

**UNIVERSIDADE FEDERAL DE PELOTAS
INSTITUTO DE FÍSICA E MATEMÁTICA
PROGRAMA DE PÓS-GRADUAÇÃO EM FÍSICA**



Dissertação

**Título: SÍNTESE E CARACTERIZAÇÃO DO SUPERCONDUTOR
 $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$**

Catiane Picanço de Oliveira

Pelotas, 2014

Catiane Picanço de Oliveira

SÍNTESE E CARACTERIZAÇÃO DO SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

Dissertação apresentada ao programa de Pós-Graduação em Física do Instituto de Física e Matemática da Universidade Federal de Pelotas, como requisito parcial à obtenção do título de Mestre em Física.

Orientador: Fábio Teixeira Dias

Pelotas, 2014

Agradecimentos

- A Deus por ter permitido que esta etapa fosse cumprida.
- Ao meu orientador, prof. Fábio Teixeira Dias, pelo aprendizado, compreensão e muita paciência.
- Aos professores, Dr. Douglas Langie da Silva e Dr. Valdemar das Neves Vieira por suas contribuições ao aprendizado, ao trabalho e às medidas realizadas.
- Aos pesquisadores Dr. Paulo Pureur e Dr. Jacob Schaf, do Laboratório de Magnetismo e Supercondutividade da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, por possibilitarem a realização das medidas elétricas e magnéticas apresentadas neste trabalho.
- Aos alunos de doutorado Moisés de Almeida e Fabiano Mesquita, também do Laboratório de Magnetismo e Supercondutividade da Universidade Federal do Rio Grande do Sul, que colaboraram na realização das medidas de magnetorresistência e magnetização.
- Às colegas de pesquisa e amigas, Lutiene e Daniela, que sempre se dispuseram a me ajudar na hora do sufoco e ao nosso amigão Dudu (Eduardo Ribas) que nos suportou durante todos esses anos, obrigada de coração.
- Aos colegas Ganso, Alemão, Tiagão, Betinha, Evelin, Lu, Dani, Dudu, Yuri e Fabinho que tornaram estes dois anos um pouco mais divertidos.
- A toda minha família pelo apoio incondicional em todos os momentos especialmente os difíceis, amo muito vocês.
- Ao Elio por seu amor, paciência, compreensão e apoio nos muitos momentos de estresse.
- A todos que, de alguma forma, contribuíram para a realização deste trabalho.

Resumo

No presente trabalho é apresentado um estudo experimental das propriedades elétricas e magnéticas do supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ (Y358). Para este estudo foi preparada uma amostra policristalina de Y358 pela técnica de reação em estado sólido, a qual foi caracterizada estruturalmente através de difração de raios-X, microscopia eletrônica de varredura e análise de espectroscopia por energia dispersiva (EDS). Os resultados obtidos através destas técnicas evidenciaram o caráter acentuadamente granular da amostra. Para o estudo das propriedades magnéticas foram realizadas medidas de magnetização seguindo os procedimentos ZFC e FC, para as quais foram aplicados campos magnéticos desde zero até 10 kOe. Através dos resultados de magnetização foi possível determinar a linha de irreversibilidade magnética (LIM), a qual teve seu comportamento descrito pelo modelo do vidro supercondutor, apresentando um *crossover* do regime Almeida-Thouless (AT) para o regime Gabay-Toulouse (GT), em $H = 1$ kOe. A funcionalidade da LIM descrita pelo regime GT persistiu até o alto valor de 10 kOe. As propriedades elétricas da amostra foram estudadas através de medidas de magnetorresistência, as quais foram realizadas no intervalo de campo magnético compreendido entre 0 e 10 kOe. A análise dos resultados mostraram uma forte redução na temperatura em que a resistência nula é atingida (T_{c0}) com o aumento do campo magnético, bem como uma redução na temperatura crítica de transição para o estado supercondutor. A partir da derivada da resistividade em função da temperatura observou-se a presença de dois picos, indicando que a transição resistiva da amostra é um processo que ocorre em duas etapas. Os resultados obtidos com as medidas de magnetização e magnetorresistência permitiram correlacionar a resistividade nula e a irreversibilidade magnética, cuja análise mostrou que as temperaturas de resistividade nula ocorrem para valores bem abaixo do limite irreversível, o que é esperado para um sistema granular. Além disso, foram estudadas as flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica. Na fase normal foram identificados regimes Gaussianos, crítico e um regime supercrítico, enquanto que na aproximação do estado de resistência nula os resultados mostraram um regime em lei de potência correspondente à transição de fase paracoerente-coerente típica de sistemas granulares. O regime supercrítico apresentou-se bastante robusto frente a aplicação de campos magnéticos até 2,5 kOe. Os demais regimes se mostraram consideravelmente estáveis com a aplicação de campos magnéticos até o limite de 10 kOe empregado neste trabalho.

Abstract

In this approach an experimental study of the electrical and magnetic properties of the superconducting $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ (Y358) is presented. For this study was prepared a polycrystalline sample of Y358 by solid state reaction, which was structurally characterized by X-ray diffraction, scanning electron microscopy and energy dispersive spectroscopy (EDS). The results obtained by these techniques showed the granular feature of our sample. In order to study the magnetic properties, magnetization measurements following the ZFC and FC procedures were performed from zero to 10 kOe. With the results of magnetization was possible to determine the magnetic irreversibility line (LIM), which had its behavior described by the superconducting glass model, showing a crossover of the Almeida-Thouless regime (AT) to the Gabay-Toulouse regime (GT), for $H = 1$ kOe. The LIM functionality described by GT regime persisted until the high value of 10 kOe. The electrical properties were studied by magnetoresistance measurements, which were performed in the magnetic field range between 0 and 10 kOe. The results showed a strong reduction in the zero resistance temperature (T_{CO}) when the magnetic field is increased, as well as a reduction in the critical temperature to the superconducting state. From the derivative of the resistivity with the temperature was observed the presence of two peaks, indicating that the resistive transition of the sample is a process that occurs in two steps. The results obtained with the magnetization and magnetoresistance allowed to correlate the zero resistivity and the magnetic irreversibility, which showed that the zero resistance temperature occurs for values well below of the irreversible limit, which is expected for a granular system. Furthermore, the thermodynamic fluctuations in the electrical conductivity were studied. In normal phase Gaussian regimes, critical and supercritical regimes were identified, while in the approximation of the zero resistance state the results showed a regime in power law corresponding to the typical paracoherent-coherent phase transition of granular systems. The supercritical regime presented a robust characteristic for magnetic fields up to 2.5 kOe. The other power low regimes showed a considerable stability with the application of magnetic fields up to 10 kOe.

Lista de Figuras

Figura 1.1 – Evolução da temperatura crítica T_C em função do tempo para diversos materiais supercondutores	2
Figura 1.2 – Estrutura ortorrômbica do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	4
Figura 1.3 – Estrutura cristalina do sistema $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	6
Figura 1.4 – Descrição das etapas seguidas na síntese de amostras sinterizadas	8
Figura 1.5 – Amostra texturizada	9
Figura 1.6 – Princípio de texturização via método de Bridgman	10
Figura 1.7 – Amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ crescida pela técnica sol-gel	11
Figura 1.8 – Difração de raios-X para o composto Y358	12
Figura 1.9 – Curva de $(\rho \times T)$ para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	13
Figura 1.10 – Transição supercondutora para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	14
Figura 1.11 – Curva de susceptibilidade magnética AC para o $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	15
Figura 1.12 – Transição supercondutora para diferentes sistemas da família YBaCuO	16
Figura 1.13 – Susceptibilidade magnética para os sistemas Y123, Y247 e Y124.....	17
Figura 2.1 – Comportamento resistivo para uma amostra monocristalina de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	19
Figura 2.2 – Resistividade elétrica e dp/dt para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	21
Figura 2.3 – Fases paracondutora, paracoerente e coerente.....	29
Figura 2.4 – Transição supercondutora para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ na presença de campo magnético	30
Figura 2.5 – Diagrama de fases H - T para um supercondutor do tipo II	32
Figura 2.6 – Estrutura de um vórtice	33
Figura 2.7 – Rede de vórtices de Abrikosov para um supercondutor homogêneo	33

Figura 2.8 – Magnetização ZFC e FC numa amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	35
Figura 2.9 – Linha de irreversibilidade magnética genérica	36
Figura 2.10 – Modelo do vidro de vórtices	39
Figura 2.11 – Modelo de fusão da rede de vórtices	41
Figura 3.1 – Rampa de calcinação	43
Figura 3.2 – Rampa de sinterização.....	44
Figura 3.3 – Criostato (PPMS)	45
Figura 3.4 – Estrutura interna do criostato	46
Figura 3.5 – Contatos elétricos sobre a amostra	47
Figura 3.6 - Magnetômetro de SQUID	49
Figura 3.7 – Sistema criogênico do magnetômetro de SQUID.....	50
Figura 3.8 – Imagem de MEV (500X) para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	53
Figura 3.9 – Imagem de MEV (2.000X) para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	53
Figura 3.10 – Imagem de MEV (10.000X) para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	53
Figura 3.11 – EDS do $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	55
Figura 3.12 – Difratoograma de raios-X do $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	56
Figura 4.1 – Curvas de magnetização ZFC para o $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	59
Figura 4.2 – Diagrama $M_{ZFC} \times H$ para o $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	60
Figura 4.3 – Medida de magnetização ZFC para $H = 10$ Oe.....	61
Figura 4.4 – Curvas de magnetização FC para o $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	63
Figura 4.5 – Magnetização segundo os procedimentos ZFC e FC para 500 Oe e 7,5 kOe, com indicação da temperatura de irreversibilidade magnética T_{irr}	65
Figura 4.6 – Magnetização segundo os procedimentos ZFC e FC para o campo magnético aplicado de 250 Oe, com indicação da temperatura de irreversibilidade magnética T_{irr}	66
Figura 4.7 – LIM para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	68
Figura 5.1 – Transição supercondutora para a amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	72

Figura 5.2 – Detalhe da transição resistiva da amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ sem campo magnético aplicado, com o valor de T_{C0} indicado.....	73
Figura 5.3 – Correlação entre a resistividade nula e a irreversibilidade magnética.....	75
Figura 5.4 – Derivada da resistividade em função da temperatura ($d\rho/dT$), com a indicação da temperatura de pareamento (T_p) e da temperatura de resistividade nula (T_0).....	76
Figura 5.5 – Derivada da resistividade em função da temperatura, $d\rho/dT$, para cada um dos valores de campo magnético aplicado.....	77
Figura 5.6 – Extrapolação do comportamento linear de alta temperatura da resistividade do Y358 em campo magnético nulo.....	79
Figura 5.7 – Curva representativa de χ_σ^{-1} para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ a campo nulo.....	81
Figura 5.8 – Curvas representativas de χ_σ^{-1} em função da temperatura para o Y358.....	83
Figura 5.9 – Comportamento dos regimes críticos	89
Figura 5.10 – Regimes de aproximação ao estado de resistência nula	94

Lista de Tabelas

Tabela 1.1 – Alguns dos sistemas supercondutores da família YBCO e suas respectivas temperaturas críticas	5
Tabela 3.1 – Parâmetros de rede para a amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	57
Tabela 4.1 – Temperaturas de irreversibilidade magnética obtidas para os diferentes valores de campo magnético aplicado.....	67
Tabela 4.2 – Parâmetros de ajuste para a LIM segundo o modelo Vidro Supercondutor.....	69
Tabela 5.1 – Temperatura de resistividade nula T_{CO} (H) para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ investigada neste trabalho.....	74
Tabela 5.2 – Valores de T_p e T_0 determinados a partir das curvas da derivada da resistividade em função da temperatura, dp/dT , para cada valor de campo magnético aplicado.....	78
Tabela 5.3 – Valores das constantes que descrevem o comportamento linear de alta temperatura da resistividade do Y358, de acordo com a equação 5.2.....	80
Tabela 5.4 – Valores dos expoentes representativos das flutuações gaussianas na amostra de Y358 investigada neste trabalho	84
Tabela 5.5 – Relação dos valores das amplitudes Gaussianas, do comprimento de coerência $\xi(0)$, e do espaçamento entre os planos supercondutores d , para os diferentes valores de campo magnético aplicado.....	86
Tabela 5.6 – Valores dos expoentes relativos às flutuações críticas na amostra de Y358	90
Tabela 5.7 – Relação das amplitudes críticas obtidas para os diferentes valores de campo magnético aplicado	91
Tabela 5.8 – Relação dos valores da temperatura de Ginzburg e do número de Ginzburg obtidos para os diferentes valores de campo magnético aplicados à amostra de Y358.....	92
Tabela 5.9 – Relação dos valores dos expoentes S_0 , da temperatura T_{CO} , e da amplitude A_0 para a amostra na presença de diferentes intensidades de campo magnético aplicado.....	94

Sumário

Agradecimentos

Resumo

Abstract

Lista de Figuras

Lista de Tabelas

Sumário

Introdução

Capítulo 1 - O SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	1
1.1 A SUPERCONDUTIVIDADE DE ALTA TEMPERATURA CRÍTICA.....	1
1.1.1 A descoberta.....	1
1.1.2 Supercondutores de alta temperatura crítica.....	3
1.1.3 O supercondutor $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$	3
1.1.4 A família $YBaCuO$	5
1.2 O SISTEMA SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	5
1.3 SÍNTESE DO SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	6
1.3.1 Sinterização.....	7
1.3.2 Texturização.....	8
1.3.3 Técnica sol-gel.....	10
1.4 RESULTADOS EXPERIMENTAIS PARA O $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	11
1.4.1 Caracterização estrutural.....	12
1.4.2 Comportamento magnético e resistivo.....	13

1.5 DIFERENÇAS ENTRE A FAMÍLIA YBaCuO.....	15
Capítulo 2 - FUNDAMENTOS TEÓRICOS.....	18
2.1 PROPRIEDADES DE TRANSPORTE.....	18
2.1.1 Anisotropia do comportamento resistivo.....	18
2.1.2 Granularidade e desordem.....	19
2.1.3 Flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica.....	22
2.1.3.1 Teoria de Ginzburg-Landau.....	22
2.1.3.2 Flutuações na condutividade elétrica em $T > T_C$	24
2.1.3.3 Flutuações na condutividade elétrica em $T < T_C$	28
2.1.4 Efeito do campo magnético.....	30
2.2 PROPRIEDADES MAGNÉTICAS.....	31
2.2.1 Comportamento ZFC, FC e irreversibilidades na magnetização.....	34
2.2.2 Linha de irreversibilidade magnética.....	35
2.2.3 Interpretações para a linha de irreversibilidade magnética.....	36
2.2.3.1 Flux Creep Gigante.....	37
2.2.3.2 Vidro Supercondutor.....	37
2.2.3.3 Vidro de Vórtices.....	39
2.2.3.4 Fusão da Rede de Vórtices.....	40
Capítulo 3 - TÉCNICAS EXPERIMENTAIS E CARACTERIZAÇÃO.....	42
3.1 CRESCIMENTO DA AMOSTRA DE $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	42
3.2 MEDIDAS DE RESISTIVIDADE ELÉTRICA E MAGNETORRESISTÊNCIA.....	44
3.2.1 Descrição e funcionamento do equipamento.....	45
3.2.2 Preparação da amostra.....	46
3.2.3 Procedimentos de medidas.....	48
3.3 MEDIDAS DO MOMENTO MAGNÉTICO.....	48

3.3.1	Descrição e funcionamento do equipamento.....	48
3.3.2	Preparação da amostra.....	51
3.3.3	Procedimento de medida.....	52
3.4	CARACTERIZAÇÃO MICROSCÓPICA	52
3.4.1	Microscopia eletrônica de varredura (SEM – Scanning Electron Microscope).....	52
3.4.2	Espectroscopia por energia dispersiva de raios – X (EDS – Energy Dispersive Spectroscopy).....	54
3.5	DIFRAÇÃO DE RAIOS – X.....	55
Capítulo 4	- COMPORTAMENTO MAGNÉTICO DO SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	58
4.1	MAGNETIZAÇÃO ZFC E FC.....	58
4.1.1	Magnetização ZFC – efeito de blindagem.....	58
4.1.1.1	Caracterização da transição supercondutora.....	61
4.1.2	Magnetização FC – Efeito Meissner.....	62
4.1.3	Comportamento irreversível da magnetização.....	64
4.1.3.1	Determinação da temperatura de irreversibilidade magnética.....	66
4.1.3.2	Linha de irreversibilidade magnética.....	67
Capítulo 5	- COMPORTAMENTO ELÉTRICO DO SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	71
5.1	COMPORTAMENTO RESISTIVO ($\rho \times T$).....	71
5.2	DETERMINAÇÃO DA RESISTIVIDADE NULA.....	72
5.2.1	Correlação entre a resistividade nula e a irreversibilidade magnética.....	74
5.3	DERIVADA DA RESISTIVIDADE ELÉTRICA ($d\rho \times dT$).....	75
5.4	FLUTUAÇÕES TERMODINÂMICAS NA CONDUTIVIDADE ELÉTRICA DO SISTEMA $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	78
5.4.1	Método de análise.....	78
5.4.1.1	Determinação da condutividade regular.....	79
5.4.1.2	Obtenção da contribuição das flutuações à condutividade.....	80

5.4.2 Flutuações termodinâmicas na fase normal.....	82
5.4.2.1 Flutuações Gaussianas.....	82
5.4.2.2 Flutuações Críticas.....	87
5.4.2.3 O número de Ginzburg.....	91
5.4.3 Flutuações termodinâmicas na aproximação da resistência nula.....	93
5.4.4 Comparação com o sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123).....	95
Conclusões.....	96
Referências.....	100

Introdução

Desde a descoberta dos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica por Müller e Bednorz, em 1986, uma enorme corrida científica têm sido feita em busca da investigação de suas propriedades básicas, além da síntese de novos materiais, tanto para investigação quanto para aplicações tecnológicas. A descoberta dos supercondutores da família YBaCuO, com o trabalho pioneiro de Wu, Chu e col. com o sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, em 1987, abriu caminho para o desenvolvimento das primeiras aplicações tecnológicas em larga escala, dado o fato deste supercondutor apresentar uma temperatura crítica próxima de 93 K, acima do ponto de ebulição do nitrogênio (77 K).

A família de supercondutores YBaCuO possui diversos sistemas, dependendo da estequiometria dos elementos presentes, como por exemplo os sistemas $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$, $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15}$, e recentemente o sistema $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$. Este último foi sintetizado pela primeira vez em 2009, por M. Akhavan e col.. A grande vantagem deste sistema em relação aos demais, e principalmente em relação ao conhecido $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123), o qual têm sido amplamente estudado desde a sua descoberta, é a sua elevada temperatura crítica. Segundo alguns autores essa diferença pode ser creditada à estrutura desse material. Enquanto no supercondutor Y123 têm-se uma estrutura cristalina formada por dois planos de Cu-O₂ e uma cadeia de Cu-O, no supercondutor $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ existem cinco planos de Cu-O₂ e três cadeias de Cu-O. Essa significativa diferença abre possibilidade para toda uma nova fenomenologia a ser investigada experimentalmente.

Este trabalho é fundamentado na síntese do supercondutor $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ com a consequente investigação de suas propriedades básicas através de técnicas de caracterização conhecidas, tais como microscopia eletrônica de varredura, difração de raios-X, espectroscopia, magnetotransporte eletrônico e magnetometria.

O capítulo 1 apresenta um breve histórico do fenômeno da supercondutividade, incluindo uma abordagem sobre a estrutura cristalina dos supercondutores de alta temperatura crítica, em especial do supercondutor $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$.

No capítulo 2 são descritas algumas das propriedades elétricas e magnéticas dos supercondutores de alta temperatura crítica, destacando alguns dos modelos teóricos empregados na interpretação dos regimes de flutuações termodinâmicas, bem como da linha de irreversibilidade magnética e os principais modelos teóricos utilizados na sua interpretação. Neste capítulo também

são discutidas algumas das diferenças entre os diversos sistemas da família YBaCuO.

O capítulo 3 descreve a técnica experimental de síntese do supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ utilizado neste trabalho, bem como a apresentação dos equipamentos utilizados nas medidas de magnetorresistência e magnetização. Neste capítulo também são apresentados os resultados obtidos por microscopia eletrônica de varredura, difração de raios-X e EDS.

No capítulo 4 são apresentados os resultados e as discussões para as medidas de magnetização, dando ênfase a obtenção da linha de irreversibilidade magnética e sua respectiva interpretação.

O capítulo 5 é dedicado a apresentação dos resultados e das discussões para as medidas de magnetorresistência elétrica. O comportamento resistivo, os detalhes da transição supercondutora, bem como a evolução decorrente da aplicação de campo magnético, foram caracterizados através de medidas de resistividade elétrica e do estudo da derivada da resistividade em função da temperatura ($d\rho/dT$) nas proximidades de T_C . Na sequência, é realizada uma correlação entre as linhas de irreversibilidade magnética e resistência nula, com a consequente interpretação. No final deste capítulo são apresentados os resultados da análise da contribuição de flutuações termodinâmicas à condutividade na fase normal e na aproximação ao estado de resistência nula, os quais são discutidos e interpretados no contexto dos modelos apresentados no capítulo 2.

Por fim, as principais conclusões obtidas são apresentadas resumidamente.

Capítulo 1

O SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

1.1 A SUPERCONDUTIVIDADE DE ALTA TEMPERATURA CRÍTICA

1.1.1 A descoberta

A primeira observação do fenômeno da supercondutividade foi em 1911 em um laboratório em Leiden, na Holanda, quando Heike Kammerling Onnes ^[1] estudava a resistividade elétrica do mercúrio e verificou que este, quando submetido abaixo de uma dada temperatura (aproximadamente 4K), depois denominada temperatura crítica (T_C) ou temperatura de transição, podia transportar corrente elétrica sem nenhuma resistência elétrica aparente. Este fenômeno foi identificado por Onnes como sendo uma transição de fase de um estado com resistência normal para outro com resistência nula.

Durante várias décadas não houve um aumento significativo na temperatura crítica (T_C) dos materiais supercondutores, apesar dos muitos esforços. Até o início da década de 80, a liga de nióbio-germânio Nb_3Ge , com $T_C \approx 23$ K, deteve o recorde de temperatura crítica ^[2]. Na figura 1.1 é possível observar a evolução de T_C com o tempo para diferentes materiais supercondutores.

Em 1986, Georg Bednorz e Karl Alex Muller ^[4] descobriram o primeiro material supercondutor de alta temperatura crítica, o composto $La_{2-x}Ba_xCuO_4$, o qual apresentou o fenômeno da supercondutividade a uma temperatura crítica (T_C) de aproximadamente 30 K. Essa descoberta foi de tal importância que mudou notoriamente o rumo da supercondutividade, pois era um material cerâmico, que geralmente se comportava como isolante, porém apresentava supercondutividade a

uma temperatura elevada.

O estudo destes sistemas teve um grande impulso em 1987, através do trabalho pioneiro de Paul Chu, da Universidade de Houston, e Mang-Kang Wu, da Universidade do Alabama ^[5], que descobriram que ao substituírem na fórmula de Bednorz e Müller o lantânio (La) pelo ítrio (Y), este novo composto resultava no aumento da temperatura crítica para aproximadamente 93 K. O YBaCuO, cuja fase supercondutora a alta temperatura crítica era $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ^[6], foi o primeiro supercondutor com temperatura crítica acima da temperatura de ebulição do nitrogênio líquido (77 K).

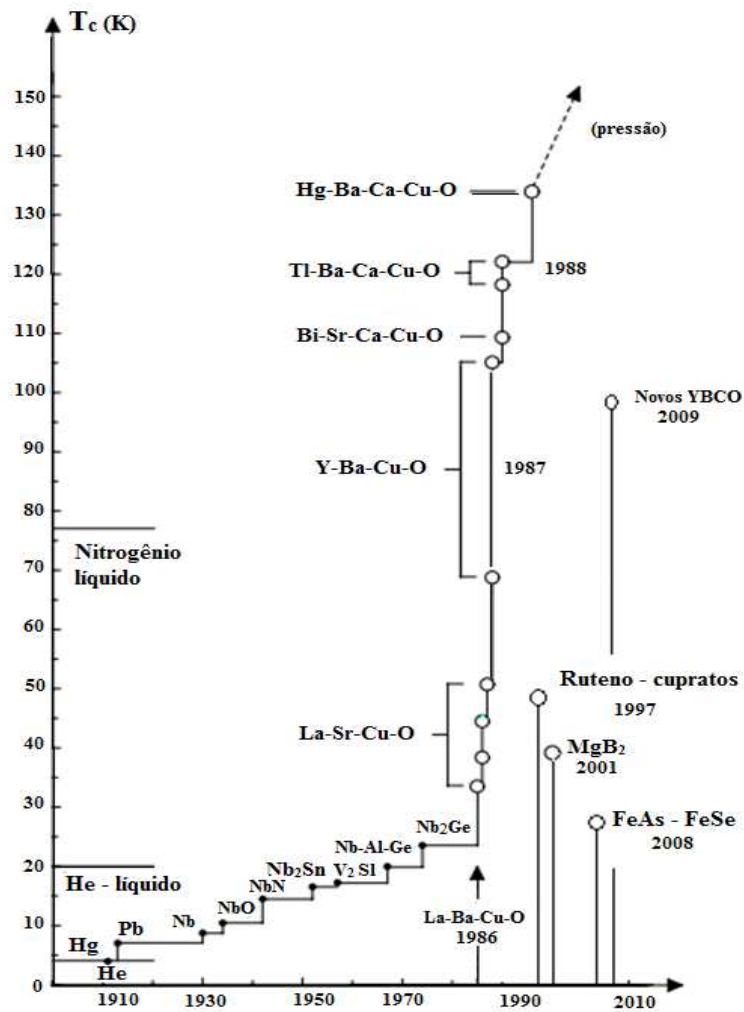


Figura 1.1 - Evolução da temperatura crítica T_c em função do tempo para diversos materiais supercondutores ^[3].

1.1.2 Supercondutores de alta temperatura crítica

Desde 1986 até os dias de hoje o interesse pelos novos óxidos supercondutores mobilizam pesquisadores do mundo inteiro. Foi a partir da descoberta da supercondutividade em $T \approx 30\text{K}$ que se deu início à investigação nos chamados óxidos de cobre ou cupratos supercondutores.

Os cupratos supercondutores, além dos altos valores de temperatura crítica, apresentam uma série de características próprias, as quais os diferenciam dos supercondutores convencionais de baixa temperatura crítica. Tais propriedades distintas estão intimamente relacionadas à estrutura cristalina destes materiais.

Os supercondutores convencionais de baixa temperatura crítica, por serem compostos metálicos, possuem um grande número de portadores de carga. Estes compostos apresentam um comportamento com baixa anisotropia, além de comprimentos de coerência que variam entre 100 e 1000 Å [7].

Por outro lado os supercondutores de alta temperatura crítica exibem características estruturais complexas, além de possuírem um ou mais planos atômicos de Cu-O₂ adjacentes por cela unitária, variando de acordo com o sistema. Por convenção, estes planos são paralelos ao plano-ab e portanto, perpendiculares ao eixo-c. Dentro de um mesmo grupo, os planos individuais de Cu-O₂ estão separados por átomos metálicos. Estas estruturas de planos de Cu-O₂ encontram-se intercaladas por um número variável de planos atômicos de vários outros óxidos e elementos do tipo terras-raras.

Uma das características mais importantes dos supercondutores de alta temperatura crítica é a acentuada anisotropia planar, a qual se deve essencialmente à estrutura cristalina destes materiais. Como os planos de Cu-O₂, que são excelentes condutores, são separados por camadas de baixa condutividade, espera-se uma acentuada anisotropia na resistividade elétrica. O comprimento de coerência dos cupratos supercondutores têm dimensões próximas às da célula unitária, que é da ordem de ângstrons [7].

