Amsterdam, v. 384 n. 4, p. 514-524, Feb. 2003.
- [130] VIEIRA, V. N.; PUREUR, P.; SCHAF, J. The effects of Sr and Ca on the magnetic irreversibility and fluctuation conductivity of YBCO-123. *Physica C*, Amsterdam, v. 353 n. 3/4, p. 241-250, May 2001.
- [131] VIEIRA, V. N.; SILVA, J. P. da; SCHAF, J. Irreversibility limits of the Abrikosov and Josephson flux dynamics in homogeneous and granular high- $T_c$  superconductors. *Physical Review B*, Melville, v. 64, n. 9, 94516 7p., Sept. 2001.
- [132] VIEIRA, V. N.; PUREUR, P.; SCHAF, J. Effects of Zn and Mg in Cu sites of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$  single crystals on the resistive transition, fluctuation conductivity and magnetic irreversibilities. *Physical Review B*, Woodbury, v. 66, n. 22, 224506 11p., Dec. 2002.
- [133] VIEIRA, V. N.; PUREUR, P.; SCHAF, J. Magnetic irreversibility limits of the Abrikosov and Josephson-flux dynamics in doped YBCO-123 superconductors. *Physica C*, Amsterdam, v. 354, n. 1/4; p. 299-303, May 2001.
- [134] NAKAYAMA, Y. et al. Influence of electromagnetic anisotropy on the flux pinning strength of columnar defects in  $\text{Bi}_{2-2x}\text{Pb}_x\text{Sr}_{1.8}\text{CaCu}_2\text{O}_y$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 62, n. 2, p. 1452-1456, July 2000.
- [135] ZECH, D. et al. Phase diagram of  $\text{Bi}_{2.15}\text{Sr}_{1.85}\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$  in the presence of columnar defects. *Physical Review B*, Woodbury, v. 54, n. 9, p. 6129-6136, Sept. 2002.

- [136] ZHUO, Y. et al. Effects of Sr substitution on dimensionality and superconducting properties of  $\text{Hg}_{0.7}\text{Pb}_{0.3}\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_y$ . *Physical Review B*, Melville, v. 60, n. 18, p. 13094-13098, Nov. 1999.
- [137] ANGST, M. et al. Critical currents and order-disorder phase transition in the vortex states of  $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$  with chemically introduced disorder. *Physical Review B*, Woodbury, v. 65, n. 9, 94518 11p., Mar. 2002.
- [138] SPIVAK, B. I.; KIVELSON, S. A. Negative local superfluid densities: the difference between dirty superconductors and dirty Bose liquids. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 43, n. 4-B, p. 3740-3743, Feb. 1991.
- [139] KOTLIAR, G.; SOMPOLINSKY, H. Phase transition in a Dzyaloshinsky-Moriya spin-glass. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 53, n. 18, p. 1751-1754, Oct. 1984.
- [140] DEUTSCHER, G.; MULLHE, K. A. Origin of superconductive glassy and extrinsic critical currents in high- $T_c$  oxides. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 59, n. 15, p. 1751-1754, Oct. 1984.
- [141] DAEUMLING, M.; SEUNTJENS, J. M.; LARBALESTIER, D. C. Oxygen-defect flux pinning, anomalous magnetization and intra-grain granularity in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ . *Nature*, London, v. 346, n. 6282, p. 332-335, July 1990.
- [142] SCHAF, J.; PUREUR, P.; KUNZLER, J. V. Glass behavior and the H-T phase diagram of the high- $T_c$  ceramic superconductors  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ ,  $\text{EuBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$  and  $\text{GdBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ . *Physical Review B*, Woodbury, v. 40, n.10, p. 6948-6954, Oct. 1989.
- [143] VIEIRA, V. das N. *Irreversibilidades magnéticas e flutuações termodinâmicas no YBCO-123 com substituição parcial por átomos de Sr, Ca e Mg*. 1998. 116 f. Dissertação (Mestrado em Física) – Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [144] LANG, K. M. et al. Imaging the granular structure of high- $T_c$  superconductivity in underdoped  $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ . *Nature*, London, v. 415, n. 6870, p. 412-416, Jan. 2002.
- [145] COSTA, R. M.; PUREUR, P.; GUSMÃO, M. Fluctuation magnetoconductivity in  $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$ : Gaussian, three-dimensional XY, beyond three-dimensional XY, and lowest-Landau-level scaling. *Physical Review B*, Woodbury, v. 64, n. 21, 214513 9p., Dec. 2001.

- [146] KOUVEL, J. S.; FISHER, M. E. Detailed magnetic behavior of nickel near its Curie point. *Physical Review*, New York, v. 136, n. 6A, p. 1626-1632, Dec. 1964.
- [147] Le GUILLOU, J. C.; ZINN-JUSTIN, J. Critical exponents from field theory. *Physical Review B*, New York, v. 21, n. 9, p. 3976-3998, May 1980.
- [148] HOHENBERG, P. C.; HALPERIN, B. I. Theory of dynamics critical phenomena. *Reviews of Modern Physics*, New York, v. 49, n. 3, p. 435-479, July 1977.
- [149] DIAS, F. T. *Expansão térmica, magnetização e flutuações na condutividade elétrica do sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* . 1998. 128 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1998.
- [150] FERREIRA, L. M. *Efeitos de granularidade e flutuações termodinâmicas em supercondutores de  $YBa_2Cu_{3-x}Zn_xO_{7-\delta}$* . 1997. 117 f. Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1997.
- [151] ROJAS, J. R. *Flutuações nas propriedades de magneto transporte de supercondutores de alta temperatura crítica*. 1999. 192 f. Tese (Doutorado em Ciências) - Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto Alegre, 1999.
- [152] HALPERIN, B. I.; LUBENSKY, T. C.; MA, S. K. First-order phase transitions in superconductors and smectic-A liquid crystals. *Physical Review Letters*, Woodbury, v. 32, n. 6, p. 292-295, Feb. 1974.
- [153] ROSENBLATT, J. et al. Coherence in 3D networks: applications on high- $T_c$  superconductors. *Physica B*, Amsterdam, v. 152, n. 1/2, p. 95-99, Aug. 1988.
- [154] FABRIS, F. W.; ROA-ROJAS, J.; PUREUR, P. Magnetotransport properties and the irreversibility line in ceramic  $DyBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . *Physica C*, Amsterdam, v. 354, n. 1/4, p. 304-308, May 2001.
- [155] WENGEL, C.; YONG, A. P. Common universality class for the three-dimensional vortex glass and chiral glass. *Physical Review B*, Woodbury, v. 56, n. 10, p. 5918-5924, Sept. 1997.
- [156] ZIPPELIUS, A. Critical dynamics of spin-glasses. *Physical Review B*, Woodbury, v. 29, n. 5, p. 2717-2723, Mar. 1984.