1.1.3 O supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ}

Como visto anteriormente, o sistema YBa₂Cu₃O_{7-δ}, onde δ representa o desvio à estequiometria ideal de oxigênio, entrou para a história como sendo o primeiro material a exibir supercondutividade a uma temperatura superior ao ponto de ebulição do nitrogênio líquido (77 K), tornando-se um dos materiais mais estudados de todos os tempos.

Podemos observar o composto $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ em duas simetrias estruturais, as quais são dependentes de δ [8,9]. A estrutura tetragonal não supercondutora é observada para conteúdos baixos de oxigênio, ou seja, $\delta > 0,65$. A estrutura ortorrômbica é a responsável pela supercondutividade e ocorre para um conteúdo de oxigênio em que $\delta \leq 0,65$.

Na figura 1.2 está ilustrada a estrutura cristalina do supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Esta estrutura apresenta os seguintes parâmetros de rede: $a = 3,82 \text{ \AA}$, $b = 3,89 \text{ \AA}$ e $c = 11,68 \text{ \AA}$ [10].

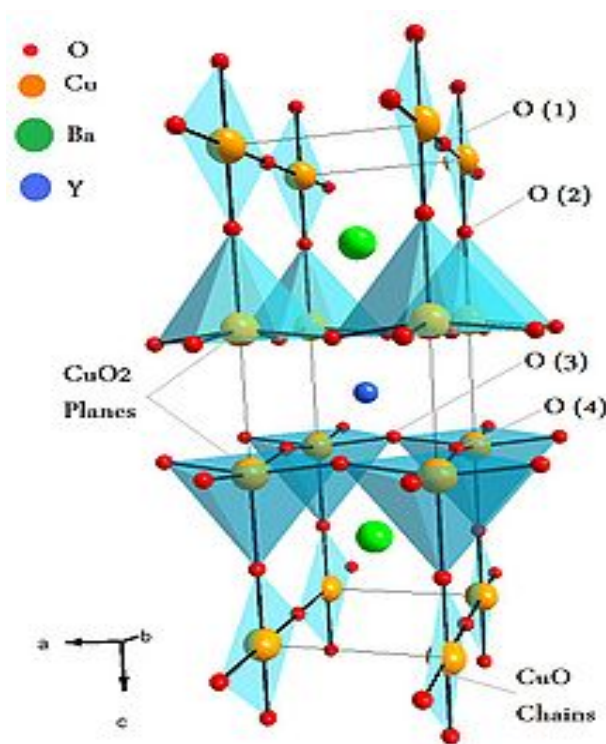


Figura 1.2 - Estrutura ortorrômbica do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [11].

A cela unitária do $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ consiste de dois planos de Cu-O_2 separados por um plano atômico de Y. 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 encontram-se em cada plano de Cu-O_2 ligados a cinco átomos de oxigênio. Um terceiro átomo de cobre está ligado a quatro íons de oxigênio, formando as cadeias unidimensionais de Cu-O dispostas ao longo do eixo-b. Entre as camadas que formam os planos duplos de Cu-O_2 há uma separação de aproximadamente $3,4 \text{ \AA}$. Uma estrutura de duplos planos de Cu-O_2 está separada da estrutura seguinte por uma

distância de 8 Å, e entre elas encontra-se uma sequência de dois planos de Ba-O e cadeias de Cu-O.

O conteúdo de oxigênio no $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ pode variar de 6 a 7 átomos por cela unitária. As propriedades físicas deste supercondutor, e em particular a sua temperatura crítica, dependem consideravelmente da quantidade de oxigênio. O máximo valor de temperatura crítica (T_C) para o $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ ocorre para $\delta \approx 0,07$, o qual situa-se em torno de 93 K.

1.1.4 A família YBaCuO

A família de supercondutores YBaCuO, dependendo da estequiometria dos elementos presentes, é formada por diversos sistemas, como por exemplo os compostos $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123), $\text{YBa}_2\text{Cu}_4\text{O}_8$ (Y124), $\text{Y}_2\text{Ba}_4\text{Cu}_7\text{O}_{15}$ (Y247), e o recente sistema $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ (Y358). As diferenças estruturais, além do número de planos e cadeias, levam a várias propriedades físicas e também diferentes temperaturas críticas.

Na tabela 1.1 estão relacionados alguns sistemas da família de supercondutores YBaCuO e seus respectivos T_C 's, segundo o trabalho de Udomsamuthirun e col.^[12].

Composto	T_C (K)
Y 5-8-13	93
Y 7-11-18	93
Y 1-5-6	93
Y 3-8-11	94
Y 13-20-33	92

Tabela 1.1 - Alguns dos sistemas supercondutores da família YBCO e suas respectivas temperaturas críticas (Adaptada da ref.12).

1.2 O SISTEMA SUPERCONDUTOR $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$

Em 2009, A. Aliabadi, Y. Akhavan Farshchi e M. Akhavan^[13] apresentaram a sociedade científica um novo supercondutor de alta temperatura crítica da família YBaCuO, o qual apresentou a mais alta temperatura crítica entre os sistemas desta família de compostos ($T_C = 102$ K),

caracterizado como $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$.

O supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ possui uma estrutura similar ao já tradicional sistema supercondutor $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$. Enquanto no sistema Y123 têm-se uma estrutura formada por dois planos de $Cu-O_2$ e uma cadeia de $Cu-O$, no sistema Y358 existem cinco planos de $Cu-O_2$ e três cadeias de $Cu-O$, conforme apresentado na figura 1.3 [14]. A grande vantagem apresentada por este sistema em relação aos demais, e principalmente em relação ao $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, o qual têm sido amplamente estudado desde a sua descoberta, é a sua elevada temperatura crítica. Essas significativas diferenças abrem possibilidade para toda uma nova fenomenologia a ser investigada experimentalmente.

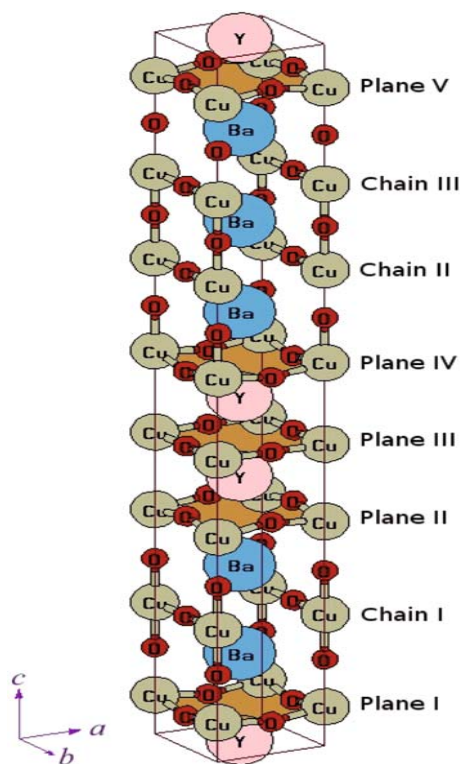


Figura 1.3 - Estrutura cristalina do sistema $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ [14].

1.3 SÍNTESE DO SUPERCONDUTOR $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

As propriedades físicas dos supercondutores são fortemente afetadas pela técnica de crescimento utilizada na síntese do material, além das condições nas quais se dá o preparo do mesmo.

É possível sintetizar o supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ tanto na forma de amostras policristalinas

(sinterizadas ou texturizadas) ^[12,15] quanto na forma de nanofios ^[16].

A seguir faremos uma breve descrição de alguns dos métodos utilizados para a síntese do supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$.

1.3.1 Sinterização

Por ser um processo bastante simples, a sinterização se destacou inicialmente na fabricação de amostras volumétricas e massivas dos cupratos supercondutores. Além desta vantagem, o que torna a sinterização um processo atrativo é o preparo de amostras com formato preciso, o que é interessante e desejável para aplicações práticas.

As amostras sinterizadas de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ podem ser obtidas através de reação de estado sólido, onde pós precursores de alta pureza de óxido de ítrio (Y_2O_3), carbonato de bário ($BaCO_3$) e monóxido de cobre (CuO) são misturados e moídos obedecendo à estequiometria do composto a ser formado.

Os pós, após serem misturados, são calcinados a uma temperatura que varia de 840°C a 950 °C por um período entre 12h e 24h em atmosfera de ar ^[12,13,17], sendo que este processo é repetido com moagem intermediária para garantir uma melhor homogeneização da mistura.

A seguir o pó é prensado em forma de pastilha e finalmente a amostra obtida é sinterizada em uma temperatura de aproximadamente 950 °C (no ar ou em atmosfera de oxigênio) durante 24h com recozimento em 500°C. Estas etapas são ilustradas na figura 1.4.

Geralmente as amostras sintetizadas por esse método apresentam alta porosidade, desordem granular e conseqüentemente uma fraca ligação entre os grãos supercondutores.

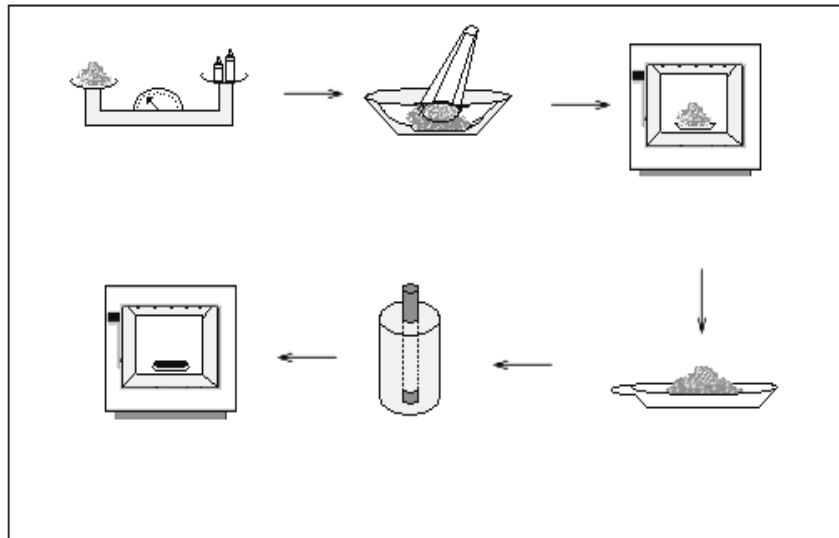


Figura 1.4 – Descrição das etapas seguidas na síntese de amostras sinterizadas.
(Adaptada da ref. 18)

1.3.2 Texturização

Existem vários métodos de texturização, dentre eles o mais utilizado, tanto para fins tecnológicos quanto científicos, é a texturização por fusão. Os métodos de texturização por fusão podem ainda ser divididos em processos direcionais e não direcionais ^[19].

Os processos de texturização por fusão direcionais são aqueles em que, com a presença de um gradiente de temperatura, é realizado um resfriamento lento da amostra através da temperatura de solidificação com o transporte da mesma no interior do forno. O método da semente (TSMT – *top seeding melt-texturing*), também faz parte dos processos direcionais. Este método se utiliza de uma pequena semente monocristalina, ou uma amostra texturizada com boa orientação cristalográfica, que colocada acima da amostra precursora serve para direcionar o crescimento dos cristalitos. A orientação da semente é escolhida de forma que seu eixo-c esteja perpendicular à superfície da amostra precursora.

Os processos não-direcionais são aqueles nos quais, sem a presença de um gradiente de temperatura no interior do forno, a amostra é resfriada lentamente através da temperatura de solidificação, ou ainda, quando na presença de um gradiente de temperatura é realizado um resfriamento lento da amostra sem nenhum mecanismo de transporte da amostra no interior do

forno, ou deste em relação à amostra.

Com a utilização dos processos não-direcionais o alinhamento entre os cristalitos não é estabelecido por toda a extensão da amostra, de modo que há formação de domínios texturizados separados uns dos outros por fronteiras de alto ângulo, como ilustra a figura 1.5(a). Por outro lado, nos processos direcionais, uma estrutura alinhada se forma em quase todo o comprimento da amostra, geralmente chamada de monodomínio, como ilustra a figura 1.5(b).

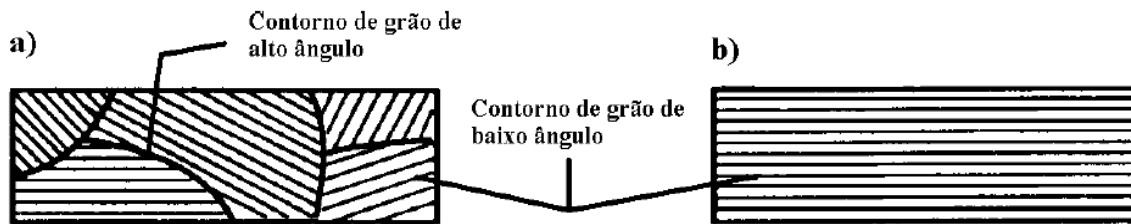


Figura 1.5 – Amostra texturizada crescida via (a) processos não-direcionais e (b) direcionais ^[19].

O método mais utilizado para a síntese de amostras texturizadas com alto grau de alinhamento de grãos é o método Bridgman. Este método consiste na excursão da amostra no interior de um forno, geralmente tubular, posicionado na vertical ou na horizontal, através de um gradiente térmico longitudinal na zona de aquecimento, o que acarreta na direcionalidade do crescimento. A taxa de excursão da amostra é, em geral, bastante lenta, tipicamente entre 1 e 3 mm/h, o que confere uma lenta solidificação, tornando este processo bastante demorado. A figura 1.6 ilustra o princípio da texturização através do método Bridgman.

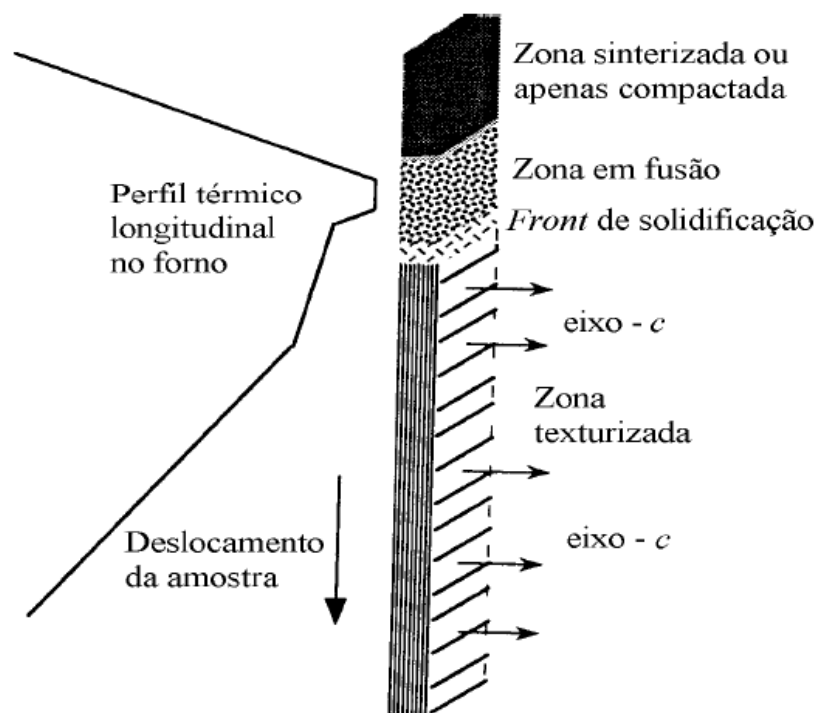


Figura 1.6 – Princípio de texturização via método de Bridgman ^[19].

1.3.3 Técnica sol-gel

Em uma visão simplificada, uma síntese do tipo sol-gel é um processo em várias etapas, em que uma solução precursora, conhecida como sol, evolui por meio de reações de hidrólise e condensação levando a formação de um sistema conhecido como gel.

No termo sol-gel, o sol se refere à solução aquosa formada por precursores moleculares de interesse, sendo que o gel se caracteriza por ser composto de uma estrutura rígida tridimensional que imobiliza fase líquida em seu interior.

Segundo Gholipour e col. ^[20], para a síntese do sistema Y358 os compostos: $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ (99,5%), $\text{Ba}(\text{NO}_3)_2$ (99%) e $\text{Y}(\text{NO}_3)_3 \cdot 5\text{H}_2\text{O}$ (99%) são pesados segundo a proporção estequiométrica de Y3 : Ba5 : Cu8, e então dissolvidos em água desionizada, formando assim o sol.

Neste processo, a solução é condensada lenta e controladamente em temperaturas elevadas até o estágio final, onde o pH da solução deve ser ácido. Então, com a redução da água e o aumento do pH começam a ser retiradas as barreiras que impediam a formação de estados ligados entre as partículas, dando início ao processo de obtenção do gel.

O gel preparado é aquecido a 520 °C por um período de 2h ao ar, para que os grupos O-H sejam eliminados. O resultado deste aquecimento é um pó que deve ser calcinado para que os nitratos restantes sejam removidos. Após esta etapa, o pó é prensado em forma de pastilha passando por um processo de sinterização semelhante ao descrito na seção 1.3.1.

Através desta técnica é possível uma maior interação entre os reagentes e como consequência obtém-se partículas finas ($< 1 \mu\text{m}$), sendo esta uma vantagem deste método. Na figura 1.7 é possível observar que através da técnica sol-gel foram obtidos grãos de tamanho médio em torno de 83 nm.

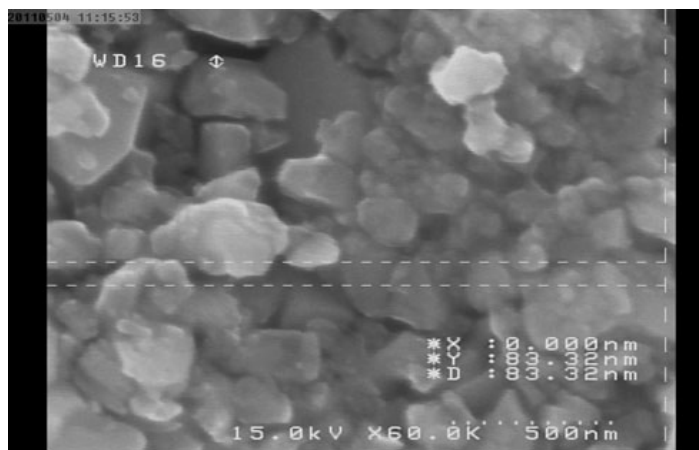


Figura 1.7 – Amostra de $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ crescida pela técnica sol-gel ^[20].

1.4 RESULTADOS EXPERIMENTAIS PARA O $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$

A caracterização das amostras supercondutoras de $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ pode ser realizada com o auxílio de diferentes técnicas. Através da técnica de difração de raios-X (DRX), é possível analisar a estrutura cristalográfica das amostras, confirmar a estrutura cristalina, e obter os parâmetros de rede da cela unitária. Já com a obtenção de imagens de microscopia pode-se fazer análises da topologia superficial do material.

Por outro lado, para a determinação das propriedades elétricas e magnéticas podem ser realizadas medidas de transporte eletrônico, magnetização, dentre outras.

1.4.1 Caracterização estrutural

Seguindo a característica dos materiais supercondutores óxidos, o sistema $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ possui uma estrutura cristalina complexa, a qual é constituída por planos de cobre-oxigênio que se repetem em toda estrutura. Conhecer a estrutura cristalina dos supercondutores de alta temperatura é de fundamental importância para a compreensão das propriedades físicas desses sistemas.

A figura 1.8 apresenta difratogramas de raios-X obtidos para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, onde estão indicados os planos atômicos correspondentes a cada pico.

De acordo com o trabalho apresentado por Aliabadi e col. ^[13], a estrutura do $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ é do tipo perovskita com simetria Pmm2, e a partir do processo de refinamento da técnica DRX foram obtidos os parâmetros de rede $a=3,888 \text{ \AA}$, $b=3,823 \text{ \AA}$, $c=31,013 \text{ \AA}$, sendo o volume da célula unitária $V = 460,971 \text{ \AA}^3$.

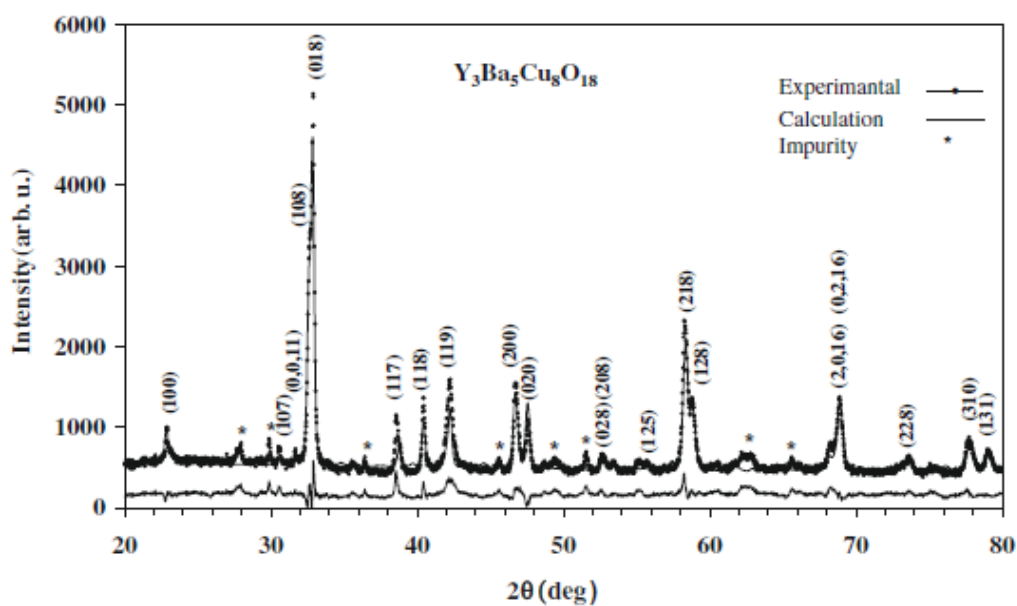


Figura 1.8 – Resultados de difração de raios-X para o composto Y358 ^[13].

1.4.2 Comportamento magnético e resistivo

Através de medidas de magnetização e resistividade é possível caracterizar a transição normal-supercondutora.

Na figura 1.9 (a) está representada a resistividade elétrica do $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ em função da temperatura. É possível observar na figura 1.9 (a) que para o sistema Y358 a temperatura em que se dá início a transição supercondutora (T_C^{onset}) é de aproximadamente 102 K enquanto que a temperatura em que a resistividade atinge a base nula ($T_C(\rho=0)$) é próxima à 98 K. Segundo Aliabadi e col. [13], esta foi a primeira vez em que tão elevadas temperaturas de transição, para um composto a base de Y, foram observadas. É importante notar que o T_C relacionado ao Y358 é aproximadamente 10 K maior que o T_C do tradicional sistema Y123.

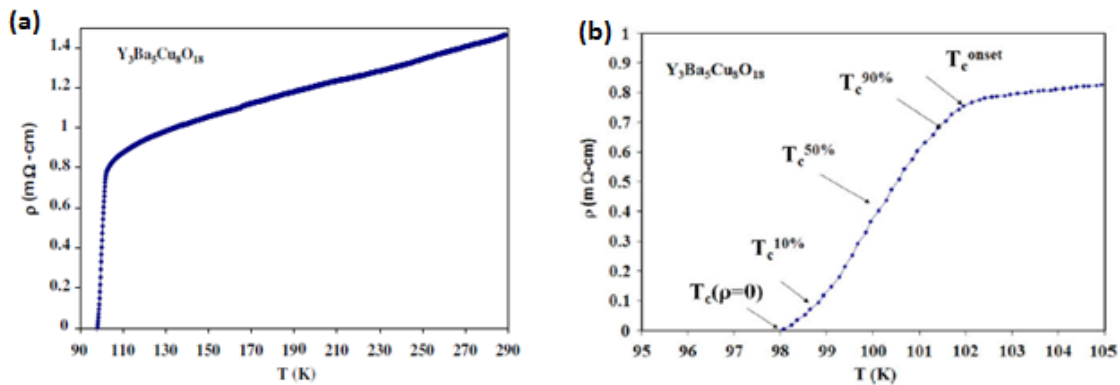


Figura 1.9 – (a) Curva de resistividade em função da temperatura para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$. A figura (b) mostra a mesma curva da figura (a) porém, em um intervalo menor de temperatura [13].

Na figura 1.10 são apresentados resultados do comportamento da resistividade elétrica em função da temperatura para diferentes valores de campo magnético aplicado em uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$. Estes resultados indicam que com o aumento do campo magnético aplicado há uma forte redução na temperatura em que a resistência nula é atingida ($R=0$).

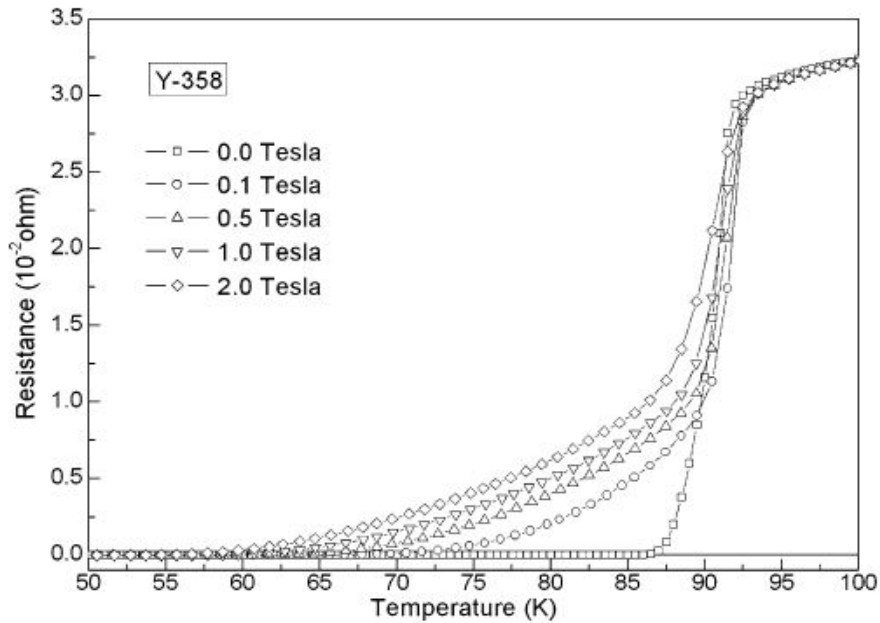


Figura 1.10 – Transição supercondutora para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ na presença de diferentes valores de campo magnético ^[21].

A figura 1.11 apresenta as curvas obtidas pela técnica de susceptibilidade magnética AC para o sistema Y358, onde, segundo Ahmet Ekicibil e col. ^[17], a parte real da susceptibilidade, χ' , está relacionada à supercondutividade intragranular, assim a magnitude de χ' diminui conforme a supercondutividade nos grãos é suprimida. Por outro lado, a parte imaginária da susceptibilidade AC, χ'' , está relacionada com a penetração de fluxo magnético nos limites dos grãos, assim, χ'' fornece informações sobre o aprisionamento do fluxo magnético e da natureza das ligações fracas entre os grãos. Segundo os autores, a presença do pico na curva χ'' é devido à redução na fração de volume da fase supercondutora.

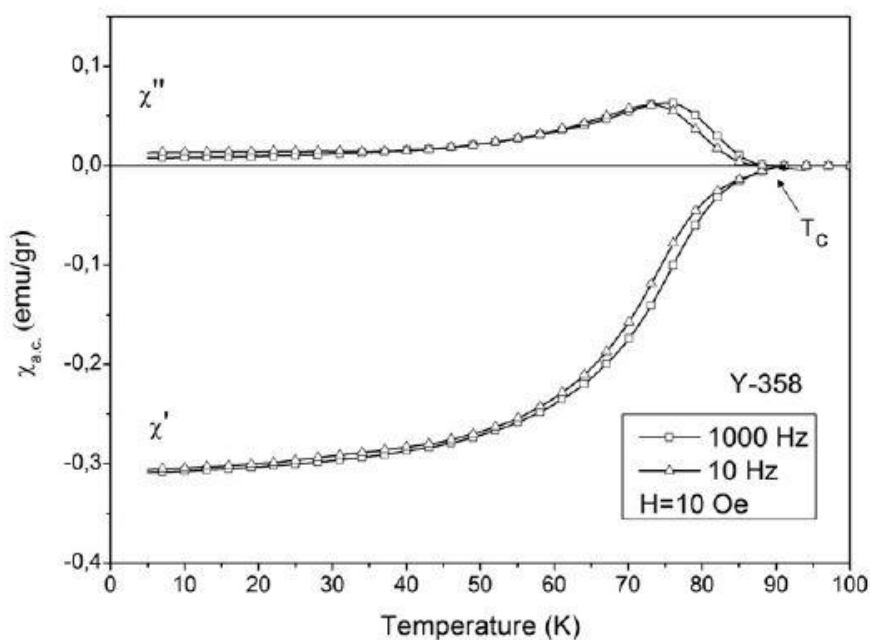


Figura 1.11 – Curva de susceptibilidade magnética AC para o $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ [22].

1.5 DIFERENÇAS ENTRE A FAMÍLIA YBaCuO

Conforme já discutido no capítulo 1, são diversos os sistemas pertencentes a família de supercondutores YBaCuO, dentre eles o sistema $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Y123), o qual se constitui no supercondutor mais investigado cientificamente de que se tem notícia, e o sistema que é foco deste trabalho, o supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ (Y358). Uma característica fundamental de todos estes diferentes compostos é a forte anisotropia planar.

As propriedades eletrônicas destes sistemas, bem como dos demais cupratos supercondutores, são determinadas pelos planos atômicos Cu-O₂ característicos de suas estruturas cristalinas. Por exemplo, os sistemas Y123 possuem dois planos de Cu-O₂ e uma cadeia de Cu-O, exibindo um T_C de 92 K [23], enquanto que o sistema $YBa_2Cu_4O_8$ (Y124) possui dois planos de Cu-O₂ e uma cadeia dupla de Cu-O, com um T_C ≈ 80 K [24]. Já o $Y_2Ba_4Cu_7O_{14+\delta}$ (Y247) possui um plano de Cu-O₂ e uma dupla cadeia de Cu-O, tornando-se supercondutor a 40 K [25]. Por outro lado, o sistema $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ (Y358), possui cinco planos Cu-O₂ e três cadeias de Cu-O, apresentando um T_C que pode variar de 92,7K [22] a 105 K [20].

Medidas de resistividade elétrica, como as que são apresentadas na figura 1.12, revelam que

tanto a temperatura em que ocorre a transição supercondutora quanto a largura desta transição, diferem para os vários sistemas. Os maiores valores para a temperatura de transição são atribuídos aos sistemas Y358, Y5-8-13 e Y3-8-11, onde $T_c = 94\text{K}$. O sistema Y3-8-11 apresenta uma curva de transição bastante acentuada, pois, como pode ser visto a largura da transição é de aproximadamente 2K.

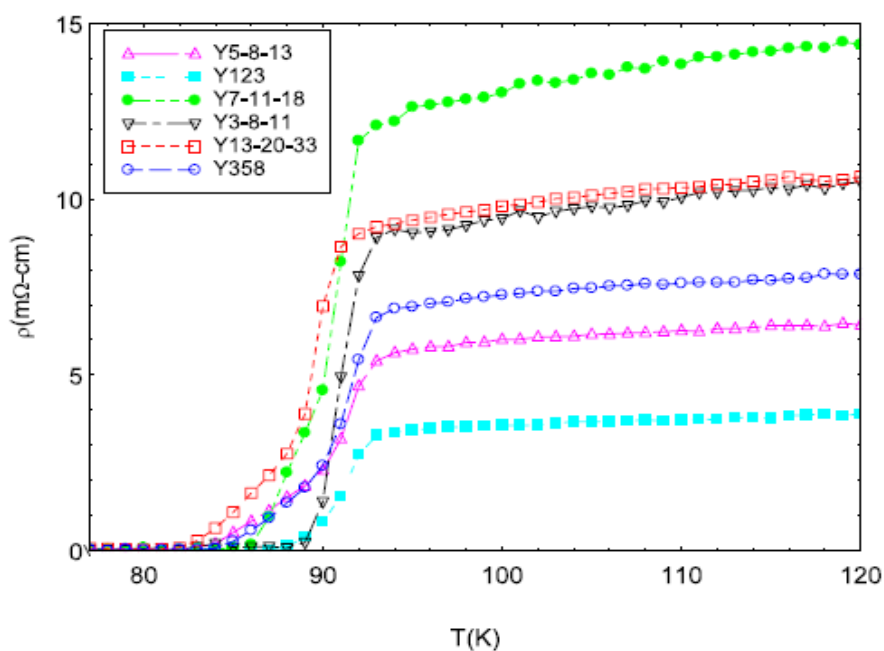


Figura 1.12 – Transição supercondutora para diferentes sistemas da família YBaCuO ^[12].

As propriedades magnéticas também são distintas entre os supercondutores da família YBaCuO. A figura 1.13 descreve resultados de susceptibilidade no estado normal para os sistemas Y123, Y124 e Y247. A curva de susceptibilidade magnética do sistema Y247 apresenta um arredondamento mais pronunciado em temperaturas acima de T_c , o que, segundo Genoud e col. ^[26], sugere que as flutuações magnéticas nos supercondutores Y247 são mais fortes do que para os sistemas Y123 e Y124.

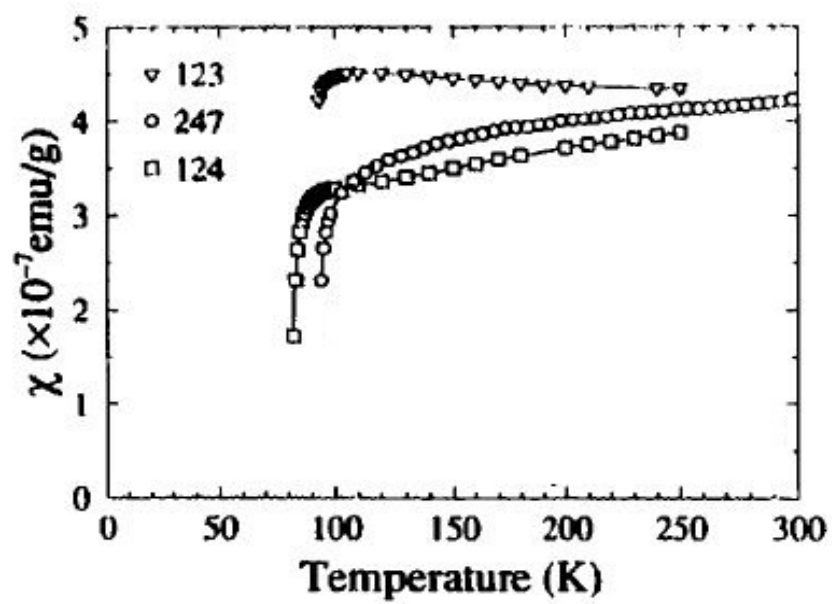


Figura 1.13 – Curvas de susceptibilidade magnética na fase normal para os sistemas Y123, Y247 e Y124 ^[26].

Capítulo 2

FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Nesse capítulo serão discutidas algumas propriedades elétricas e magnéticas dos supercondutores de alta temperatura crítica.

Inicialmente serão abordados alguns aspectos fundamentais referentes às propriedades elétricas, com foco na anisotropia do comportamento resistivo, efeitos de granularidade e desordem, bem como do campo magnético. Num segundo momento serão discutidos aspectos fundamentais das propriedades magnéticas, com ênfase nos efeitos de irreversibilidade na magnetização. Também serão apresentados alguns dos modelos teóricos existentes para descrever o comportamento da linha de irreversibilidade magnética nos supercondutores de alta temperatura crítica.

2.1 PROPRIEDADES DE TRANSPORTE

2.1.1 Anisotropia do comportamento resistivo

A forte anisotropia nas propriedades de transporte é uma característica dos cupratos supercondutores. Este comportamento deve-se principalmente à estrutura cristalina planar destes materiais, onde os planos de CuO_2 , que são bons condutores e se estendem ao longo do plano cristalográfico ab , são separados por camadas fortemente resistivas ao longo do eixo- c . Esta característica faz com que estes materiais apresentem uma boa condutividade elétrica ao longo do plano ab , contrariamente à direção c .

Podemos notar da figura 2.1 o forte caráter anisotrópico de uma amostra monocristalina de

$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$, onde, em temperatura ambiente, a resistividade elétrica ao longo do eixo-a (ρ_a) é aproximadamente 25 vezes maior que a resistividade ao longo do eixo-b (ρ_b). Já a resistividade ao longo do eixo-c (ρ_c) é 30 vezes superior à resistividade elétrica ao longo do eixo-a e 75 vezes maior que a do eixo-b.

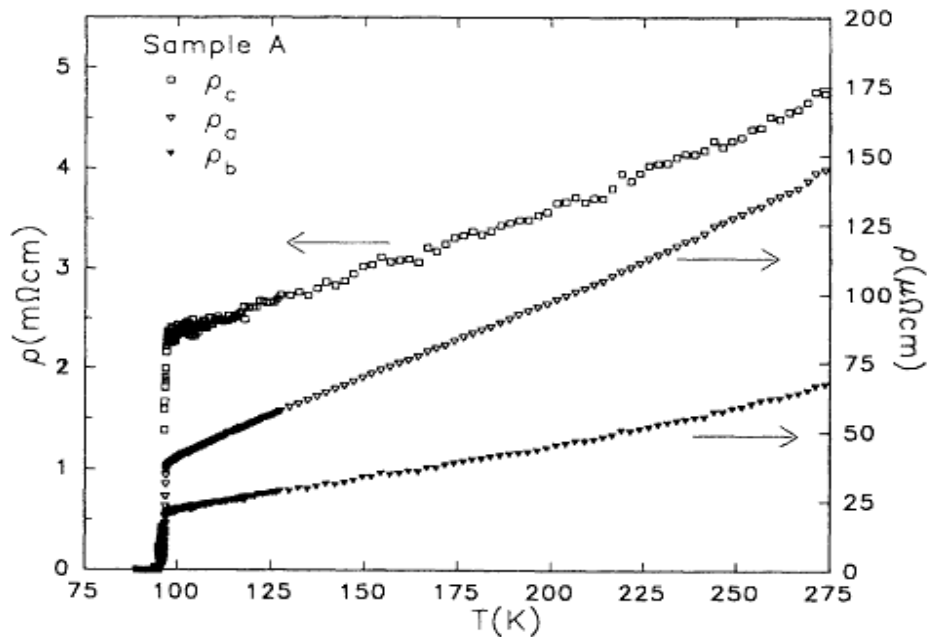


Figura 2.1 - Comportamento resistivo ao longo dos eixos a,b e c para uma amostra monocristalina de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ [27].

2.1.2 Granularidade e desordem

Granularidade e desordem são algumas das questões que devem ser consideradas no estudo dos supercondutores de alta temperatura crítica. O comportamento granular apresentado por supercondutores inhomogêneos desempenha um importante papel que acaba sendo refletido nas propriedades magnéticas e de transporte elétrico.

O caráter granular é mais pronunciado em amostras policristalinas sinterizadas do que em amostras texturizadas, pois estas apresentam uma redução na ocorrência de ligações fracas. Em geral, as amostras monocristalinas tendem a ser mais homogêneas.

Nos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica, o comprimento de coerência ξ é bastante pequeno, da mesma ordem de grandeza da cela unitária, enquanto que o comprimento de penetração de London é da ordem de 1000 Å. O comprimento de coerência permite a modulação espacial do parâmetro de ordem supercondutor ^[28], o qual está associado com a densidade local de pares de Cooper, assumindo o maior valor em regiões da amostra com estequiometria ideal, e sendo suprimido em regiões não-supercondutoras (defeitos, fases espúrias, etc.).

Os supercondutores de alta temperatura crítica apresentam defeitos estruturais em várias escalas de acordo com a sua extensão: macroscópicos (fronteiras de grãos, porosidade em amostras cerâmicas, precipitados e fases não-supercondutora), mesoscópicos (maclas, deslocações, falhas de empilhamento e defeitos colunares) e microscópicos ou locais (vacâncias de oxigênio e impurezas).

A existência destes vários níveis de defeitos acaba conduzindo a uma topologia complexa para o parâmetro de ordem. Amostras com elevado grau de desordem mostram uma granularidade intrínseca e complexa. Defeitos estruturais cuja extensão são da mesma ordem ou maiores que o comprimento de coerência são altamente relevantes. Na escala de tamanho intragrão, os defeitos microscópicos e mesoscópicos podem influenciar nas propriedades do estado supercondutor.

A figura 2.2 (a) apresenta medidas de resistividade elétrica em função da temperatura para uma amostra policristalina de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. Estas medidas revelam o caráter inomogêneo do estado supercondutor. Na figura 2.2 (b) está representada a curva da derivada da resistividade em função da temperatura ($d\rho/dT$), a qual apresenta uma estrutura de dois picos, sugerindo que a transição resistiva normal-supercondutora ocorra em duas etapas, o que é característico de sistemas granulares.

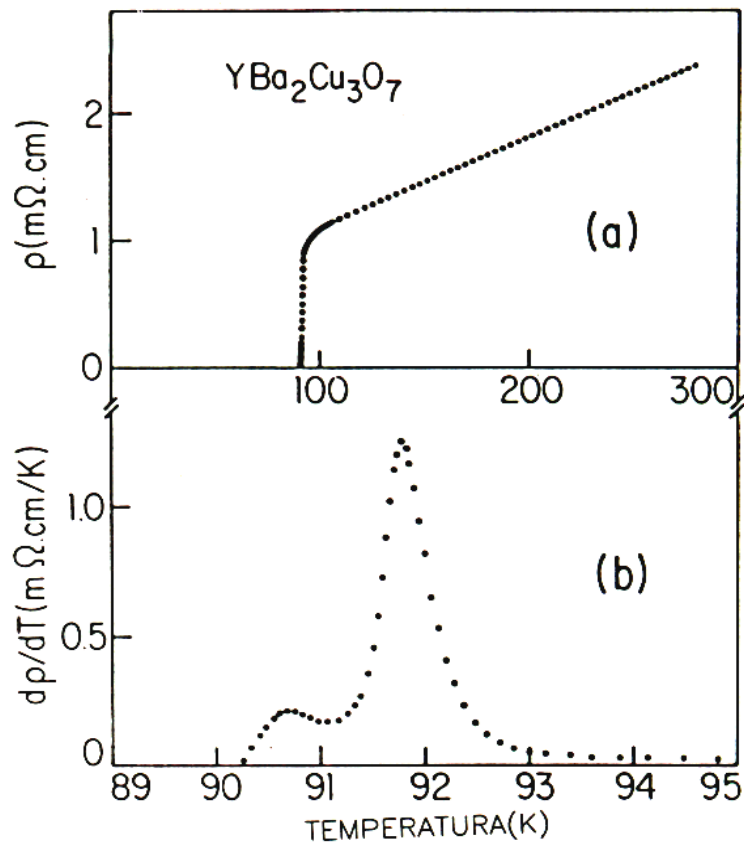


Figura 2.2 - (a) Curva de resistividade elétrica e (b) sua derivada $d\rho/dT$ para uma amostra policristalina de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ (Adaptado da ref. [29]).

A derivada da resistividade em função da temperatura (figura 2.2 (b)) permite a observação de uma estrutura constituída por dois picos. Baseando-se num modelo no qual a transição ocorre em duas etapas, o pico que ocorre em temperatura mais elevada assinala a transição supercondutora intragrão (T_C), enquanto que o pico de menor intensidade ocorre a uma temperatura mais baixa, na qual é estabelecido o estado supercondutor com coerência de longo alcance, obtido através da ativação térmica das junções fracas entre os grãos supercondutores. É importante salientar que devido aos acoplamentos intergrãos serem constituídos por ligações fracas, estes são muito sensíveis à aplicação de campos magnéticos.

Este comportamento de dupla transição também é observado em amostras monocristalinas^[30] e texturizadas^[31], evidenciando assim que o carácter inhomogêneo é uma propriedade intrínseca dos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica.

2.1.3 Flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica

Os supercondutores de alta temperatura crítica diferem dos supercondutores convencionais principalmente por apresentarem uma elevada temperatura crítica de transição, uma forte anisotropia planar e um pequeno comprimento de coerência. Estas características tornam possível a observação de efeitos de flutuações em um amplo intervalo de temperaturas em torno de T_C .

2.1.3.1 Teoria de Ginzburg-Landau

Em 1950, inspirados nas ideias de Landau para as transições de fase de 2ª ordem, Vitaly Ginzburg e Lev Landau ^[32,33] propuseram uma teoria fenomenológica para a supercondutividade denominada de teoria de Ginzburg-Landau, ou simplesmente teoria GL .

A teoria GL é fundamentada no conceito do parâmetro de ordem supercondutor, que formalmente se assemelha a uma função de onda complexa Ψ , cujo módulo quadrado está relacionado com a densidade de superpartículas (n_s), ou seja,

$$|\Psi(\vec{r})|^2 = n_s(\vec{r}) \quad , \quad (2.1)$$

O parâmetro de ordem complexo Ψ decresce continuamente com o aumento da temperatura e se aproxima de zero quando a temperatura se aproxima de T_C , sendo dependente da posição e também do campo eletromagnético aplicado.

Segundo a teoria GL, nas regiões de temperaturas próximas de T_C , a densidade de energia livre no estado supercondutor (f_s) pode ser expandida em uma série de potências de $|\Psi|^2$. No caso de um supercondutor homogêneo, sem a presença de campo eletromagnético aplicado, esta energia livre por unidade de volume pode ser expressa por:

$$f_s(|\Psi|) = f_N + \alpha |\Psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\Psi|^4 + \gamma |\nabla \Psi|^2 \quad , \quad (2.2)$$

onde f_N e f_s são os termos referentes aos estados normal e supercondutor e os coeficientes α , β e γ são parâmetros fenomenológicos, sendo $\alpha = \alpha_0(T - T_C)$ e β uma constante positiva.

Os efeitos causados pela aplicação de um campo magnético externo implicam em reescrever a equação (2.2), a qual assume a seguinte forma:

$$f_s(|\Psi|) = f_N(T) + \alpha|\Psi|^2 + \frac{1}{2}\beta|\Psi|^4 + \frac{1}{2m^*} |(-i\hbar\nabla - e^*\vec{A})\Psi|^2 + \frac{B^2}{8\pi} \quad , \quad (2.3)$$

sendo m^* e e^* a massa e a carga de um par de Cooper.

A minimização da energia livre expressa na equação (2.3), com relação às variações do parâmetro de ordem Ψ e ao potencial vetor \vec{A} , conduz às equações fundamentais da teoria GL.

A primeira equação é dada por:

$$\frac{1}{2m^*} (-i\hbar\nabla - e\vec{A})\Psi(\vec{r}) + (\alpha + \beta|\Psi|^2)\Psi(\vec{r}) = 0 \quad , \quad (2.4)$$

A equação (2.4) descreve a variação espacial de $\Psi(\vec{r})$ no interior de uma amostra quando submetida a um campo eletromagnético, e está relacionada com o comprimento de coerência, $\xi(T)$, o qual é definido por:

$$\xi(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2m^*|\alpha|} \right)^{1/2} = \xi(0) |\varepsilon|^{-1/2} \quad , \quad (2.5)$$

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 espacial do parâmetro de ordem, divergindo quando $T \rightarrow T_C$.

A segunda equação da teoria GL é dada por:

$$\vec{j}_s = \frac{ie^*\hbar}{2m^*} (\Psi^*\nabla\Psi - \Psi\nabla\Psi^*) - \frac{(e^*)^2}{m^*} |\Psi|^2 \vec{A} \quad , \quad (2.6)$$

a qual está relacionada com o comprimento de penetração de London e informa sobre a resposta diamagnética do supercondutor. O comprimento de penetração de London pode ser definido como:

$$\lambda(T) = \left(\frac{\mu_0 e^* |\psi|^2}{m^*} \right)^{-1/2} \quad , \quad (2.7)$$

onde μ_0 é a constante de permissividade do meio. O comprimento de penetração de London, $\lambda(T)$, corresponde ao comprimento de penetração do campo magnético no interior de um supercondutor.

Segundo a teoria GL, para $T > T_C$, onde a densidade de superpartículas torna-se muito pequena, as flutuações termodinâmicas são não correlacionadas e Gaussianas. No limite em que a temperatura é muito próxima de T_C , as flutuações passam a se comportar coletivamente. Nesta situação, a teoria de GL torna-se inválida e é neste intervalo de temperatura que se estabelece a região denominada crítica.

O critério adotado para definir o limite de aplicabilidade da teoria GL é o chamado critério de Ginzburg, o qual para supercondutores homogêneos e tridimensionais é dado por:

$$\varepsilon_G = \left(\frac{K_B}{8\pi^2 \delta_C \xi^3(0)} \right)^2 = \left| \frac{T_G - T_C}{T_C} \right|, \quad (2.8)$$

onde $\varepsilon_G = \left| \frac{T_G - T_C}{T_C} \right|$ define a temperatura limite ε_G , também denominada de número de Ginzburg, abaixo da qual cessa a validade da teoria GL e δ_C é a descontinuidade no calor específico em T_C . A região genuinamente crítica é então definida por:

$$\varepsilon \leq \varepsilon_G .$$

2.1.3.2 Flutuações na condutividade elétrica em $T > T_C$

Acima da temperatura crítica as flutuações induzem um aumento da condutividade na fase normal, em temperaturas próximas a T_C . Este excesso de condutividade, também denominado de paracondutividade, se origina de canais adicionais para a corrente, produzidos pela criação de pares de Cooper evanescentes. Muitas são as contribuições teóricas para descrever a manifestação das flutuações na condutividade, ou paracondutividade. Consideraremos a seguir as contribuições de Aslamazov-Larkin (AL), Maki-Thompson (MT) e o modelo de Lawrence-Doniach (LD). Discutiremos também o comportamento crítico nas regiões imediatas à T_C e o papel introduzido pela granularidade e desordem.

➤ A contribuição de Aslamazov e Larkin

Em 1968 Aslamazov e Larkin ^[34] realizaram um importante estudo sobre o efeito das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica nas regiões próximas à T_C .

O modelo AL, que considera a presença de pares de Cooper em temperaturas acima da temperatura crítica T_C , assume que o excesso de condutividade, $\Delta\sigma$, é dependente da dimensionalidade das flutuações supercondutoras do sistema em questão. Os resultados desta contribuição para três dimensões (3D), duas dimensões (2D) e uma dimensão (1D) são apresentados a seguir:

$$3D \quad \Rightarrow \quad \Delta\sigma_{AL} = \frac{e^2}{32\hbar\xi(0)}\varepsilon^{-1/2} \quad , \quad (2.9)$$

$$2D \quad \Rightarrow \quad \Delta\sigma_{AL} = \frac{e^2}{16\hbar d}\varepsilon^{-1} \quad , \quad (2.10)$$

$$1D \quad \Rightarrow \quad \Delta\sigma_{AL} = \frac{\pi e^2 \xi(0)}{16\hbar S}\varepsilon^{-3/2} \quad , \quad (2.11)$$

onde $\Delta\sigma = \sigma - \sigma_R$ é a paracondutividade, sendo σ a condutividade medida e σ_R é a condutividade regular, $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ é a temperatura reduzida, $\xi(0)$ é o comprimento de coerência quando $T = 0$, d é a espessura da amostra e S é a seção transversal do filamento.

➤ A contribuição de Maki-Thompson

A contribuição MT ^[35] origina-se nas flutuações que ocorrem devido ao espalhamento elástico e coerente dos elétrons que formam os pares de Cooper. Esta contribuição se mostra bastante sensível a processos que possam alterar a função de onda eletrônica. Deste modo, o tempo de vida das quasi-partículas correlacionadas é extremamente curto, sendo limitado por processos de espalhamento inelástico, como o espalhamento elétron-fônon, que destrói a coerência de fase do par de elétrons, ou o espalhamento por impurezas magnéticas, que causa o desaparecimento dos spins do par de elétrons. Nos supercondutores de alta temperatura crítica a contribuição MT é muito pequena em comparação com a contribuição AL.

➤ O modelo de Lawrence e Doniach

Lawrence e Doniach ^[36] desenvolveram um modelo considerando supercondutores com forte anisotropia planar, nos quais o parâmetro de ordem seja fracamente acoplado em camadas adjacentes mediante tunelamento Josephson. O excesso de condutividade no modelo LD é dado por:

$$\Delta\sigma_{LD} = \frac{e^2}{16\hbar d_s \varepsilon} \left[1 + \left(\frac{2\xi_C(T)}{d_s} \right)^2 \right]^{-1/2}, \quad (2.12)$$

onde d_s é a distância entre as camadas supercondutoras, ε é a temperatura reduzida e ξ_C o comprimento de coerência na direção perpendicular as camadas.

A equação (2.12) descreve um *crossover* de um comportamento bidimensional, quando $T \gg T_C$, para um regime tridimensional à medida que a temperatura se aproxima de T_C .

Para o caso em que a distância entre as camadas é maior que o comprimento de coerência os planos supercondutores estarão desacoplados, ou seja, a razão $(2\xi_C(T)/d_s)$ assumirá valores pequenos, e com isso a equação (2.12) será idêntica à equação (2.10) para filmes de espessura d_s dentro da teoria AL. Porém, à medida em que a temperatura se aproxima de T_C , $\xi(T)$ cresce e a razão $(2\xi_C(T)/d_s)$ torna-se suficientemente grande para que os planos supercondutores se acoplem, conseqüentemente o sistema apresentará um comportamento tridimensional, com a equação (2.12) recaindo na equação (2.9).

➤ Efeito de desordem nas flutuações Gaussianas

As contribuições à condutividade devidas as flutuações, desenvolvidas por AL e MT abrangem apenas sistemas homogêneos. Char e Kapitulnik (CK) ^[37] estenderam estes resultados para sistemas inhomogêneos, aplicando o modelo de percolação de uma rede de grãos à teoria AL. Regimes de flutuações acima de T_C são afetados pela desordem estática, causando uma alteração na dimensionalidade do espaço em que os regimes são definidos.

As flutuações na condutividade elétrica em sistemas homogêneos, de acordo com o modelo AL, divergem segundo a lei de potência:

$$\Delta\sigma_{AL} \sim \varepsilon^{2-d/2}, \quad (2.13)$$

onde d é a dimensionalidade do espaço relevante. porém, em sistemas inhomogêneos as flutuações assumem a forma:

$$\Delta\sigma_{CK} \sim \varepsilon^{2-\bar{d}/2}, \quad (2.14)$$

onde \bar{d} é a dimensão espectral para o espaço relevante às flutuações, sendo este resultado válido para sistemas fractais. Para o caso de sistemas inhomogêneos $\bar{d} \approx 4/3$ para todas as dimensões.

Em sistemas que se apresentam fortemente desordenados, nas imediações de T_C o comprimento de coerência diverge e fica maior que o comprimento de correlação típico da estrutura de desordem. Neste limite o sistema torna-se homogêneo, fazendo com que o espaço relevante às flutuações adquira um dimensionalidade inteira. Para temperaturas distantes de T_C espera-se que os regimes Gaussianos sejam afetados pela desordem, e nas temperaturas próximas de T_C um *crossover* para o comportamento homogêneo poderá ocorrer ^[19].

➤ Flutuações críticas

À medida que a temperatura se aproxima de T_C as flutuações tornam-se fortemente correlacionadas e a teoria de GL deixa de ser válida. O alcance destas correlações aumenta com a aproximação de T_C , tornando-se infinito em $T = T_C$. A região onde ocorrem tais flutuações é denominada de genuinamente crítica, e a termodinâmica da transição supercondutora se torna bem diferente daquela prevista pela teoria de campo médio, a qual se aplica muito bem para temperaturas fora da região crítica ($\varepsilon < \varepsilon_G$).

Na região crítica a paracondutividade diverge em T_C na forma:

$$\Delta\sigma \approx A\varepsilon^{-\nu(2+z-d-\eta)}, \quad (2.15)$$

onde A é uma amplitude crítica, ν é o expoente crítico para o comprimento de coerência, z é o expoente crítico dinâmico, d é a dimensionalidade do sistema e η leva em consideração o desvio da função de correlação para o parâmetro de ordem em relação ao comportamento do tipo campo médio (em geral se supõe $\eta \sim 0$).

As propriedades supercondutoras dentro da região crítica e na ausência de campo magnético aplicado são aquelas previstas pelo modelo 3D-XY ^[38], para o qual $\nu \approx 0,667$. De acordo com o trabalho de Lobb ^[39] dois regimes podem ser definidos para a condutividade dentro da região crítica: o regime crítico estático e o regime crítico dinâmico. Independentemente de qual regime seja, o expoente ν mantém o mesmo valor, mas o expoente z assume diferentes valores.

No regime crítico estático teremos $\nu \approx 2/3$, porém z e η conservam seus valores de campo médio ($z = 2$ e $\eta \approx 0$), resultando em $\lambda \cong 0,67$. Aproximando-se ainda mais de T_C ocorre um

crossover para o regime crítico dinâmico, no qual $z = 3/2$, e neste caso o expoente crítico previsto para a condutividade em sistemas 3D resulta em $\lambda \cong 0,33$.

2.1.3.3 *Flutuações na condutividade elétrica em $T < T_C$*

Os modelos que interpretam o excesso de condutividade, apresentados até o momento, se aplicam à região paracondutora, a qual corresponde ao estado normal da amostra. Entretanto, como os supercondutores óxidos de alto T_C , na sua grande maioria, são sistemas inhomogêneos e do tipo granular, o fenômeno de acoplamento entre os grãos supercondutores em $T < T_C$ é parte relevante da transição resistiva.

Conforme foi visto na seção 2.1.2, a transição normal-supercondutor em sistemas granulares ocorre em duas etapas, definindo duas importantes temperaturas, T_C e T_{C0} , conforme ilustra a figura 2.3 ^[39].

Na região acima de T_C , denominada de paracondutora, a amostra ainda se encontra no estado normal e as flutuações ocorrem na amplitude do parâmetro de ordem do estado supercondutor. A região compreendida entre T_C e T_{C0} recebe a denominação de região paracoerente, conforme ilustrado na figura 2.3. Neste intervalo a amplitude do parâmetro de ordem supercondutor no interior de cada grão é constante, porém as fases do parâmetro de ordem em cada grão encontram-se não-correlacionadas. Estas flutuações resultam em uma resistividade não nula, porém, decrescente com a diminuição da temperatura.

Na medida que T se aproxima de T_{C0} , o acoplamento entre grãos cresce, ocasionando uma redução nas flutuações de fase entre os parâmetros de ordem dos grãos vizinhos. Quando se atinge a temperatura $T = T_{C0}$, pode-se dizer que o estado supercondutor percola, ou seja, formam-se cadeias infinitas de grãos acoplados exibindo ordem supercondutora de longo alcance e condutividade infinita, marcando o início de uma nova região, denominada de coerente, para $T \leq T_{C0}$, a qual está ilustrada na figura 2.3. Esta transição é denominada de paracoerente-coerente.

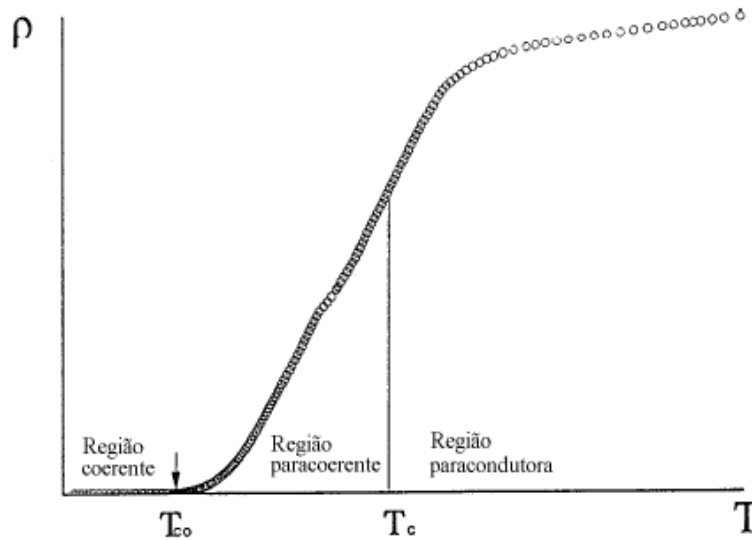


Figura 2.3 – Representação das fases paracondutora, paracoerente e coerente em uma transição resistiva ^[19].

Para descrever a transição de coerência, Peyral e col. ^[40] propuseram um Hamiltoniano de tunelamento de pares generalizado, dado pela seguinte equação:

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \cos(\theta_i - \theta_j A_{ij}) \quad , \quad (2.16)$$

onde J_{ij} é a energia de acoplamento entre grãos vizinhos i e j , e θ_i e θ_j são as fases do parâmetro de ordem dos grãos i e j .

O Hamiltoniano representado pela equação (2.16) para um sistema supercondutor granular de alta temperatura crítica é análogo àquele que descreve um sistema de spins planares. Portanto, a transição de fase paracoerente-coerente em T_{c0} deverá ser de segunda ordem, seguindo a analogia ao modelo magnético.

O excesso de condutividade na região paracoerente será devido às flutuações da fase do parâmetro de ordem dos grãos, sendo as quantidades físicas envolvidas governadas por leis de potência em $\varepsilon_0 = (T - T_{c0}) / T_{c0}$. A desordem é relevante e o expoente da paracondutividade assume valores que, em geral, situam-se entre 3 e 4 ^[41].

2.1.4 Efeito do campo magnético

Os acoplamentos intergrãos são constituídos de ligações fracas, as quais são sensíveis a temperatura, corrente elétrica e campos magnéticos aplicados. Em amostras monocristalinas, policristalinas, e na forma de filmes finos, o campo magnético reduz a temperatura na qual ocorre a transição da fase normal para a fase supercondutora. Em amostras policristalinas este comportamento está representado pela figura 2.4, onde é possível observar que, com o aumento da intensidade do campo magnético aplicado, há uma redução na temperatura crítica quando a resistência nula é atingida (T_{C0}).

De uma maneira geral, o campo magnético tende a alargar a transição. Com a aplicação de baixos campos magnéticos ocorre um enfraquecimento das ligações entre os grãos, o que acarreta na diminuição de T_{C0} , resultando num alargamento da transição. O campo magnético de baixa intensidade enfraquece as junções entre os grãos, pois tende a provocar o desacoplamento destas, sem afetar fortemente as propriedades supercondutoras intragrão. Por outro lado, com a aplicação de campos magnéticos mais intensos, a região intragrão passa a ser afetada, ocorrendo um deslocamento progressivo de T_C , e conseqüentemente a influência da dinâmica de vórtices passa a desempenhar um papel fundamental nos efeitos dissipativos, dando também origem a um alargamento em toda a transição.

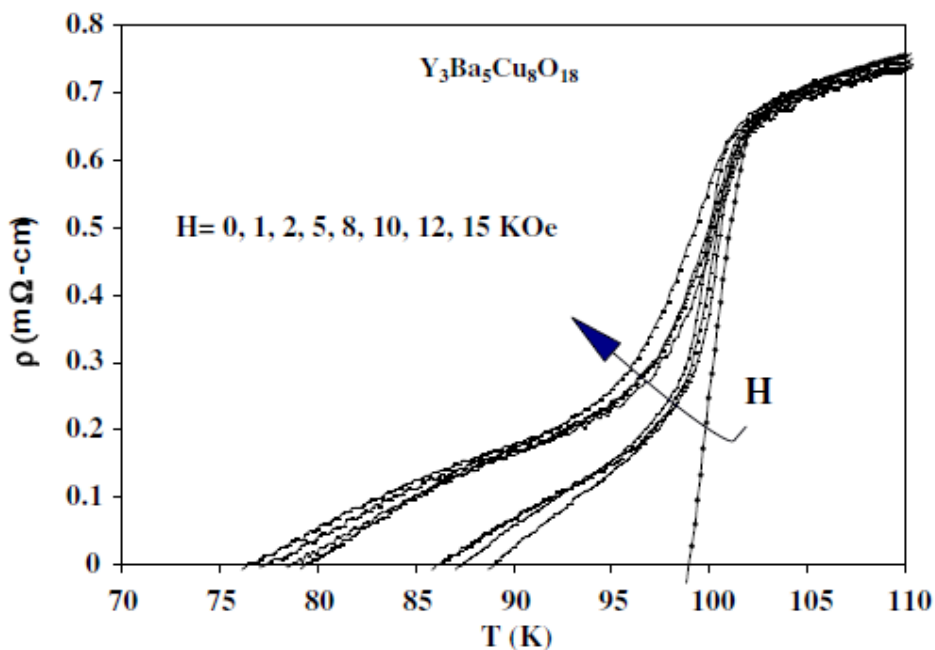


Figura 2.4 - Transição supercondutora para uma amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ na presença de campo magnético^[13].

2.2 PROPRIEDADES MAGNÉTICAS

Duas importantes características são necessárias para que um material seja denominado de supercondutor. São elas: resistividade nula a partir de uma determinada temperatura e o efeito Meissner.

Na presença de um campo magnético aplicado os supercondutores podem comportar-se de duas formas, o que leva a classificação dos mesmos em tipo I ou tipo II. Os supercondutores do tipo I apresentam apenas os estados Meissner e normal. Isto significa que abaixo de T_C , e para um campo magnético aplicado menor que o campo crítico termodinâmico H_C , o material não admite a existência de fluxo magnético, expulsando-o do seu interior. Acima de H_C o material transita do estado supercondutor para o estado normal.

Por outro lado, supercondutores do tipo II são caracterizados pelos estados Meissner, misto e normal. Os supercondutores do tipo II, como é o caso dos supercondutores da família YBaCuO, apresentam diamagnetismo perfeito apenas para campos magnéticos aplicados menores que um determinado campo crítico H_{C1} , dependente da temperatura, onde o fluxo magnético é totalmente expulso do interior do volume supercondutor devido às correntes superficiais induzidas no material. Quando campos magnéticos maiores que H_{C1} são aplicados, a energia de superfície torna-se negativa, favorecendo assim a penetração de fluxo magnético no interior do material supercondutor. Assim, acima de $H_{C1}(T)$, linhas de fluxo magnético passam a existir em determinadas regiões dentro do supercondutor, originando o chamado estado misto. Esta situação de penetração parcial do fluxo magnético no interior do material persiste até um segundo campo crítico H_{C2} , o qual geralmente é muito maior do que H_{C1} . Para campos magnéticos aplicados superiores a H_{C2} , as propriedades supercondutoras são suprimidas e o sistema passa para o estado normal. O diagrama de fases H-T de um supercondutor do tipo II é ilustrado na figura 2.5.

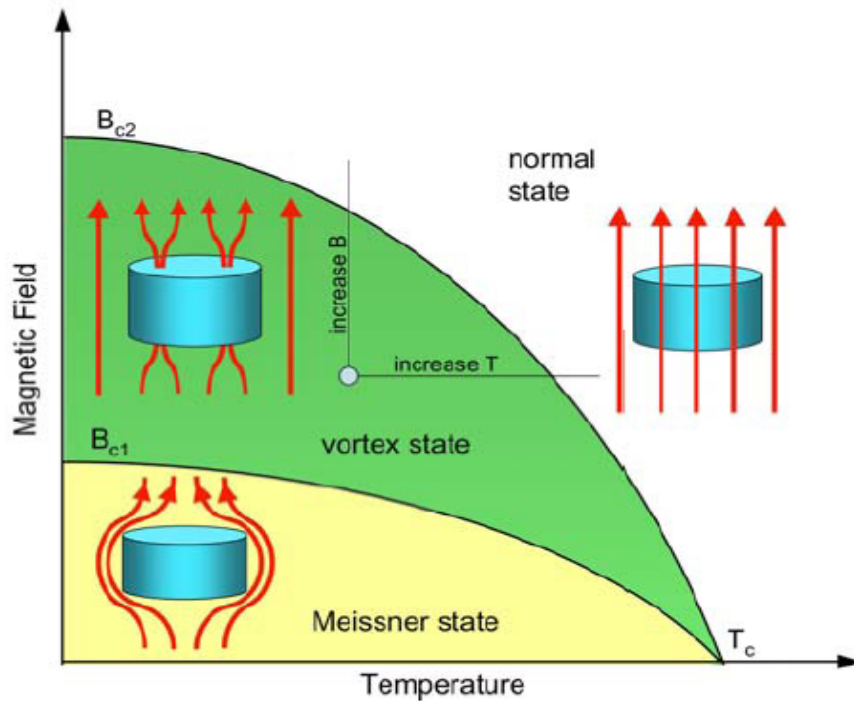


Figura 2.5 - Diagrama de fases H - T para um supercondutor do tipo II ^[42].

No estado misto a penetração de campo magnético no interior do material supercondutor ocorre na forma de linhas de fluxo magnético quantizadas, chamadas de fluxóides ou vórtices. Em cada vórtice existe um quantum de fluxo magnético Φ_0 dado por:

$$\Phi_0 = \frac{h}{2e} = 2,067 \times 10^{-15} \text{ weber} , \quad (2.17)$$

Conforme ilustra a figura 2.6, o vórtice apresenta uma forma cilíndrica e seu filamento é constituído de um núcleo normal, com raio aproximadamente igual ao comprimento de coerência de Ginzburg- Landau (ξ). Este núcleo é circundado por supercorrentes de blindagem que se distribuem numa espessura λ (comprimento de penetração).

A amplitude do parâmetro de ordem supercondutor, assim como a densidade de superpartículas, n_s , varia com a posição em relação ao núcleo do vórtice, desde um valor zero (no centro do vórtice) até o patamar n_s . O máximo da penetração de campo magnético ocorre no centro do vórtice, no qual a supercondutividade local é suprimida, conforme ilustrado na figura 2.6.

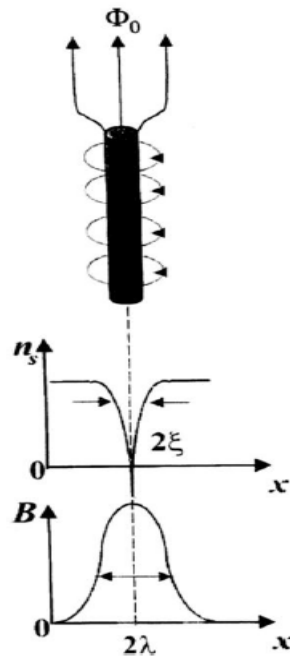


Figura 2.6 – Estrutura de um vórtice, onde ξ é o comprimento de coerência, λ é o comprimento de penetração, n_s é a densidade de superpartículas e Φ_0 corresponde a um quantum de fluxo magnético ^[43].

Os fluxóides interagem entre si repulsivamente por meio da força de Lorentz que atua entre as supercorrentes e o campo magnético contido no vórtice. Para um supercondutor estruturalmente homogêneo, a configuração de arranjo entre os vórtices que corresponde ao estado de menor energia é o de uma rede triangular ou hexagonal ^[7], denominada rede de Abrikosov ^[44], e que se encontra ilustrada na figura 2.7. Na figura, a_Δ representa o parâmetro da rede.

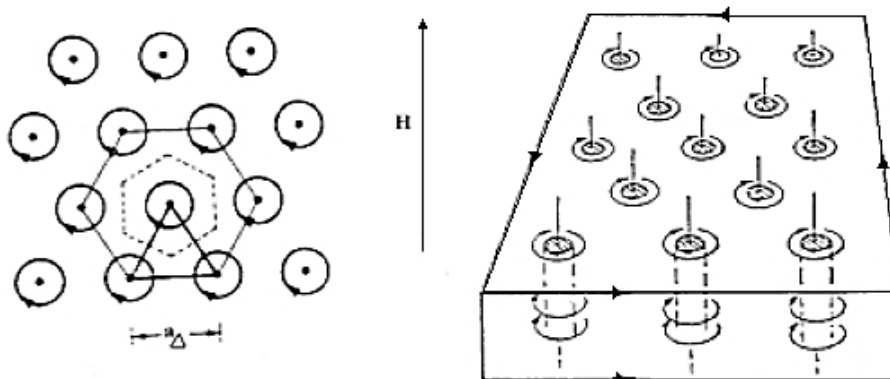


Figura 2.7 – Rede de vórtices de Abrikosov para um supercondutor homogêneo ^[44].

2.2.1 Comportamento ZFC, FC e irreversibilidades na magnetização

No interior de um supercondutor os efeitos de aprisionamento de fluxo magnético (*pinning*) podem ser evidenciados através de experiências realizadas segundo os procedimentos ZFC (*Zero Field Cooled*), FC (*Field Cooled*) e remanência.

➤ Magnetização ZFC – Efeito de Blindagem

Medidas de magnetização ZFC são realizadas partindo-se de uma temperatura acima da temperatura crítica, T_C , sendo a amostra resfriada em campo magnético nulo até baixas temperaturas. A seguir aplica-se o campo magnético externo, e como a amostra já encontra-se no estado supercondutor, o momento diamagnético observado é devido ao efeito de blindagem magnética resultante das supercorrentes geradas principalmente na superfície da mesma.

➤ Magnetização FC – Efeito Meissner

Para medidas de magnetização FC o campo magnético é aplicado quando a amostra encontra-se a uma temperatura acima de T_C . Após, a mesma é resfriada até atingir o estado supercondutor, e então observa-se o momento diamagnético resultante da expulsão do fluxo magnético do interior da amostra. Este fenômeno é conhecido como efeito Meissner. A medida do momento magnético pode ser realizada durante o decréscimo da temperatura (procedimento FCC – *Field Cooled Cooling*) ou na elevação da temperatura (procedimento FCW – *Field Cooled Warming*).

A figura 2.8 ilustra o comportamento da magnetização ZFC e FC em função da temperatura para uma amostra policristalina sinterizada de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, para um campo magnético aplicado de 50 Oe. Devido a efeitos de aprisionamento de vórtices, nos supercondutores do tipo II a magnetização FC, em geral, é menor que a ZFC.

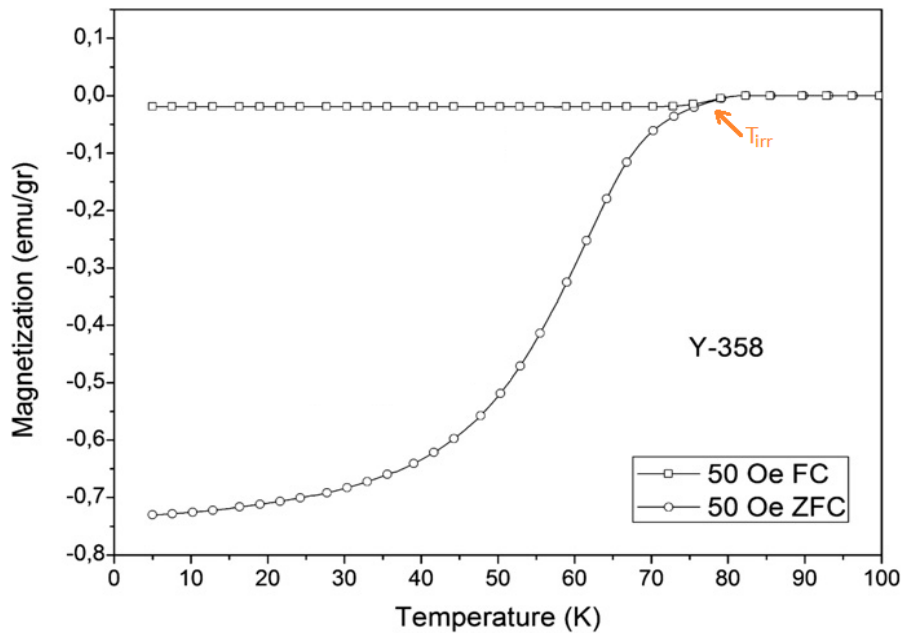


Figura 2.8 – Magnetização ZFC e FC numa amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ para um campo magnético aplicado de 50 Oe. (Adaptado da ref. [22])

Ao analisar a figura 2.8 observa-se que a partir de uma determinada temperatura as curvas de magnetização ZFC e FC divergem. Assim, é possível concluir que a partir desta temperatura a magnetização passa de um estado reversível para um estado irreversível. Esta irreversibilidade magnética é devida aos efeitos de aprisionamento de vórtices no supercondutor (*pinning*).

A temperatura a partir da qual a magnetização do supercondutor apresenta os efeitos de irreversibilidade devidos ao aprisionamento de vórtices é denominada de temperatura de irreversibilidade magnética $T_{irr}(H)$, conforme ilustrado na figura 2.8.

2.2.2 Linha de irreversibilidade magnética

A T_{irr} é fortemente influenciada pelo campo magnético aplicado, assim, é possível obter num diagrama H-T uma linha que separa a fase mista em duas regiões distintas, sendo esta linha denominada linha de irreversibilidade magnética (LIM). Na região acima da LIM (altas temperaturas), os vórtices podem se movimentar livremente pela amostra, caracterizando um comportamento magneticamente reversível. Devido ao livre movimento dos vórtices esta região caracteriza-se pela resistência à passagem de corrente elétrica, sendo chamada muitas vezes de

líquido de vórtices. Por outro lado, na região abaixo da LIM (baixas temperaturas), os vórtices encontram-se em uma fase magneticamente irreversível e têm sua mobilidade fortemente diminuída devido às forças de aprisionamento, sendo esta região conhecida como sólido de vórtices.

As regiões líquido e sólido de vórtices, bem como a linha de irreversibilidade magnética para um supercondutor de alta temperatura crítica genérico,^[43] encontram-se representadas na figura 2.9.

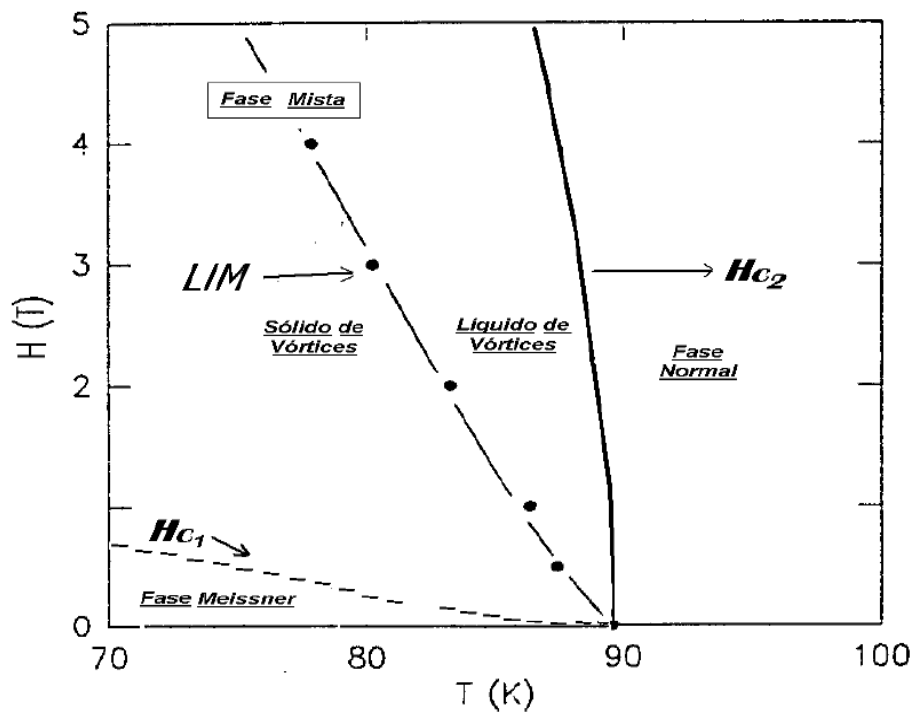


Figura 2.9 – Diagrama H-T genérico identificando a linha de irreversibilidade magnética que divide o estado misto em duas regiões distintas denominadas sólido e líquido de vórtices^[43].

2.2.3 Interpretações para a linha de irreversibilidade magnética

Diversos modelos foram propostos para descrever a LIM. Essencialmente, as teorias se dividem entre as que atribuem a LIM como um efeito de ativação térmica e as que se fundamentam em fenômenos de transição de fase. A seguir serão descritos alguns destes modelos que buscam descrever a linha de irreversibilidade magnética.

2.2.3.1 Flux Creep Gigante

Este modelo proposto por Yeshurun e Malozemoff ^[45], baseado nas ideias de Anderson e Kim para o regime *flux creep* ^[46], assume que os vórtices aprisionados pelas imperfeições da amostra podem ser ativados termicamente sobre uma barreira de aprisionamento, mesmo que a força de Lorentz atuando sobre o vórtice seja menor que a força de *pinning*. Para os supercondutores de alta temperatura crítica o modelo é chamado de *flux creep gigante*. As particularidades que diferenciam o mecanismo de *flux creep gigante* do *flux creep* convencional é o elevado valor de temperatura crítica e a baixa energia de aprisionamento dos vórtices (U_0) apresentados pelos cupratos supercondutores ^[45].

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

$$H^{2/3} \propto (1-t) , \quad (2.18)$$

onde t é a temperatura reduzida dada por $t = T_{irr} / T_C$, sendo T_{irr} a temperatura de irreversibilidade magnética.

Segundo o modelo do *flux creep gigante*, a LIM é interpretada como uma linha de *depinning* no plano H - T, localizada entre os campos críticos H_{C1} e H_{C2} . Abaixo desta linha a densidade de corrente teria um valor finito, devido ao aprisionamento de vórtices nesta região. Na região acima da linha, os vórtices teriam sua mobilidade garantida e a densidade de corrente crítica J_C seria aproximadamente nula.

2.2.3.2 Vidro Supercondutor

O estado de vidro supercondutor, baseado no modelo proposto por Ebner e Stroud ^[47] para a susceptibilidade em *clusters* supercondutores, foi empregado por Müller e col. ^[48] para explicar o comportamento apresentado pela LIM em amostras cerâmicas supercondutoras de $La_2BaCuO_{4-\delta}$.

Este modelo admite a existência de um arranjo de grãos desordenados, cada um com dimensões menores que o comprimento de penetração λ e fracamente acoplados entre si por efeitos de proximidade ou tunelamento Josephson.

Para este sistema de grãos fracamente acoplados utiliza-se o seguinte Hamiltoniano:

$$H = - \sum_{ij} J_{ij} \cos(\varphi_i - \varphi_j - A_{ij}) \quad , \quad (2.19)$$

onde J_{ij} é a energia de acoplamento entre os grãos i e j e $\varphi_i - \varphi_j$ é a diferença de fase do parâmetro de ordem de Ginzburg-Landau entre os respectivos grãos. Os termos A_{ij} , que são os deslocamentos de fase causados pelo campo magnético, são dados por:

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\varphi_0} \int_i^j \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad , \quad (2.20)$$

onde φ_0 é o elemento de fluxo magnético e \vec{A} o potencial vetor ao longo das ligações fracas entre os grãos i e j .

Este modelo prevê a existência de uma fase de baixa temperatura chamada de vidro supercondutor, onde frustração e desordem são dominantes. A frustração dos acoplamentos é devido ao termo A_{ij} , pois em um sistema de grãos multiconectados não há configuração de fase que minimize simultaneamente as energias de acoplamento entre todos os pares de grãos. A linha de irreversibilidade, determinada experimentalmente ^[49], pode ser interpretada como a separação entre as fases vidro supercondutor e um sistema de grãos desacoplados.

A lei de potência utilizada por Müller e col. ^[48] para descrever a LIM no $\text{La}_2\text{BaCuO}_{4-\delta}$ assemelha-se perfeitamente a funcionalidade utilizada para a interpretação da LIM em sistemas de vidro de spin. A partir desta analogia, Müller e col. mostraram que para supercondutores de alto T_C , no limite de baixos campos magnéticos aplicados, a linha de irreversibilidade pode ser descrita por uma lei de potências do tipo Almeida-Thouless (AT) ^[50], conforme a equação:

$$H = H_0 \left(1 - \frac{T_g(H)}{T_g(0)} \right)^{3/2} \quad , \quad (2.21)$$

onde $T_g(H)$ é a temperatura de congelamento, a qual interpretamos como a temperatura de irreversibilidade $T_{irr}(H)$ do supercondutor.

Em campos magnéticos de até alguns kOe tem-se um *crossover* do regime AT para o regime GT (Gabay-Toulouse) ^[51], no qual a lei de potência passa a ser dada por:

$$H = \beta \left(1 - \frac{T_{irr}(H)}{T_{irr}(0)} \right)^{1/2} \quad , \quad (2.22)$$

onde β é uma constante e $T_{irr}(H)$ e $T_{irr}(0)$ são as temperaturas de irreversibilidade com e sem campo magnético aplicado, respectivamente.

2.2.3.3 Vidro de Vórtices

Os cupratos supercondutores, em sua maioria, apresentam um forte caráter inomogêneo. Estas inomogeneidades atuam como centros de aprisionamento de fluxo magnético, destruindo a ordem translacional de longo alcance da rede de vórtices [52].

Para descrever o comportamento reversível-irreversível no estado misto dos supercondutores de alta temperatura crítica, Fisher [52] propôs o modelo do vidro de vórtices. Este modelo prevê a existência de uma fase vidro de vórtices (*vortex glass*) entre o estado Meissner e a linha de congelamento T_g (temperatura de irreversibilidade), como ilustra a figura 2.10. Nessa região a rede de vórtices de Abrikosov apresenta uma simetria de curto alcance.

No modelo do vidro de vórtice, a desordem e a frustração estão diretamente relacionadas à distribuição aleatória dos centros de aprisionamento. Com o aumento da temperatura a fase vidro de vórtices se torna instável [52], podendo vir a fundir ao longo da linha $T_g(H)$ e definindo um estado denominado líquido de vórtices (fase magneticamente reversível), como mostra a figura 2.10.

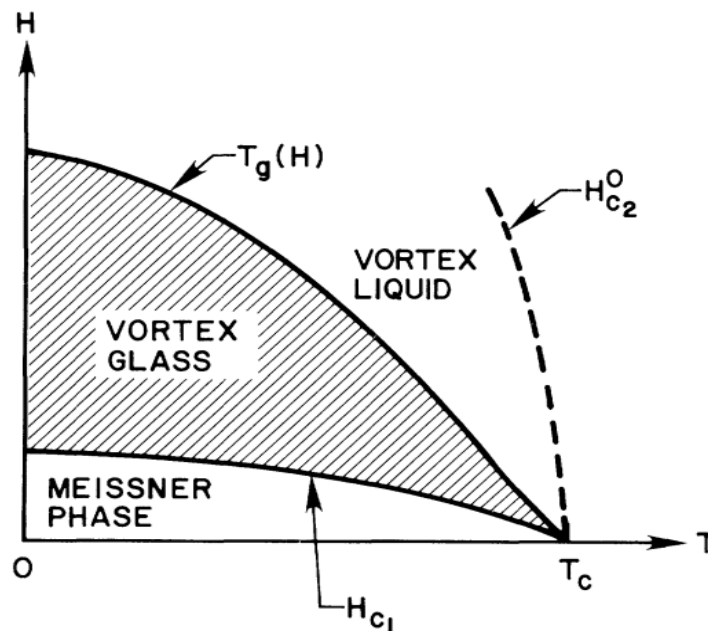


Figura 2.10 – Diagrama de fases para o modelo do vidro de vórtices, onde T_g pode ser considerada a temperatura de irreversibilidade magnética (T_{irr}) [52].

2.2.3.4 Fusão da Rede de Vórtices

Este modelo discute a LIM em termos da fusão da rede de vórtices de Abrikosov devido à existência de flutuações térmicas. A instabilidade demonstrada por qualquer rede bidimensional ^[53,54] frente a deslocamentos, devidos à efeitos de flutuações térmicas nas proximidades da temperatura de fusão da rede, T_M (temperatura de *melting*), 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 ξ , 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 supercondutores de alta temperatura crítica ^[55,56].

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 conhecido como critério de Lindemann Λ_L ^[57]. Este critério utiliza como referência o valor do deslocamento quadrático médio, $\langle u^2 \rangle^{1/2} = \Lambda_L$. De acordo com o critério de Lindemann, a rede de Abrikosov fundirá quando Λ_L equivaler a 10% do parâmetro da rede de vórtices.

Segundo Nelson e col. ^[55], nos cupratos supercondutores dois novos regimes de fluxo se tornariam acessíveis no estado líquido de vórtices. São eles: o líquido de vórtices desemaranhado (*disentangled flux liquid*) e o líquido de vórtices emaranhado (*entangled flux liquid*), os quais encontram-se representados na figura 2.11. Na figura 2.11 (a) está representada a rede de vórtices de Abrikosov, representado na figura 2.11(b) está o estado líquido de vórtices desemaranhado, que é caracterizado por ocorrer em temperaturas mais elevadas e em baixas densidades de linhas de vórtices, já o estado líquido de vórtices emaranhado, representado na figura 2.11(c), se caracteriza por apresentar grandes amplitudes de deslocamento, causando um entrelaçamento entre as linhas de vórtices.

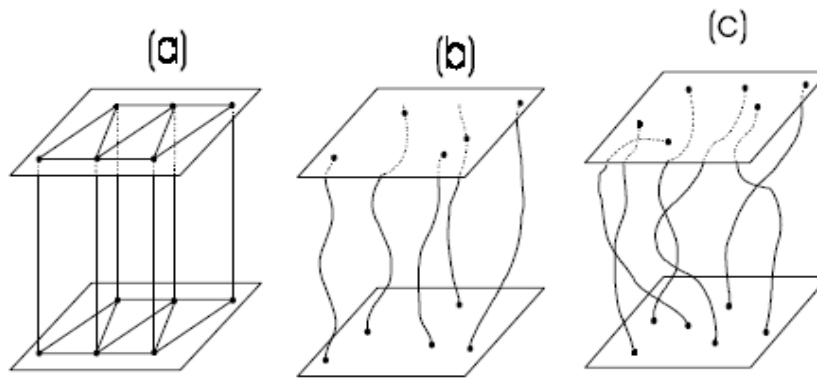


Figura 2.11 – Representação das fases do modelo de fusão da rede de vórtices ^[55]. (a) Rede de vórtices de Abrikosov, (b) líquido de vórtices não emaranhado e (c) líquido de vórtices emaranhado.

A partir do critério de Lindemann, Houghton e col. ^[58] determinaram que a temperatura de fusão, $T_M(H)$, apresentava um valor ligeiramente menor do que a temperatura crítica de transição, $T_C(H)$. Sendo assim, a curva de fusão deve apresentar um comportamento linear para uma ampla faixa de valores de campo magnético. Porém, quando tivermos $H \rightarrow 0$ e $T \rightarrow T_C(0)$, a curva que descreve a fusão da rede de vórtices deve obedecer a seguinte lei de potências:

$$H \approx (1 - t)^2 \quad , \quad (2.23)$$

onde $t = T/T_C$ é a temperatura reduzida.

Capítulo 3

TÉCNICAS EXPERIMENTAIS E CARACTERIZAÇÃO

Nesse capítulo serão descritos os processos experimentais empregados na produção das amostras policristalinas de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, bem como a caracterização estrutural das mesmas por meio das técnicas de microscopia eletrônica de varredura (MEV), espectroscopia por dispersão em energia (EDS) e difração de raios-X. Serão ainda apresentados os equipamentos utilizados nas medidas de magnetorresistência elétrica e momento magnético em função da temperatura, bem como os procedimentos experimentais adotados na realização destas medidas.

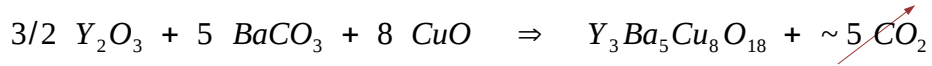
3.1 CRESCIMENTO DA AMOSTRA DE $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

Os policristais de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ utilizados neste trabalho foram produzidos no Laboratório de Materiais Supercondutores, localizado no Departamento de Física da Universidade Federal de Pelotas, segundo o método de reação de estado sólido e utilizando-se a técnica de sinterização.

As amostras sinterizadas de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ foram preparadas a partir dos precursores químicos de alta pureza (99,999%) de óxido de ítrio (Y_2O_3), carbonato de bário ($BaCO_3$) e monóxido de cobre (CuO) produzidos pela empresa *Sigma-Aldrich*®. Inicialmente estes reagentes passaram pelo processo de secagem a 200 °C, durante 1 hora, para remoção de quaisquer vestígios de umidade. Uma vez definida a estequiometria e objetivando a confecção de amostras com massa aproximada de 1g cada, foi realizada a pesagem dos pós precursores em uma balança analítica de precisão, e com o objetivo de diminuir ao máximo o tamanho dos grãos dos precursores, os mesmos foram misturados e macerados manualmente por 30 minutos em um almofariz de ágata.

O pó obtido foi colocado em um cadinho de alumina e calcinado a uma temperatura de 930°C por 12 horas. Para garantir uma maior homogeneidade da mistura o processo de calcinação foi

realizado três vezes sendo intercalado com uma nova maceração. Todo tratamento térmico inicial foi feito ao ar. Durante o processo de calcinação ocorre a reação de estado sólido, na qual forma-se a fase $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ e onde também ocorre a liberação do gás carbônico (CO_2), conforme descrito pela equação química abaixo:



Logo após, o pó foi prensado na forma de uma pastilha cilíndrica, a qual foi sinterizada na temperatura de 930 °C por 24 horas em fluxo contínuo de oxigênio. A etapa de sinterização traz alterações significativas à amostra: os grãos compactados de Y358 unem-se firmemente uns aos outros, dando origem à estrutura cerâmica do composto em sua forma policristalina. Os tratamentos térmicos de calcinação e sinterização, utilizados na preparação das amostras, estão esquematizados respectivamente nas Figuras 3.1 e 3.2.

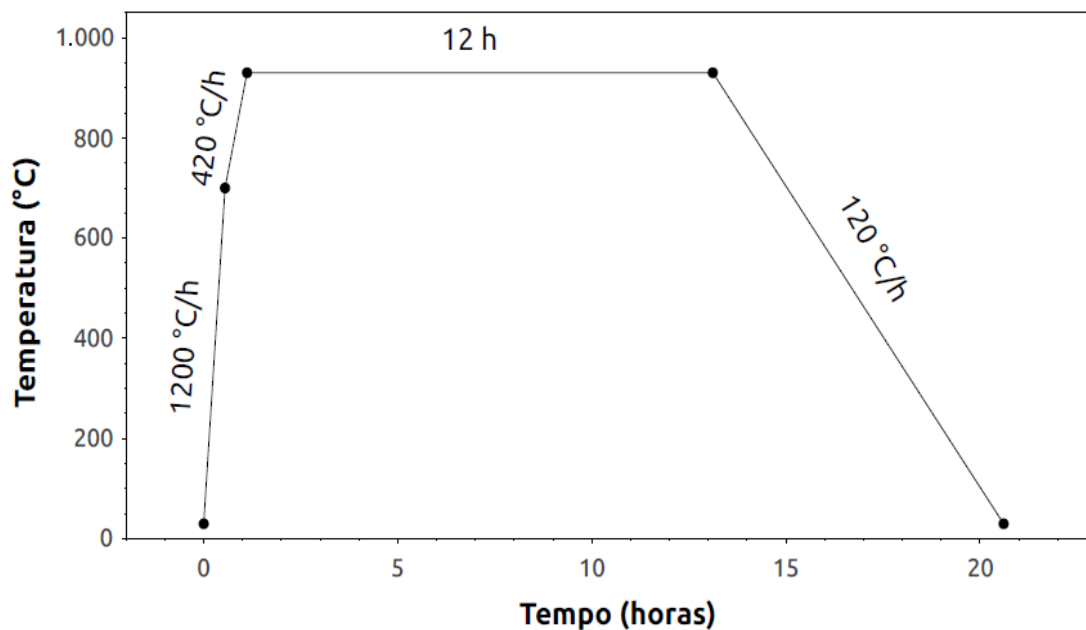


Figura 3.1 - Tratamento térmico utilizado na calcinação das amostras policristalinas de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$.

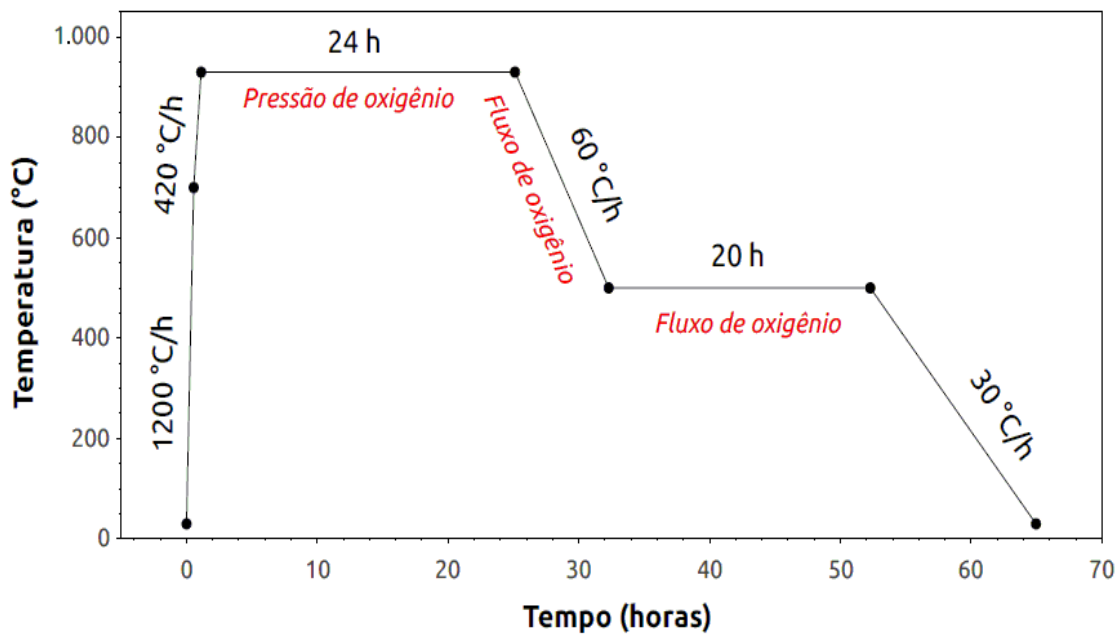


Figura 3.2 - Tratamento térmico utilizado na sinterização das amostras policristalinas de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$.

Ao final de todo o processo de síntese, a amostra apresentou um formato cilíndrico com diâmetro de 1 cm e altura de aproximadamente 0,25 cm, a qual foi posteriormente cortada em pequenos pedaços, originando diferentes corpos de prova, de modo que cada um destes foi designado a um tipo de caracterização, sendo elas, elétrica, magnética e estrutural.

Inicialmente foram produzidas cinco amostras policristalinas de Y358, porém, apenas uma foi escolhida como representativa deste trabalho.

3.2 MEDIDAS DE RESISTIVIDADE ELÉTRICA E MAGNETORRESISTÊNCIA

Neste item descreveremos os equipamentos, procedimentos e técnicas experimentais empregados nas medidas de resistividade e magnetorresistência, bem como o processo de colocação de contatos elétricos na amostra.

3.2.1 Descrição e funcionamento do equipamento

As medidas de resistividade em função da temperatura e com campo magnético aplicado (magnetorresistência), foram realizadas no Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul em uma plataforma do tipo PPMS (*Physical Properties Measurements System*) fabricada pela empresa *Quantum Design*®. Estas medidas foram desenvolvidas com a colaboração dos pesquisadores Valdemar Vieira, Jacob Schaf e Paulo Pureur, bem como do estudante de doutorado Fabiano Mesquita.

Pode-se dividir o sistema PPMS utilizado neste trabalho em duas partes principais: criogenia e base eletrônica. O sistema criogênico é formado por um criostato baseado num *dewar* super-isolado contendo hélio líquido. O *dewar* contém cinco refletores de radiação eletromagnética e é composto ainda de um reservatório de hélio líquido com capacidade de 30 litros, uma câmara evacuada revestida com uma camada super-isolante e um depósito de carvão ativado, conforme ilustrado na figura 3.3.

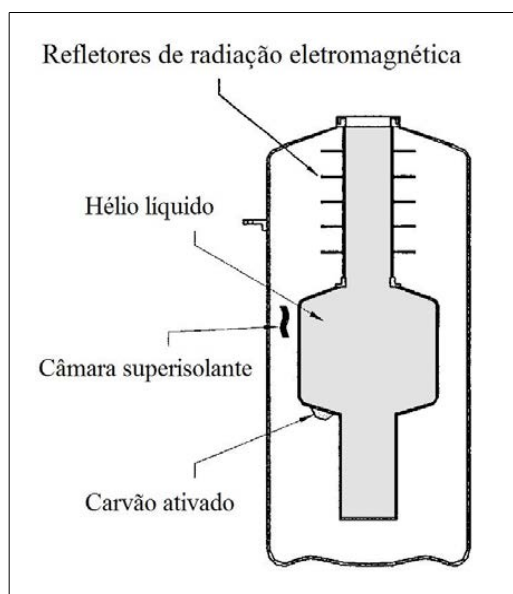


Figura 3.3 – Corte transversal do criostato super-isolado que compõe o sistema PPMS ^[59].

Dentro do reservatório de hélio encontram-se o magneto supercondutor, o sistema de termometria e a câmara de amostra, ilustrados esquematicamente na figura 3.4. O sistema permite medidas em um intervalo de temperatura de 1,9K a 400K e possibilita a aplicação de campos magnéticos entre -90 kOe e +90 kOe.

A base eletrônica é formada por um módulo eletrônico responsável por gerenciar quase todas as ações necessárias para o funcionamento da plataforma PPMS, tais como o controle dos sensores de temperatura, do aquecimento do gás hélio, do sensor de nível de hélio líquido, das chaves de fluxo de gás e ar e do sistema de vácuo. O procedimento de abastecimento de hélio líquido é realizado de forma manual e o controle da fonte de corrente para a bobina supercondutora é realizado por outro módulo eletrônico.

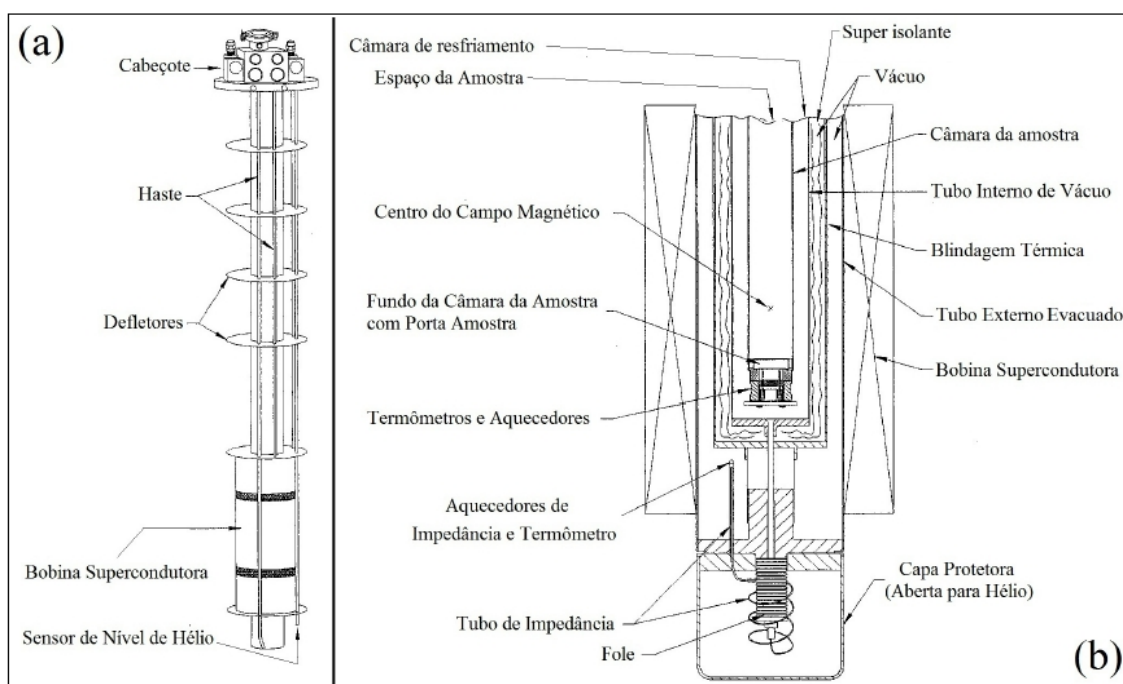


Figura 3.4 - (a) Estrutura interna do criostato com os principais componentes da sonda do PPMS.

(b) Corte transversal da região da bobina supercondutora e do porta amostras ^[59].

3.2.2 Preparação da amostra

A amostra designada para as medidas de magnetorresistência elétrica foi inicialmente cortada e preparada na forma de um paralelepípedo com dimensões 1,31 mm x 1,79 mm x 4,66 mm. A etapa seguinte foi a implantação dos contatos elétricos na amostra. Para isto quatro tiras paralelas de cola

prata foram depositadas sobre uma das superfícies da amostra, sendo a mesma submetida a um tratamento térmico à 200 °C por 1 hora para ocorrer a fixação dos contatos sobre a sua superfície, reduzindo a resistência de contato. Feito isso, foram colocados fios de cobre sobre a amostra, os quais foram cobertos com outra camada de cola prata. Em seguida, amostra juntamente com os fios foram levados ao forno utilizando-se do tratamento térmico anterior, para a cura e consequente fixação dos fios de cobre aos contatos. Na figura 3.5 está esquematizada a disposição dos contatos elétricos na amostra bem como a imagem real ao lado. Os contatos das extremidades (1 e 4) são utilizados para a aplicação de corrente elétrica (i), enquanto que entre os contatos internos (2 e 3) mede-se a diferença de potencial (V). Desta forma obtêm-se a resistência elétrica através da relação

$$R = \frac{V}{i} . \quad (3.1)$$

Considerando que a secção transversal da amostra é constante, determinamos resistividade elétrica ρ através da expressão

$$\rho = R \cdot \frac{A}{L} , \quad (3.2)$$

onde A é a área da seção transversal da amostra e L é a distância entre os contatos elétricos de diferença de potencial (contatos 2 e 3).

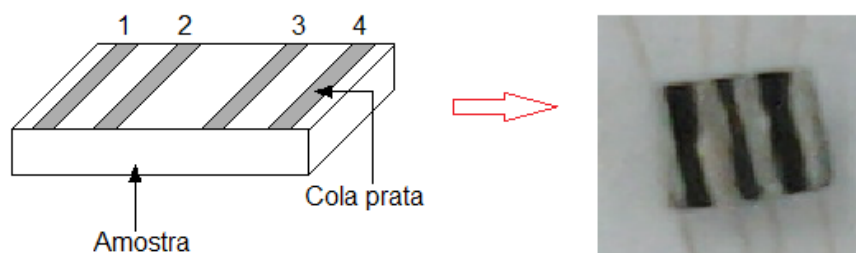


Figura 3.5 – Configuração dos contatos elétricos sobre a amostra, tendo ao lado imagem real com os contatos elétricos depositados na sua superfície.

3.2.3 Procedimentos de medidas

Conforme descrito na seção anterior, neste trabalho utilizou-se a técnica de quatro pontas, onde os contatos elétricos foram feitos com fios de cobre fixados à superfície da amostra através da utilização de cola prata. O comportamento da resistividade elétrica em função da temperatura foi medido para diferentes valores de campo magnético aplicado e com uma corrente elétrica padrão de 1 mA. Foram realizadas medidas de resistividade elétrica em campo magnético nulo e para valores crescentes de campo magnético, desde 0,01 kOe até 10 kOe.

3.3 MEDIDAS DO MOMENTO MAGNÉTICO

Foram realizadas diversas medidas de momento magnético em função da temperatura, segundo os procedimentos ZFC e FC. Nesta seção iremos descrever o equipamento utilizado, a preparação das amostras, bem como os procedimentos e técnicas experimentais adotados nestes experimentos.

3.3.1 Descrição e funcionamento do equipamento

As medidas de momento magnético foram realizadas com a utilização de um magnetômetro SQUID MPMS (*Magnetic Properties Measurement System*) fabricado pela *Quantum Design*® e instalado no Laboratório de Magnetismo e Supercondutividade do Instituto de Física da Universidade Federal do Rio Grande do Sul. Estas medidas foram desenvolvidas com a colaboração dos pesquisadores Jacob Schaf e Paulo Pureur, bem como, do estudante de doutorado Fabiano Mesquita.

O referido equipamento permite a realização de medidas de momento magnético com uma precisão de 5×10^{-9} emu em campos magnéticos aplicados de até 50 kOe. O sistema opera em uma faixa de temperaturas compreendidas entre 1,9K e 400K e com uma precisão de 0,01K. Na figura 3.6 está representado o esquema geral do magnetômetro de SQUID, o qual é constituído por uma parte criogênica e outra parte responsável pelo sistema de controle operacional.

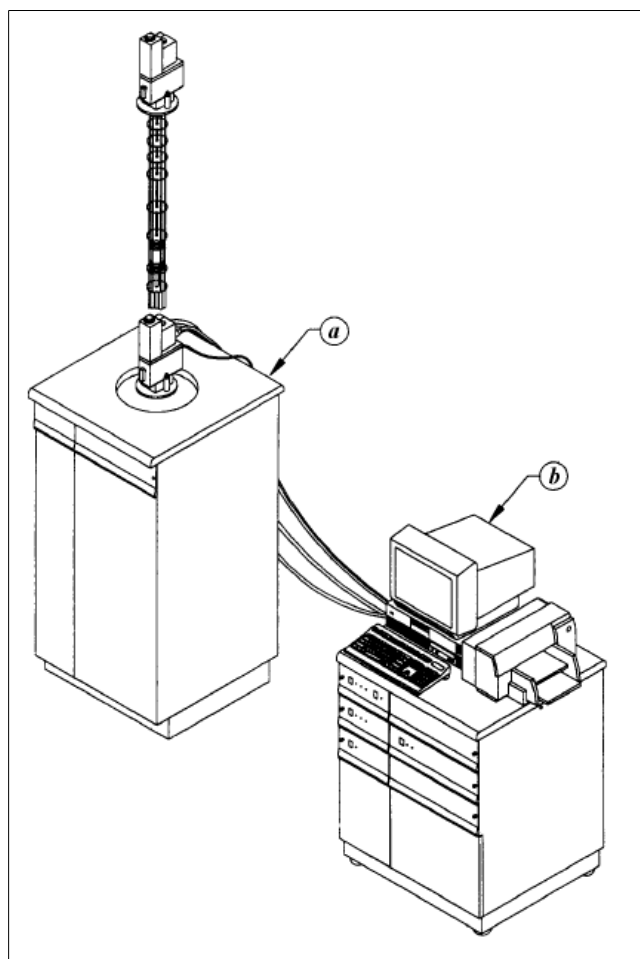


Figura 3.6 - Representação do magnetômetro de SQUID com: (a) a parte criogênica e o (b) sistema de controle operacional ^[19].

A parte criogênica é constituída por um criostato super-isolado de alumínio, o qual que é resfriado com hélio líquido e tem capacidade para 56 litros. Neste criostato, o qual é blindado termicamente com nitrogênio líquido, está contido o magneto supercondutor, o sensor SQUID, o sistema de termometria, as válvulas de controle de temperatura, entre outros. 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, haste de transporte, etc. A figura 3.7 ilustra o mecanismo que constitui uma parte do sistema criogênico denominada *inset*.

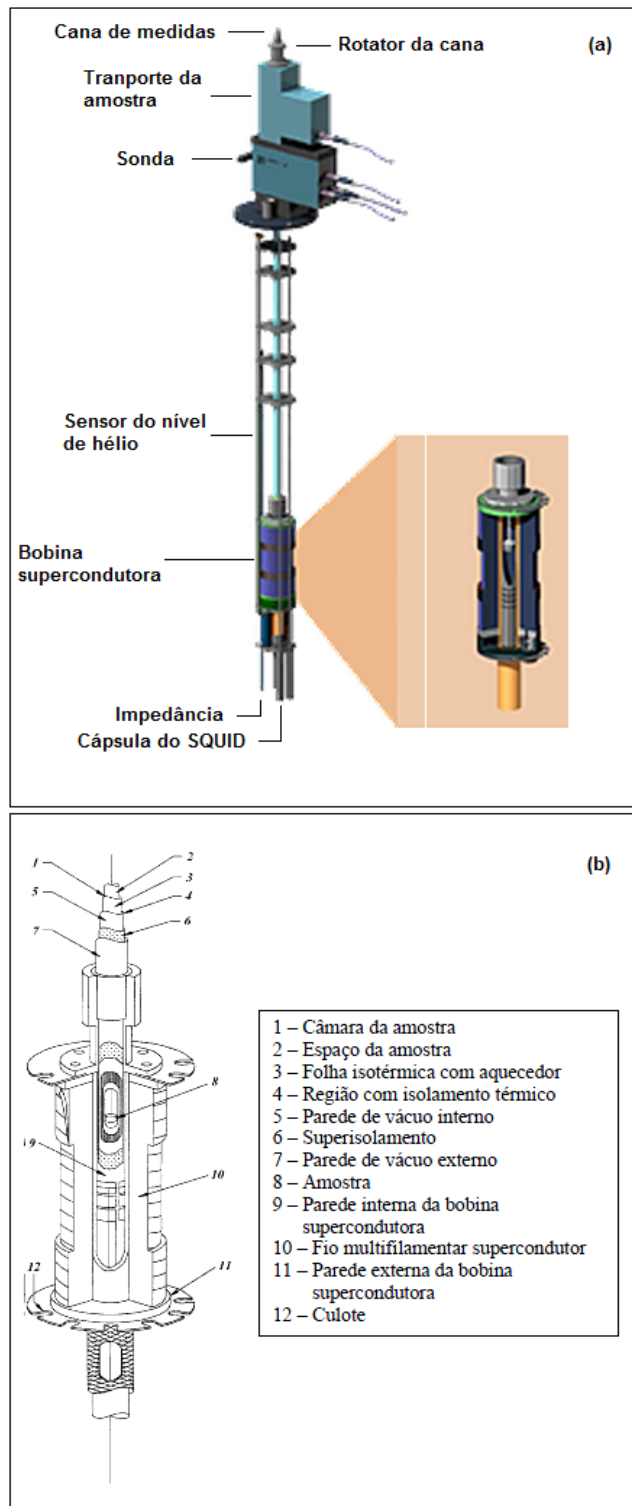


Figura 3.7 - Ilustração do sistema criogênico do magnetômetro de SQUID, (a) cana de medidas, estrutura interna do criostato e sistema magnético, (b) esquema detalhado da região em torno da amostra (Adaptada da ref. [60]).

O sistema eletrônico de controle é constituído de um computador que controla o equipamento através de uma interface IEEE-488. A operação do magnetômetro é realizada através de três controladores comandados por este computador. O primeiro controlador controla praticamente todo o mecanismo da cana de medidas, pois ele é responsável pelo transporte e translação da amostra, a detecção do sinal SQUID, o acoplamento do aquecedor interno, a fonte de corrente para alimentar a bobina supercondutora, a chave para a operação no modo persistente, a impedância e o detector do nível de hélio líquido. O segundo controlador comanda a chave de fluxo de gás, o aquecedor, a chave de fluxo de ar e também a bomba de vácuo. Já o terceiro controlador é o responsável pelo sensor de temperatura e aquecimento do gás hélio.

O princípio básico de operação deste magnetômetro SQUID consiste no fornecimento de corrente elétrica da fonte para as bobinas supercondutoras, as quais geram um campo magnético na região onde a amostra encontra-se localizada. Assim, a amostra magnetizada produz um campo induzido cuja variação é lida pelo sensor de SQUID, o qual é constituído por um anel supercondutor interrompido por uma (SQUID RF) ou duas (SQUID DC) junções Josephson que são capazes de transformar variações extremamente pequenas de fluxo magnético em tensão elétrica ^[43,61].

O magnetômetro de SQUID conta com dois sistemas distintos de operação, o modo DC e o modo RSO. No sistema DC (*Direct Current*) a amostra excursiona para fora da região central da bobina a cada ponto medido, sendo novamente colocada no centro da bobina supercondutora para a medida do ponto seguinte. Com o sistema RSO (*Reciprocating Sample Option*), o equipamento opera no mesmo modo de um magnetômetro de amostra vibrante, com a amostra vibrando numa frequência bem definida em torno de um ponto fixo centralizado em relação à bobina ^[19,43,61].

3.3.2 Preparação da amostra

A amostra designada para as medidas de momento magnético foi cortada com o auxílio de uma serra e uma lixa d'água no formato de um pequeno paralelepípedo de dimensões 2,65 mm x 2,49 mm x 0,67 mm. Antes de ser posicionada no interior do equipamento de medida, a amostra foi fixada em um porta-amostra de teflon com o auxílio de graxa de vácuo, a fim de evitar possíveis vibrações indesejáveis durante o processo de medida.

3.3.3 Procedimento de medida

As medidas de momento magnético em função da temperatura com campo magnético fixo foram realizadas segundo os procedimentos ZFC (*Zero Field Cooling*) e FC (*Field Cooling*), os quais foram descritos em detalhes na seção 2.2.1. Para a realização das medidas foram aplicadas diversas intensidades de campo magnético à amostra, compreendidas no intervalo em que $0,01 \text{ kOe} \leq H \leq 10 \text{ kOe}$.

3.4 CARACTERIZAÇÃO MICROSCÓPICA

A análise microscópica foi realizada no Laboratório Central de Microscopia Eletrônica (LCME) da Universidade Federal de Santa Catarina (UFSC), utilizando-se um microscópio eletrônico de varredura JEOL JSM-6390LV com sistema de EDS acoplado. Esta etapa contou com a colaboração do pesquisador Douglas Langie da Silva.

3.4.1 Microscopia eletrônica de varredura (SEM – *Scanning Electron Microscope*)

A partir da utilização da técnica de microscopia eletrônica de varredura tornou-se possível analisar a morfologia da superfície da amostra de $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$. Esta técnica consiste em incidir um fino feixe de elétrons sobre a amostra, o qual interage com a superfície da mesma podendo ocorrer a emissão de elétrons secundários, os quais são coletados para a formação das imagens de alta resolução.

Nas figuras 3.8, 3.9 e 3.10 são apresentadas imagens ampliadas 500, 2.000 e 10.000 vezes, respectivamente, da amostra de Y358.

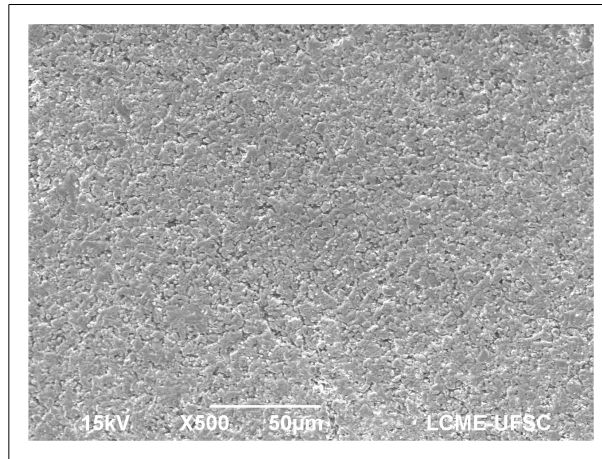


Figura 3.8 – Imagem de MEV (500X) para a amostra de Y₃Ba₅Cu₈O₁₈.

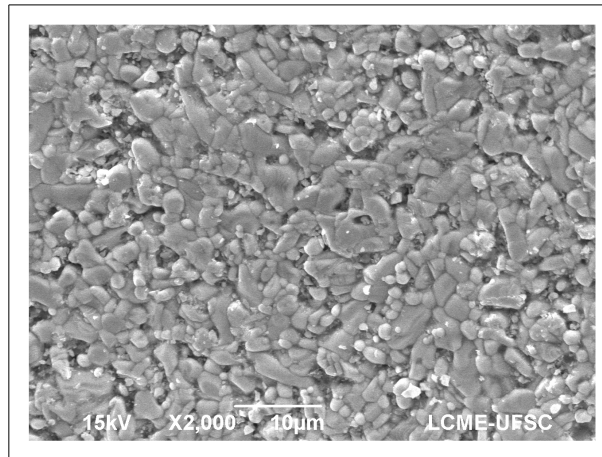


Figura 3.9 – Imagem de MEV (2.000X) para a amostra de Y₃Ba₅Cu₈O₁₈.

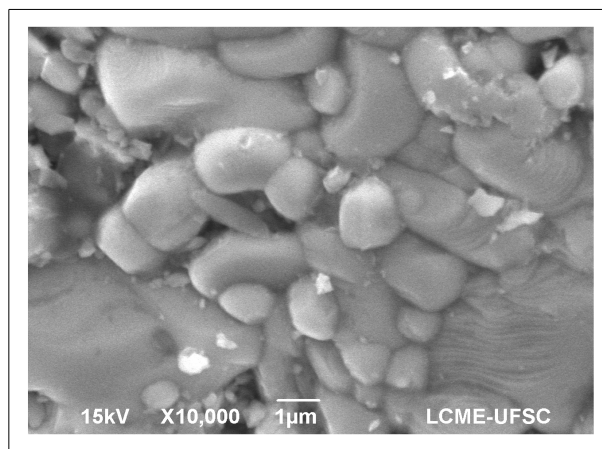


Figura 3.10 – Imagem de MEV (10.000X) para a amostra de Y₃Ba₅Cu₈O₁₈.

Como pode ser observado pelas Figuras 3.8, 3.9 e 3.10 há uma boa homogeneidade e poucos defeitos (rachaduras), o que atesta a boa qualidade da amostra. As imagens evidenciam o acentuado caráter granular deste sistema e revelam a não uniformidade nos tamanhos dos grãos os quais possuem um formato irregular, com tamanhos que variam de valores menores que 1 μm a aproximadamente 3 μm . Nota-se ainda que, apesar de ser um sistema poroso, alguns grãos parecem formar regiões bem compactas e conectadas. Os resultados encontrados na análise por MEV estão de acordo com o esperado para uma amostra policristalina sinterizada de Y358 ^[62].

3.4.2 Espectroscopia por energia dispersiva de raios – X (EDS – *Energy Dispersive Spectroscopy*)

A espectroscopia por dispersão em energia (EDS) é uma técnica de análise complementar a microscopia, a qual, através da emissão de raios-X característicos de cada elemento gerados durante transições entre níveis de energia, nos permite identificar os elementos presentes na amostra.

O espectro de EDS representado na figura 3.11 foi coletado na mesma região onde foi obtida a imagem de microscopia apresentada no *inset* da figura. Através da análise do espectro é possível constatar que os elementos presentes na amostra são ítrio, bário, cobre e oxigênio, o que indica que não há presença aparente de impurezas, atestando com isso uma boa qualidade desta amostra no que diz respeito à sua composição química.

Para identificar os elementos dos diversos picos do espectro, foram comparadas as energias destes picos com as dos elementos da tabela de energia de radiação ^[63], escolhendo o elemento que melhor se adaptava a uma determinada raia e observando a existência das demais raias relacionadas a este elemento.

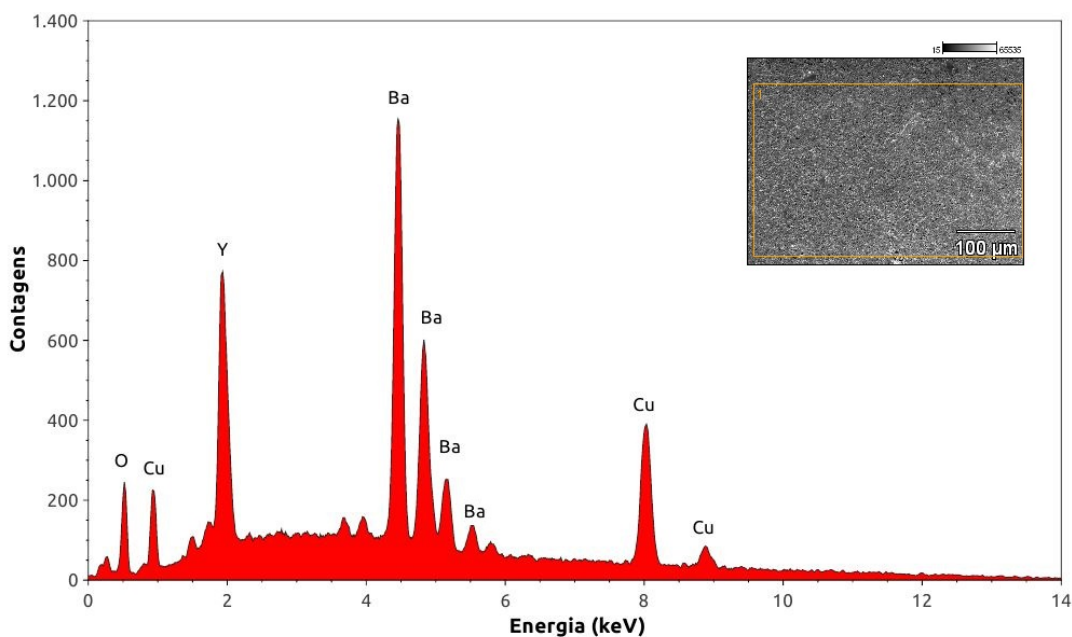


Figura 3.11 – Análise por EDS para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$. O inset apresenta a imagem de microscopia da região da amostra onde foi coletado o espectro de EDS.

3.5 DIFRAÇÃO DE RAIOS – X

A amostra policristalina utilizada neste trabalho teve sua estrutura cristalográfica analisada por meio da técnica de difração de raios-X, utilizando-se da radiação $CuK\alpha$, sendo $\lambda_{CuK\alpha} = 1,54178 \text{ \AA}$. As medidas foram realizadas em um difratômetro de raios-X modelo XPert PRO MPD (*Multi-Purpose Diffractometer*) da PANanalytical, em funcionamento no Laboratório Multiusuário de Difração de Raios-X (LDRX) da UFSC, através da colaboração do pesquisador Douglas Langie da Silva.

Os valores dos parâmetros de rede, os quais estão relacionados na tabela 3.1, foram calculados utilizando-se a lei de Bragg,

$$n\lambda = 2d \sin(\theta) \quad , \quad (3.3)$$

juntamente com a equação:

$$\frac{1}{d^2} = \frac{h^2}{a^2} + \frac{k^2}{b^2} + \frac{l^2}{c^2}, \quad (3.4)$$

onde $n = 1$, θ é o ângulo entre o feixe incidente e os planos do cristal, d é a distância interplanar, a , b e c são os parâmetros de rede e h , k e l os índices de Müller.

Na figura 3.12 encontra-se ilustrado o difratograma de raios-X para a amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, onde estão indicados os índices de Müller correspondentes a cada pico.

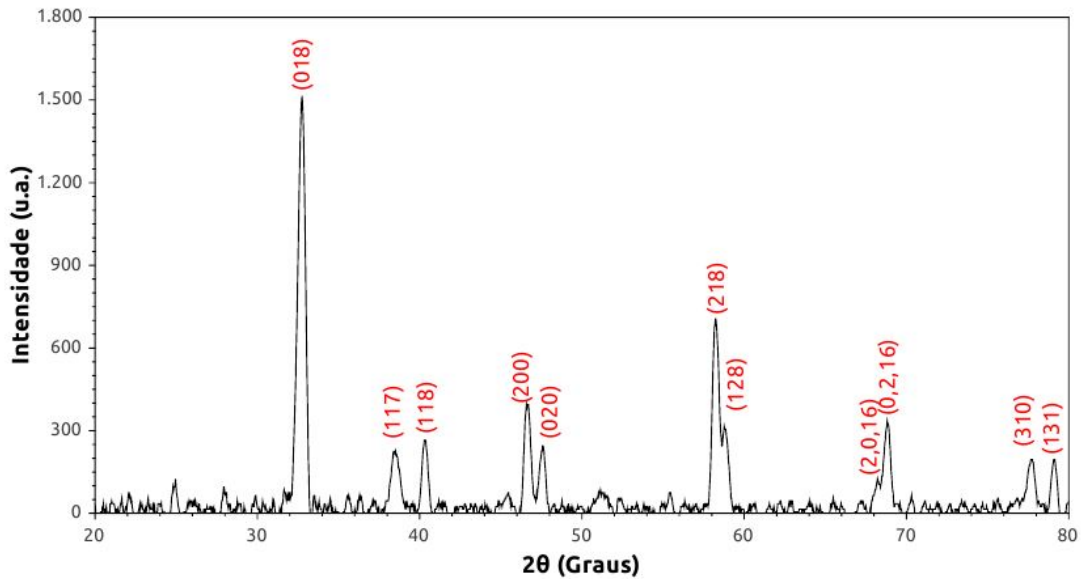


Figura 3.12 – Difratograma de raios-X da amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, onde estão indexados os respectivos planos de difração do sistema.

A indexação dos picos foi comparada com difratogramas reportados na literatura ^[13,20,21,64] para que a estrutura do Y358 fosse confirmada, sendo que as posições dos picos encontram-se em acordo com os resultados experimentais existentes.

De acordo com as disposições angulares dos máximos do diagrama da Figura 3.12, foi possível observar que não há uma orientação cristalográfica preferencial para a amostra, confirmando seu acentuado caráter granular.

A amostra analisada apresenta a estrutura ortorrômbica característica deste sistema, cujos valores dos parâmetros de rede obtidos da análise de raios-X encontram-se apresentados na tabela 3.1. Para efeito de comparação, estão também listados valores reportados na literatura. Para a determinação dos parâmetros de redes foram utilizados os picos mais intensos do difratograma.

Parâmetro	$Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$	Ref. [15]	Ref. [21]
a (Å)	3,8878	3,880	3,88
b (Å)	3,8185	3,811	3,84
c (Å)	31,116	31,089	31,71

Tabela 3.1 – Parâmetros de rede obtidos da análise de raios-X para a amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ e valores existentes na literatura para este sistema.

Capítulo 4

COMPORTAMENTO MAGNÉTICO DO SUPERCONDUTOR $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$

Neste capítulo serão apresentados e conseqüentemente discutidos os resultados experimentais obtidos da magnetização em função da temperatura segundo os procedimentos ZFC e FC. As medidas de magnetização possibilitaram a determinação da temperatura de irreversibilidade magnética T_{ir} , e a conseqüente linha de irreversibilidade magnética.

4.1 MAGNETIZAÇÃO ZFC E FC

Foram realizadas medidas de magnetização, segundo os procedimentos ZFC e FC, com a aplicação de campos magnéticos compreendidos no intervalo $0,01 \text{ kOe} \leq H \leq 10 \text{ kOe}$.

4.1.1 Magnetização ZFC – efeito de blindagem

Nas medidas ZFC, conforme descrito na seção 2.2.1, parte-se de uma temperatura superior ao T_C e resfria-se a amostra em campo magnético nulo até baixas temperaturas. A seguir aplica-se o campo magnético e mede-se o momento magnético em função da temperatura.

Na figura 4.1 estão ilustrados os resultados experimentais para a magnetização ZFC obtidos com a amostra policristalina de Y358. A figura 4.1 (a) refere-se aos resultados obtidos para campos magnéticos até 750 Oe, enquanto que a figura 4.1 (b) refere-se aos resultados obtidos para campos magnéticos compreendidos entre 1 kOe e 10 kOe.

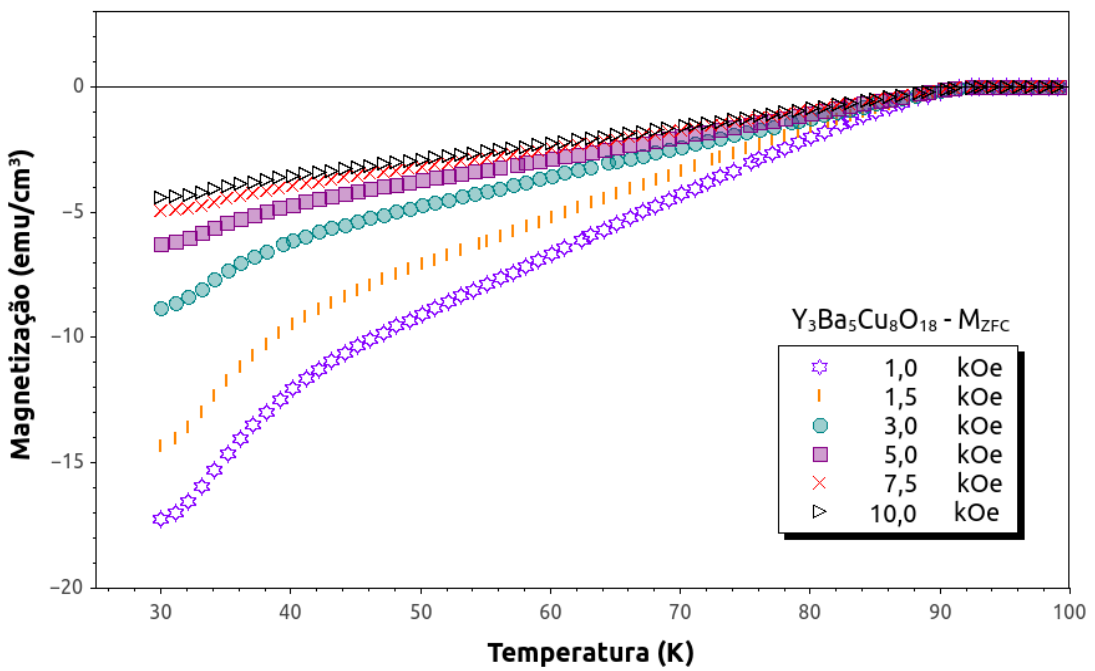
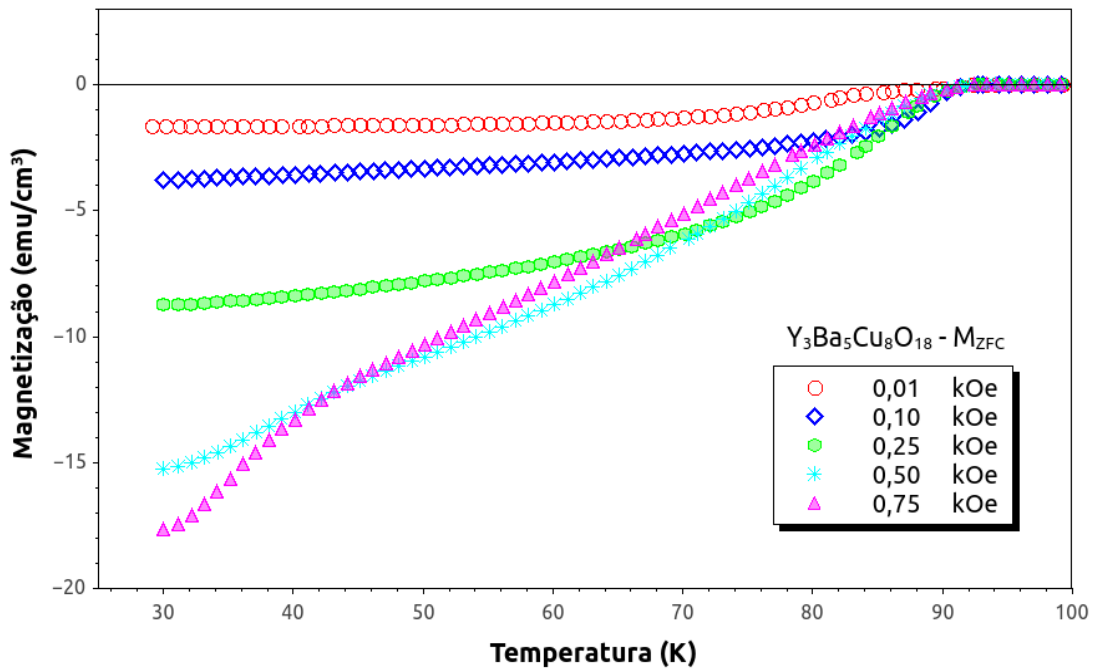


Figura 4.1 – Curvas de magnetização ZFC para a amostra policristalina de Y₃Ba₅Cu₈O₁₈ com diferentes valores de campo magnético.

Observamos que até o limite de campo magnético aplicado $H \leq 500$ Oe a resposta diamagnética (efeito de blindagem) resulta em um aumento da magnetização conforme o aumento do campo aplicado, porém, nota-se o enfraquecimento desta resposta com a aplicação de campos magnéticos mais intensos, $H \geq 500$ Oe, bem como em temperaturas elevadas. Este resultado pode estar relacionado a um enfraquecimento das correntes de blindagem na amostra.

Utilizando-se das medidas de magnetização ZFC em função da temperatura (M x T) foi possível a obtenção de curvas representativas do comportamento da magnetização ZFC em função do campo magnético aplicado (M x H), as quais estão ilustradas na figura 4.2, para as temperaturas de 30 K, 50 K e 77 K.

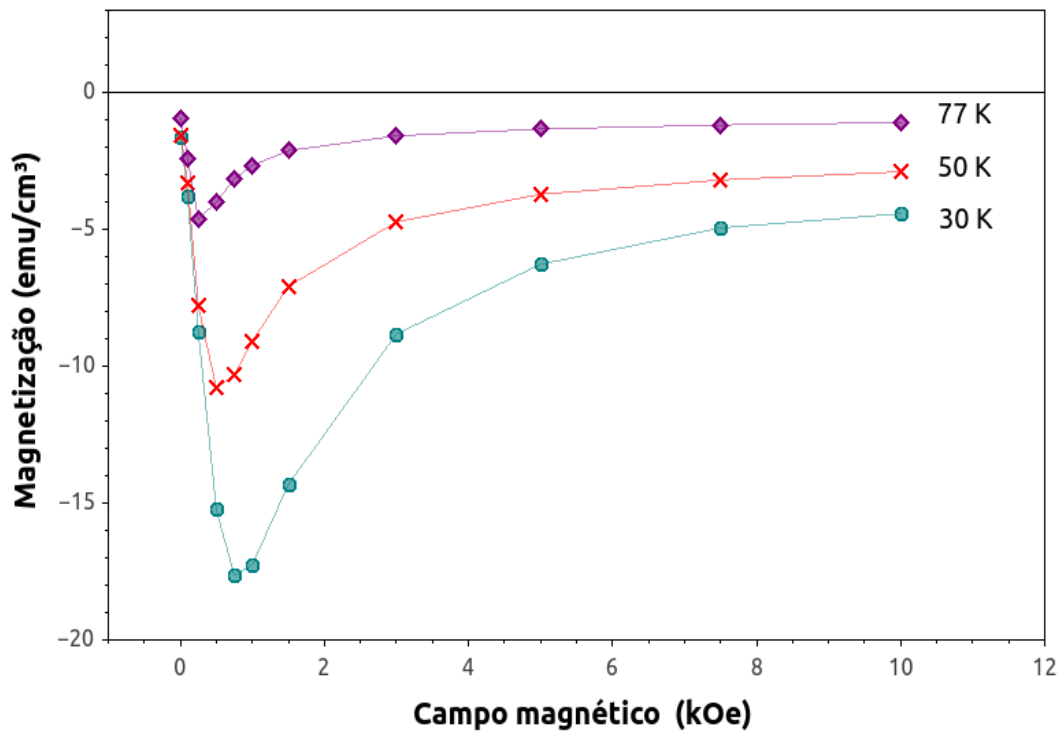


Figura 4.2 – Variação da magnetização ZFC em função do campo magnético aplicado para as temperaturas de 30, 50 e 77 K.

Da figura observa-se que à temperatura de 30 K a magnetização continua a crescer com o campo até cerca de 750 Oe, enquanto que para a temperatura de 50 K o crescimento da magnetização com o campo continua até 500 Oe. Pode-se ainda notar que para $T \leq 50$ K a magnetização ZFC mantém-se linear com o campo aplicado somente até $H = 250$ Oe. Este resultado sugere que $H_{C1}(0)$ é da ordem de 250 Oe para a nossa amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, ou seja, para $H > 250$ Oe a magnetização desvia-se da linearidade conforme as linhas de fluxo magnético penetram na amostra devido ao enfraquecimento das correntes de blindagem.

Podemos ainda observar da figura 4.2 que, devido a força de *pinning*, a magnetização atinge um mínimo, determinando assim o valor do campo crítico inferior $H_{c1}(T)$, o qual diminui com o aumento da temperatura e aproxima-se de zero quando $T \rightarrow T_c$.

4.1.1.1 Caracterização da transição supercondutora

Através das medidas de magnetização foi possível caracterizar a transição supercondutora da amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ utilizada neste trabalho. Considerando o mais baixo campo aplicado $H = 0,01$ kOe, adotamos como temperatura crítica de transição, T_c , o ponto em que a curva de magnetização ZFC desvia-se de seu comportamento linear. Na figura 4.3 encontra-se representado este critério, onde a seta indica a temperatura de transição T_c . O valor encontrado de $T_c = 93,44$ K está de acordo com alguns dos vários resultados encontrados na literatura para o sistema Y358, conforme já discutido na seção 2.3 ^[12,22].

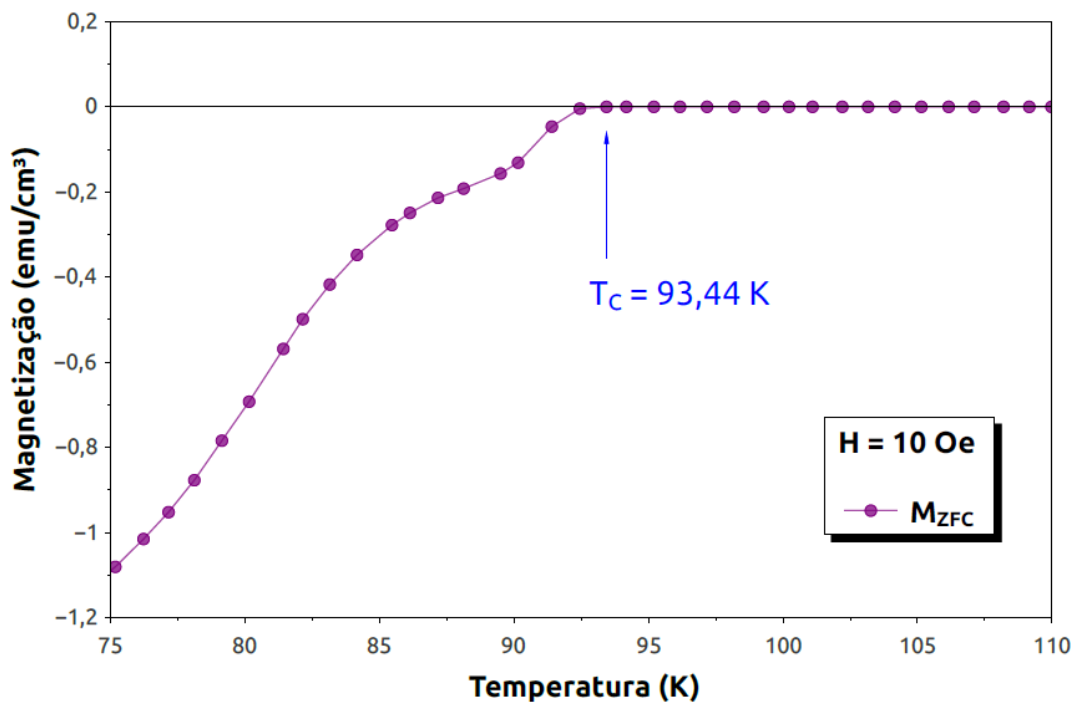


Figura 4.3 – Medida de magnetização ZFC para $H = 10$ Oe com indicação da temperatura crítica (T_c).

4.1.2 Magnetização FC – Efeito Meissner

Para as medidas de magnetização FC, conforme já descrito na seção 2.2.1, parte-se de uma temperatura superior ao T_C e resfria-se a amostra, com campo magnético aplicado, até baixas temperaturas. A medida pode ser realizada durante o decréscimo da temperatura (procedimento FCC – *Field Cooled Cooling*) ou na elevação da temperatura (procedimento FCW- *Field Cooled Warming*). O procedimento experimental adotado para este trabalho foi o protocolo FCC. Observam-se nestes procedimentos uma magnetização diamagnética resultante da expulsão do fluxo magnético do interior da amostra, decorrente do efeito Meissner.

A figura 4.5 ilustra os resultados das medidas de magnetização segundo o procedimento FC para a amostra policristalina sinterizada de Y358. A figura 4.4 (a) representa os resultados obtidos para campos magnéticos aplicados até 750 Oe, enquanto que a figura 4.4 (b) refere-se as medidas de magnetização FC para os campos magnéticos compreendidos entre 1 kOe e 10 kOe. Observa-se através das figuras 4.4 (a) e (b) que o diamagnetismo aumenta até o campo de 1000 Oe, enquanto que para campos mais intensos há um enfraquecimento da resposta diamagnética deste sistema, sendo assim, o diamagnetismo decorrente da expulsão do fluxo magnético do interior da amostra (efeito Meissner) mostrou-se dependente da intensidade de campo magnético aplicado, como esperado. O enfraquecimento do efeito Meissner pode ser explicado da seguinte maneira: como a resposta da magnetização FC se caracteriza pela expulsão do fluxo magnético do interior do volume da amostra supercondutora, pela ação das correntes de blindagem, esta expulsão não ocorre na sua totalidade, ou seja, parte do fluxo magnético total se mantém aprisionado no interior do material devido a defeitos nele existentes, tais como: rachaduras, fronteiras entre os grãos, ligações fracas entre os cristalitos, e etc., os quais funcionam como centros de *pinning*.

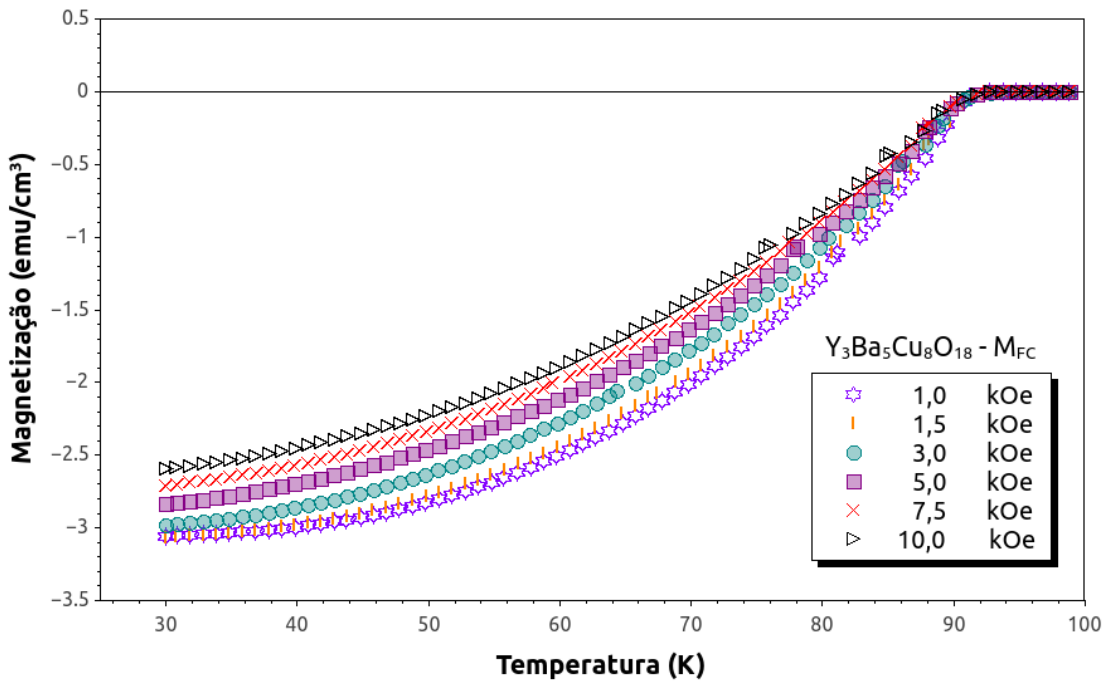
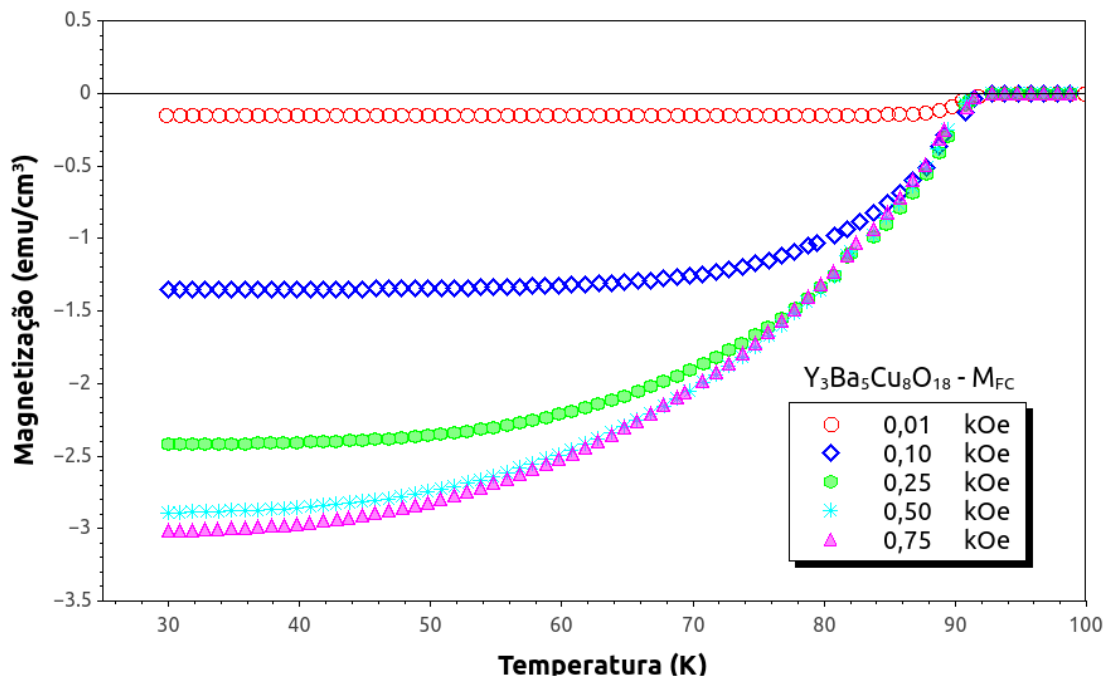


Figura 4.4 – Curvas de magnetização FC para a amostra sinterizada de Y₃Ba₅Cu₈O₁₈ com aplicação de diferentes valores de campo magnético.

4.1.3 Comportamento irreversível da magnetização

O comportamento do limite de irreversibilidade magnética da amostra policristalina de Y358 estudada neste trabalho foi obtido através da análise de curvas de magnetização do tipo ZFC e FC. O estudo do comportamento irreversível da magnetização nos possibilita obter relevantes informações sobre a dinâmica de vórtices na amostra. Assim sendo, inicialmente determinamos as temperaturas de irreversibilidade magnética, $T_{ir}(H)$, para que então sejam dispostas num diagrama tipo H-T, fornecendo assim o perfil da linha de irreversibilidade magnética (LIM).

Na figura 4.5 é apresentado o comportamento da magnetização ZFC e FC para dois dos diferentes valores de campo magnético aplicado nas medidas realizadas. Os gráficos representam as curvas de magnetização em um determinado intervalo de temperatura, onde é possível determinar a temperatura de irreversibilidade magnética, $T_{ir}(H)$, a qual é indicada por uma seta em cada quadro da figura.

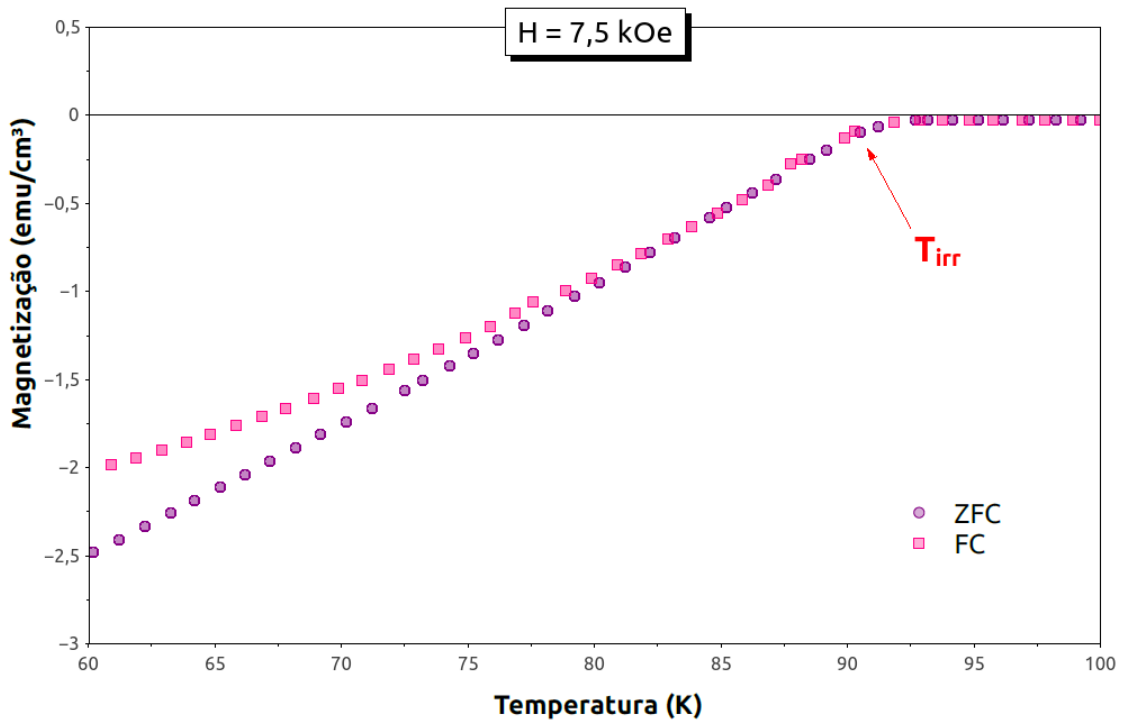
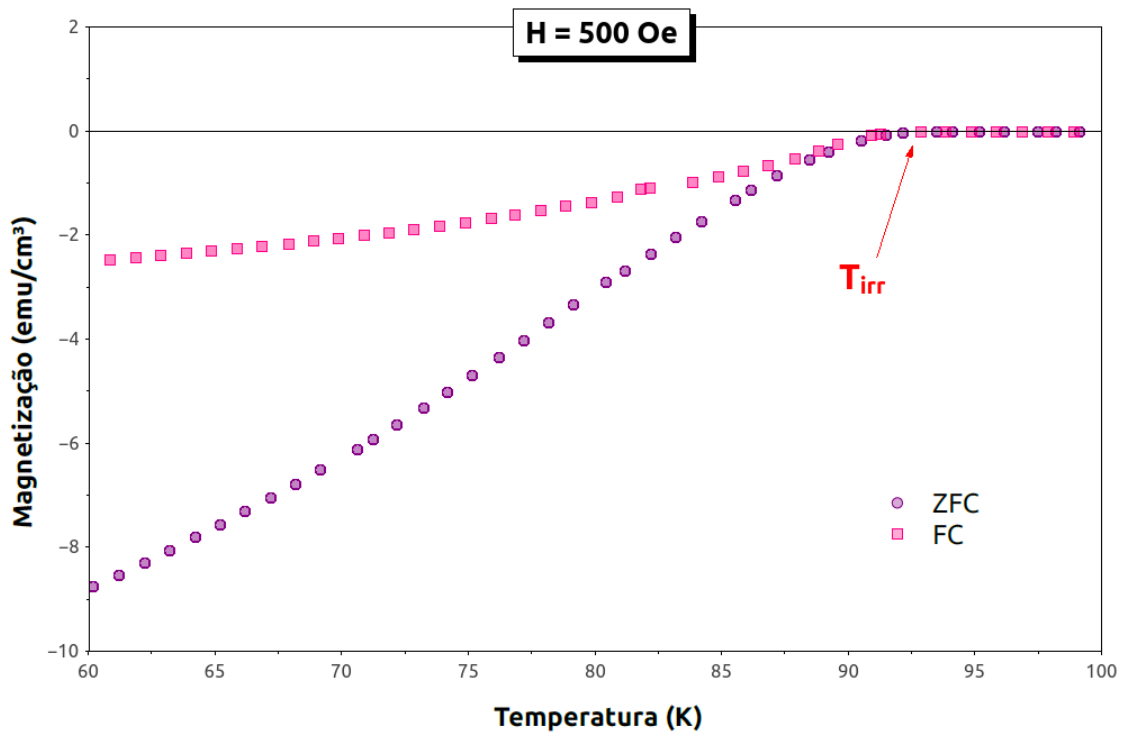


Figura 4.5 – Medidas de magnetização segundo os procedimentos ZFC e FC para (a) 500 Oe e (b) 7,5 kOe, com indicação da temperatura de irreversibilidade magnética T_{irr} .

4.1.3.1 Determinação da temperatura de irreversibilidade magnética

Analisando os resultados das medidas de magnetização apresentados anteriormente foi possível obter o limite de irreversibilidade magnética, $T_{irr}(H)$. Na figura 4.6, encontra-se esquematizado o critério adotado para a determinação da temperatura de irreversibilidade magnética. O ponto onde as curvas ZFC e FC se separam é tomado como sendo a temperatura de irreversibilidade magnética, $T_{irr}(H)$, ou o limite de irreversibilidade, o qual é indicado por uma seta. No quadro principal está representado o comportamento das medidas em um reduzido intervalo de temperatura, onde é possível determinar com maior precisão o limite irreversível, enquanto que no *inset* da figura é apresentado o comportamento das medidas ZFC e FC em todo o intervalo de temperatura.

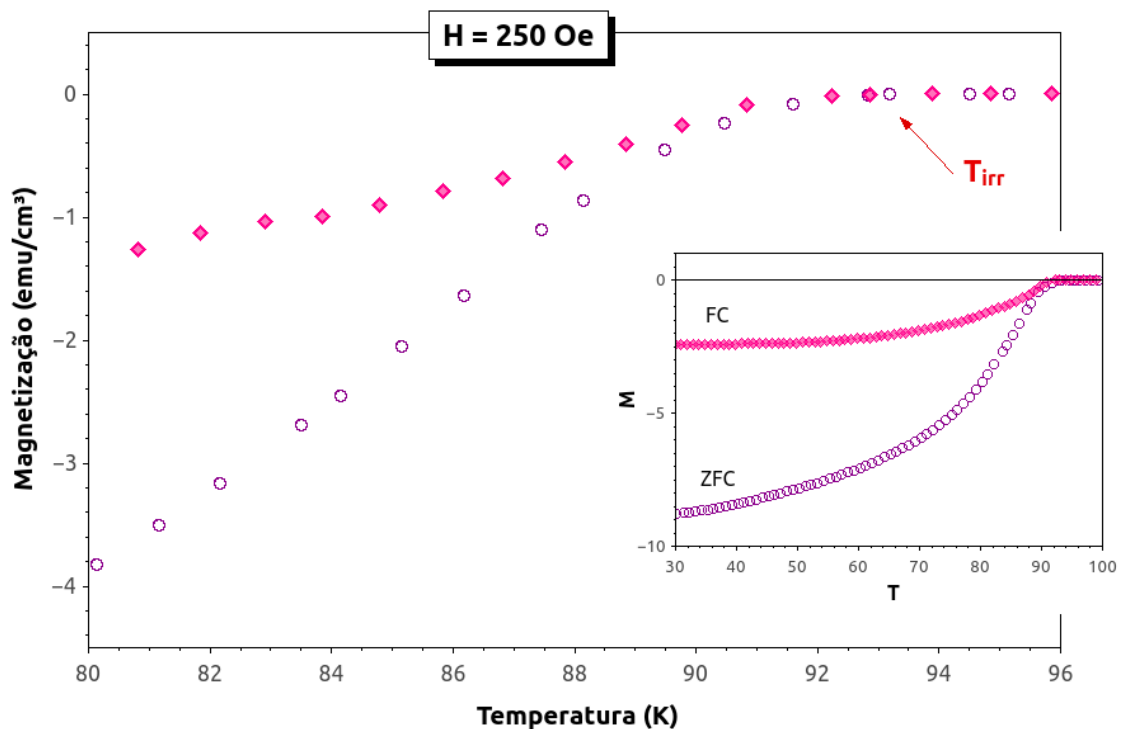


Figura 4.6 – Magnetização segundo os procedimentos ZFC e FC para o campo magnético aplicado de 250 Oe, com indicação da temperatura de irreversibilidade magnética T_{irr} . No inset são apresentadas as curvas de magnetização em todo o intervalo de temperatura, enquanto que no gráfico principal as mesmas curvas ZFC e FC são apresentadas em um intervalo menor de temperatura para melhor visualização do limite irreversível.

Para cada valor de campo magnético aplicado é obtida uma temperatura de irreversibilidade magnética pelo procedimento acima descrito. Na tabela 4.1 são apresentados os valores das temperaturas de irreversibilidade obtidas para os diferentes valores de campo magnético.

H (kOe)	T_{irr} (K)	H (kOe)	T_{irr} (K)
0,01	93,53 ± 0,09	1,0	92,42 ± 0,27
0,025	93,42 ± 0,16	1,5	92,39 ± 0,31
0,10	93,21 ± 0,19	3,0	92,20 ± 0,41
0,25	93,02 ± 0,20	5,0	91,53 ± 0,39
0,50	92,72 ± 0,23	7,5	90,40 ± 0,43
0,75	92,48 ± 0,26	10,0	88,46 ± 0,52

Tabela 4.1 – Temperaturas de irreversibilidade magnética obtidas para os diferentes valores de campo magnético aplicado.

Podemos notar, das medidas de magnetização em função da temperatura, que o campo magnético afeta diretamente a temperatura em que ocorre o limite irreversível, fazendo com que a temperatura $T_{irr}(H)$ se desloque para valores menores conforme o aumento da intensidade do campo. O conjunto de pontos experimentais de $T_{irr}(H)$ em um diagrama do tipo H-T define a linha de irreversibilidade magnética (LIM).

4.1.3.2 *Linha de irreversibilidade magnética*

A partir dos valores experimentais obtidos para a $T_{irr}(H)$ representados na tabela 4.1, obtemos o comportamento da linha de irreversibilidade magnética, conforme ilustrado na figura 4.7.

Os pontos no diagrama representam a temperatura de irreversibilidade magnética $T_{irr}(H)$, enquanto que as linhas contínuas são representativas para o ajuste matemático segundo o modelo do vidro supercondutor, o qual foi discutido na seção 2.2.3.2.

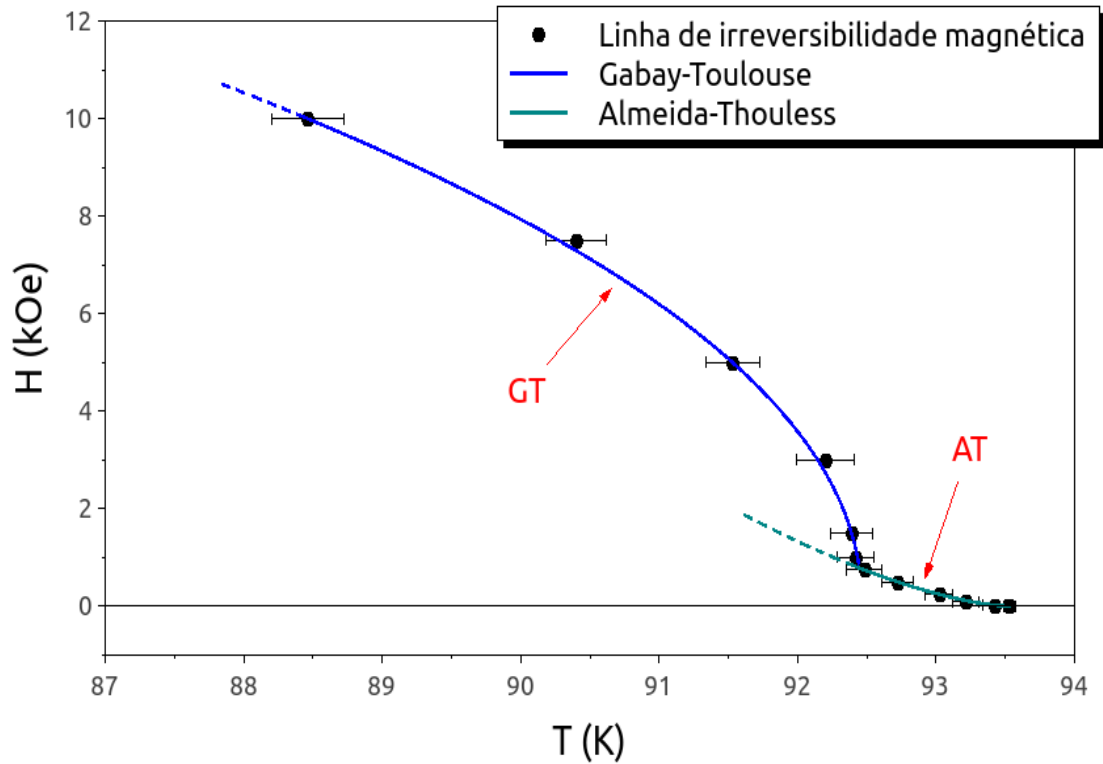


Figura 4.7 – LIM para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, onde as linhas contínuas representam os ajustes matemáticos segundo as leis de potências do tipo Almeida-Thouless (AT) e Gabay-Toulouse (GT), com as respectivas barras de erro na determinação dos valores de $T_{irr}(H)$.

A disposição dos valores de $T_{irr}(H)$ para campos magnéticos abaixo de 1 kOe segue a funcionalidade descrita pela lei de potência prevista pelo regime Almeida-Thouless^[50],

$$H = H_0 \left(1 - \frac{T_{irr}(H)}{T_{irr}(0)} \right)^\gamma, \quad (4.1)$$

onde H_0 é o valor de campo magnético quando $T = 0$, $T_{irr}(H)$ é a temperatura de irreversibilidade na presença de campo magnético de intensidade H , $T_{irr}(0)$ é a temperatura de irreversibilidade em campo magnético nulo e $\gamma=3/2$.

Para campos entre 1 kOe e 10 kOe a linha de irreversibilidade magnética é descrita por uma lei de potência do tipo Gabay-Toulouse^[51], sendo esta similar a equação (4.1), porém com $\gamma=1/2$.

Os ajustes obtidos com a equação (4.1), representados pelas linhas contínuas na figura 4.7, resultam nos parâmetros de ajuste apresentados na tabela 4.2.

	H_0 (kOe)	$T_{irr}(0)$ (K)	γ
AT	717,88	$93,53 \pm 0,10$	$1,53 \pm 0,02$
GT	44,62	$92,46 \pm 0,13$	$0,48 \pm 0,01$

Tabela 4.2 – Parâmetros de ajuste para a LIM segundo o modelo Vidro Supercondutor.

Através dos dados expressos na tabela 4.2 nota-se que os valores obtidos para o expoente γ ficaram próximos aos previstos teoricamente para ambos os modelos Almeida-Thouless e Gabay-Toulouse.

Conforme já discutido na seção 1.2, os sistemas supercondutores $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-\delta}$ e $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ possuem uma estrutura similar. Devido a escassez de dados publicados sobre irreversibilidade magnética para o Y358, para fins de comparação dos dados que obtivemos, tomaremos por base o sistema Y123.

O comportamento da linha de irreversibilidade magnética apresentado pela amostra policristalina sinterizada de Y358, até o valor de campo aplicado de 10 kOe, sugere que nesse sistema a irreversibilidade possa ser interpretada com base no modelo de vidro supercondutor. Foi detectado um *crossover* do regime Almeida-Thouless para o regime Gabay-Toulouse, em $H \approx 1$ kOe, sendo que o regime GT persistiu até o campo $H = 10$ kOe. Este comportamento encontra-se em acordo com trabalhos similares, já publicados, para outros sistemas do tipo $REBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ ($RE = Y, Dy$). Segundo resultados reportados por Vieira ^[43] para o sistema Y123 policristalino, quando bem oxigenado, o comportamento do limite de irreversibilidade na região de baixos campos magnéticos obedece aos regimes AT-GT, sendo que para valores de campo acima de 10 kOe ocorre uma evolução para o regime *flux creep* gigante.

Um comportamento similar foi observado também por Fabris e col. ^[65] no cuprato supercondutor $DyBa_2Cu_3O_{7-\delta}$, onde o comportamento do tipo GT persistiu até o campo magnético de 10kOe.

Em nossa análise não há dados suficientes para garantirmos que a disposição dos valores de T_{irr} (H) ao longo do diagrama H-T obedeça a um comportamento do tipo GT até valores mais intensos de campo aplicado, nem tampouco se o comportamento irá seguir a funcionalidade prevista pelo modelo *flux creep* gigante. Para isto, se fazem necessárias medidas com valores maiores de campo magnético aplicado, as quais não foram feitas neste trabalho.

Conforme discutido no capítulo 2, o modelo de vidro supercondutor, o qual descreve o comportamento de nossa linha de irreversibilidade magnética, parte do princípio da existência de

um arranjo desordenado de grãos supercondutores fracamente acoplados via efeito Josephson. Estes resultados reiteram as análises realizadas no capítulo 3, através das técnicas de microscopia eletrônica de varredura e difração de raios-X, onde observou-se que a amostra apresenta um caráter acentuadamente granular, devendo ser tratada como um conjunto de grãos supercondutores acoplados via junções Josephson. Desta forma o comportamento AT-GT para a linha de irreversibilidade magnética na região de campos magnéticos investigada deve-se a preponderância da dinâmica de fluxo de Josephson.

No capítulo seguinte, o caráter granular da amostra estudada neste trabalho também será reforçado pelos resultados obtidos através das medidas de magnetorresistência.

Capítulo 5

COMPORTAMENTO ELÉTRICO DO SUPERCONDUTOR

$Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

Neste capítulo serão apresentados e discutidos os resultados experimentais obtidos através de medidas de resistividade e magnetorresistência na amostra policristalina sinterizada de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, com o objetivo de caracterizar a transição supercondutora, bem como o comportamento das flutuações termodinâmicas na magnetorresistência.

5.1 COMPORTAMENTO RESISTIVO ($\rho \times T$)

Conforme descrito na seção 3.2.3, foram realizadas medidas de resistividade e magnetorresistência com campos magnéticos entre 0,01 kOe e 10 kOe, e com corrente elétrica aplicada padrão de 1 mA.

A figura 5.1 apresenta a transição resistiva em campo nulo e mediante a aplicação de diferentes valores de campo magnético. Nota-se que a aplicação de campo magnético tende a alargar a transição resistiva, o que implica na redução da temperatura de transição para o estado supercondutor conforme o aumento deste campo, ocasionando uma degradação da transição supercondutora. É possível observar na medida de resistividade em campo nulo que a largura da transição é de aproximadamente 4K, enquanto que para a medida realizada com o campo aplicado $H = 10$ kOe a largura da transição é superior a 20 K.

Pode-se ainda observar da figura 5.1 uma anomalia na transição resistiva, ou seja, aproximadamente na metade da transição há uma mudança na inclinação da curva, a qual se intensifica com o aumento do campo magnético, sendo atribuída a uma dupla transição. Este

comportamento afeta sensivelmente a derivada da resistividade em função da temperatura, conforme discutiremos na seção 5.3.

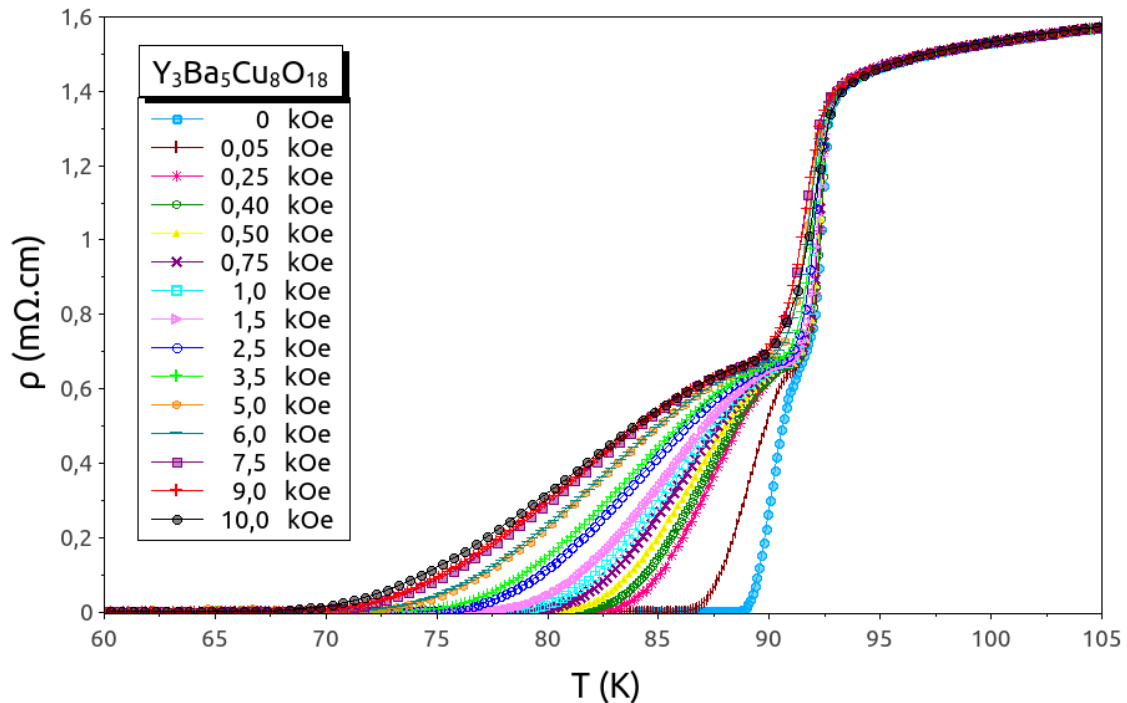


Figura 5.1 – Transição supercondutora para a amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, com aplicação de diferentes valores de campo magnético.

5.2 DETERMINAÇÃO DA RESISTIVIDADE NULA

Conforme discutido nas seções 2.1.2 e 2.1.3.3, os supercondutores de alta temperatura crítica, em especial os sistemas granulares, como o utilizado neste trabalho, apresentam uma transição resistiva que ocorre em duas etapas. Na região paracoerente, apenas os grãos são supercondutores, resultando em uma resistividade não nula, porém, há uma região denominada de coerente, em que a amostra apresenta resistividade total nula à passagem de corrente elétrica, a qual define a temperatura T_{C0} . De acordo com o gráfico principal da figura 5.2, a temperatura de resistividade nula T_{C0} é obtida através do primeiro ponto em que a resistividade elétrica é igual a zero. No *inset* da figura 5.2 está representada a mesma transição resistiva, porém num intervalo maior de temperatura. Para cada valor de campo magnético aplicado está associado um novo valor de

temperatura T_{C0} , de modo que para diferentes intensidades de campo magnético é possível obter um conjunto de pontos experimentais que define a linha de T_{C0} . Os valores encontrados para a temperatura de resistividade nula estão relacionados na tabela 5.1.

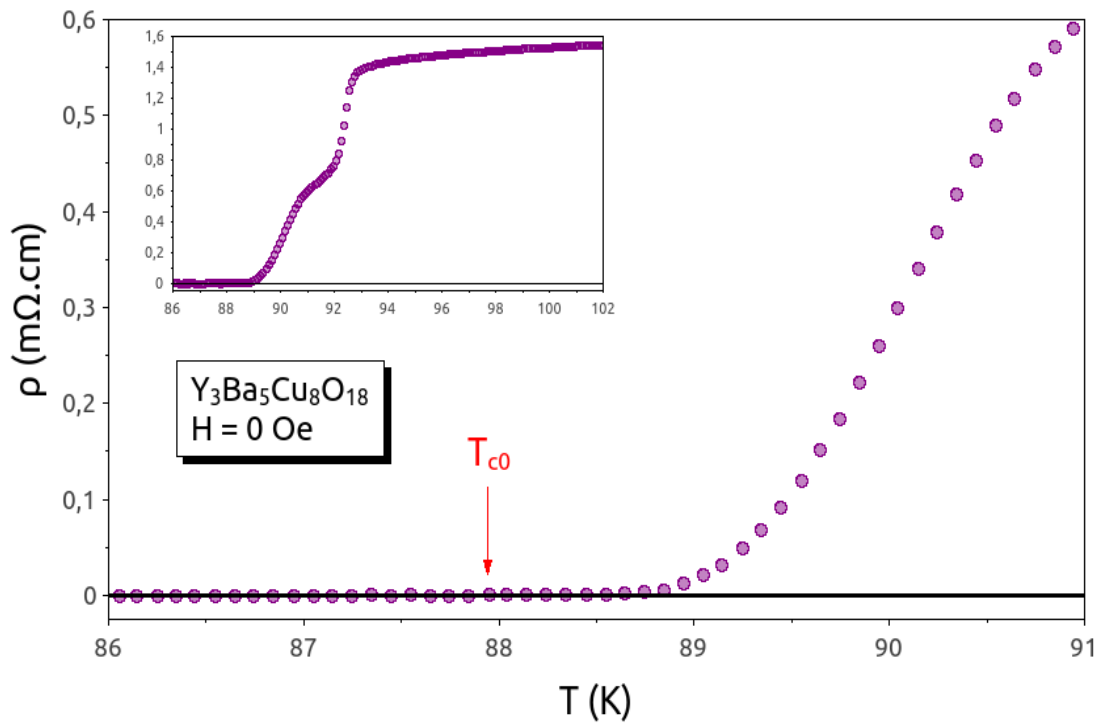


Figura 5.2 – Detalhe da transição resistiva da amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ sem campo magnético aplicado, com o valor de T_{C0} indicado. No inset a mesma transição resistiva, porém num intervalo maior de temperaturas.

H (kOe)	T_{C0} (K)	H (kOe)	T_{C0} (K)
0	87,94	2,5	74,36
0,05	85,34	3,5	72,66
0,25	81,26	5,0	70,62
0,4	80,43	6,0	69,66
0,5	79,69	7,5	68,63
0,75	78,29	9,0	68,05
1,0	77,60	10,0	66,82
1,5	76,63		

Tabela 5.1 – Temperatura de resistividade nula T_{C0} (H) para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ investigada neste trabalho.

5.2.1 Correlação entre a resistividade nula e a irreversibilidade magnética

Na figura 5.3 apresentamos a correlação entre a resistividade nula e a irreversibilidade magnética para a nossa amostra de Y358, através da linha de T_{C0} obtida com os resultados da tabela 5.1, e da linha de irreversibilidade magnética apresentada na seção 4.1.3.2. O conjunto de pontos abertos à esquerda descreve a linha de resistividade nula T_{C0} , com suas respectivas barras de erro, e as curvas contínuas à direita representam os ajustes AT e GT que descrevem a linha de irreversibilidade magnética.

Observa-se da figura 5.3 que a linha de T_{C0} encontra-se bem abaixo da linha de irreversibilidade magnética. Este comportamento é fisicamente esperado devido a resistividade elétrica e a irreversibilidade magnética não dependerem das mesmas condições na amostra. Enquanto a resistividade nula é obtida quando uma ordem de longo alcance é estabelecida e a corrente elétrica flui sem que ocorra dissipação, a irreversibilidade ocorre devido à forte restrição ao movimento dos vórtices no supercondutor, o qual passa a apresentar resistência nula à passagem de corrente elétrica. Acima da linha de irreversibilidade magnética os vórtices movem-se livremente pela amostra ocasionando uma forte resistência a passagem de corrente elétrica, porém na medida em que a temperatura diminui e $T \approx T_{irr}$, a mobilidade dos vórtices é fortemente reduzida dando início ao acoplamento entre os grãos por junções Josephson. Quando T se aproxima de T_{C0} , aumenta o acoplamento entre os grãos até que se formem cadeias infinitas de grãos acoplados obtendo-se desta forma uma ordem de longo alcance e conseqüentemente condutividade infinita.

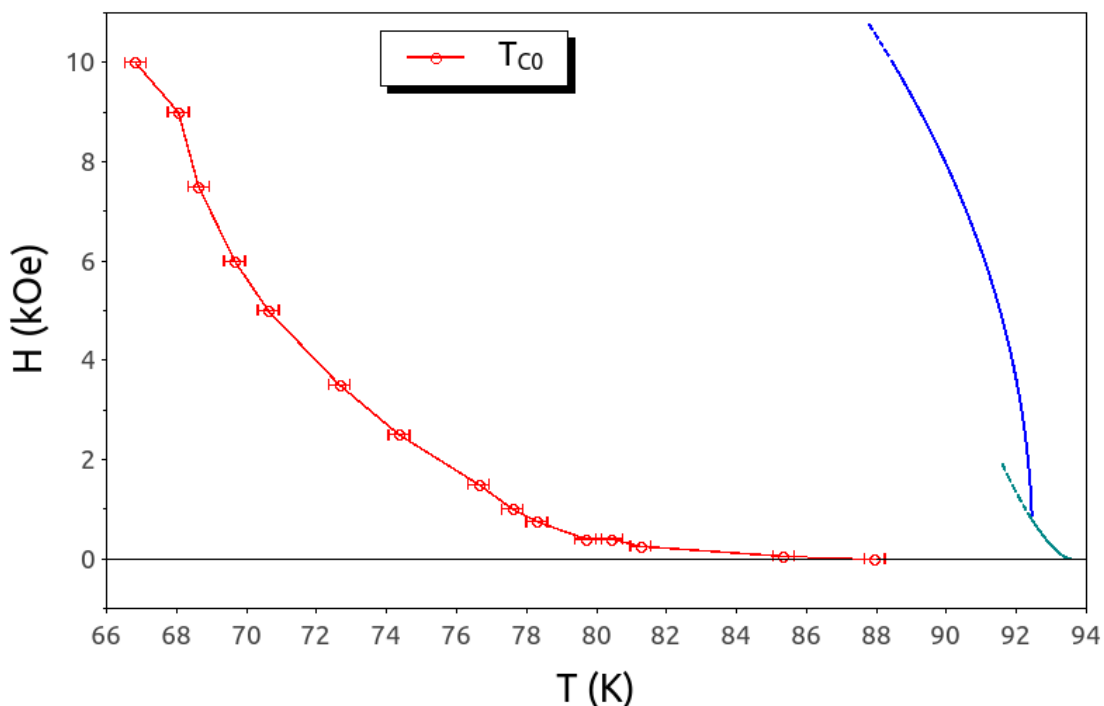


Figura 5.3 – Correlação entre a resistividade nula e a irreversibilidade magnética, onde os pontos abertos à esquerda representam os valores de T_{c0} obtidos das medidas de magnetorresistência e as linhas contínuas à direita se referem ao ajuste teórico pelo modelo vidro supercondutor, apresentado e discutido na seção 4.1.3.2.

Nota-se ainda da figura acima que, com o aumento da intensidade do campo aplicado, a separação entre a linha resistividade nula e a linha de irreversibilidade magnética aumenta consideravelmente, evidenciando o caráter fortemente granular da amostra.

5.3 DERIVADA DA RESISTIVIDADE ELÉTRICA ($d\rho \times dT$)

A partir das medidas de resistividade elétrica e magnetorresistência foram obtidas as derivadas da resistividade em função da temperatura ($d\rho/dT$) para a amostra investigada.

No gráfico principal da figura 5.4 está representada a derivada da resistividade em função da temperatura para campo nulo, enquanto que no *inset* é apresentada a curva de resistividade elétrica associada. Nota-se que a curva de $d\rho/dT$ tem uma estrutura constituída por dois picos, o que indica que a transição resistiva ocorre em duas etapas. Na primeira etapa, a qual é definida pelo máximo centrado na temperatura T_p , indicado na figura, ocorre a transição de pareamento onde se estabelece

o estado supercondutor dentro dos grãos. Na segunda etapa corre a transição de coerência, a qual se estabelece através da ativação das ligações fracas entre os grãos. A partir deste momento, definido pela temperatura T_0 , tem-se a supercondutividade estabelecida em toda a amostra, a nível intra e intergranular.

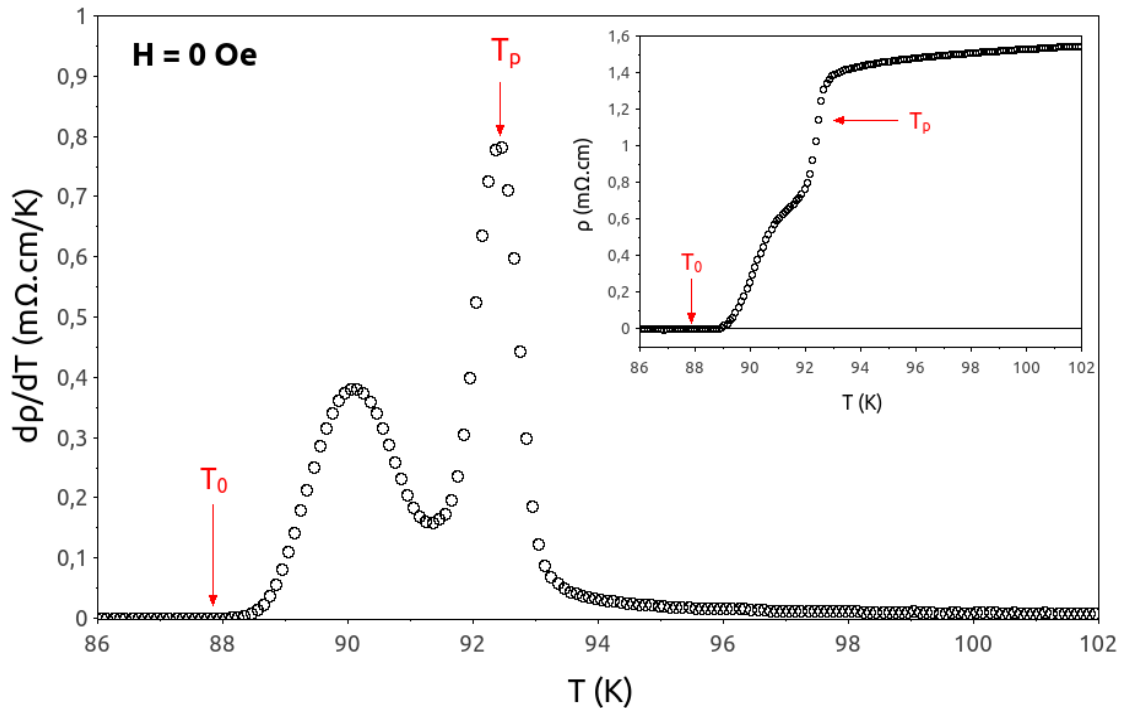


Figura 5.4 – Derivada da resistividade em função da temperatura (dr/dT), com a indicação da temperatura de pareamento (T_p) e da temperatura de resistividade nula (T_0). No inset a transição resistiva normal-supercondutor $r(T)$.

Na figura 5.5 são apresentadas as curvas de dp/dT para todos os valores de campo magnético aplicado. No *inset* de cada quadro estão representados individualmente os campos (a) $H = 0$ Oe, (b) $H = 3,5$ kOe e (c) $H = 10$ kOe, com a indicação das temperaturas T_p e T_0 . É possível observar que com o aumento do campo aplicado ocorre um arredondamento da curva de dp/dT , porém sem um deslocamento significativo na temperatura T_p , a qual coincide aproximadamente com a temperatura crítica de pareamento, T_c . Já o máximo secundário, o qual está relacionado a transição intergranular, sofre um deslocamento de sua posição para temperaturas inferiores à medida que o campo magnético aumenta. Este deslocamento afeta diretamente a temperatura em que dp/dT se anula, T_0 , a qual decresce significativamente, coincidindo, para todos os valores de campo magnético, com a temperatura T_{c0} indicada na tabela 5.1. Os valores de T_p e de T_0 para os diferentes valores de campos magnéticos aplicados nas medidas de magnetorresistência estão relacionados na tabela 5.3.

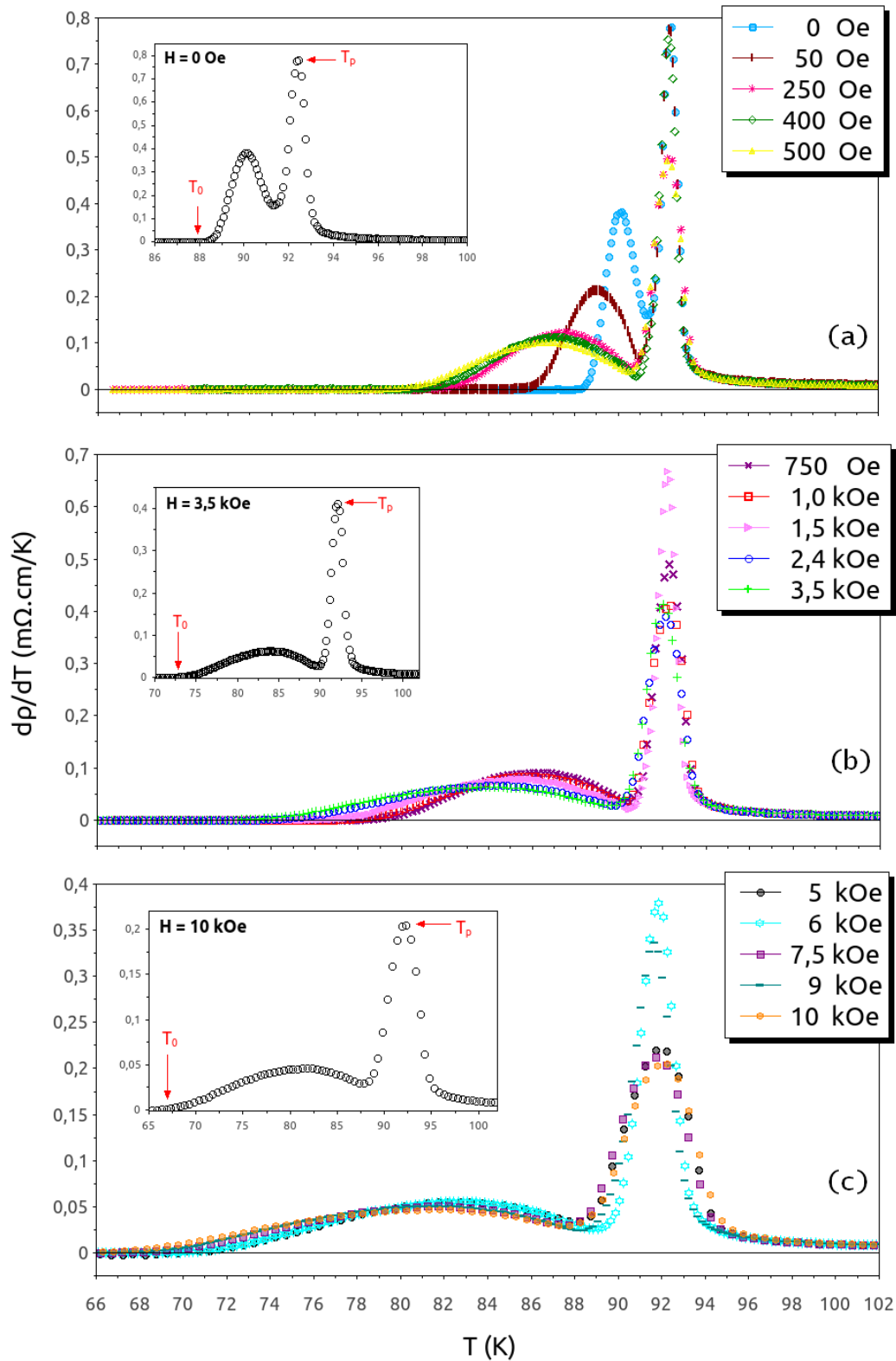


Figura 5.5 – Derivada da resistividade em função da temperatura, dp/dT , para cada um dos valores de campo magnético aplicado. No inset da figura, a representação individual de dp/dT para os campos magnéticos de (a) 0 kOe, (b) 3,5 kOe e (c) 10 kOe, com indicação das temperaturas T_p e T_0 .

H (kOe)	T_p (K)	T_0 (K)	H (kOe)	T_p (K)	T_0 (K)
0	92,44	87,94	2,5	92,10	74,36
0,05	92,35	85,34	3,5	92,05	72,66
0,25	92,28	81,26	5,0	91,72	70,62
0,4	92,32	80,43	6,0	91,85	69,66
0,5	92,29	79,69	7,5	91,72	68,63
0,75	92,28	78,29	9,0	91,65	68,05
1,0	92,36	77,60	10,0	92,25	66,82
1,5	92,23	76,63	Média	92,13 ± 0,07	--

Tabela 5.2 – Valores de T_p e T_0 determinados a partir das curvas da derivada da resistividade em função da temperatura, dp/dT , para cada valor de campo magnético aplicado.

5.4 FLUTUAÇÕES TERMODINÂMICAS NA CONDUTIVIDADE ELÉTRICA DO SISTEMA $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$

Nesta seção serão apresentados e discutidos os efeitos das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica do sistema supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$. Inicialmente será apresentado o método utilizado para tratar os dados experimentais, e a seguir será apresentado e discutido o comportamento dos regimes de flutuações nas regiões paracondutora e paracoerente.

5.4.1 Método de análise

A análise dos resultados para os efeitos das flutuações térmicas sobre a condutividade é realizado assumindo-se que o excesso de condutividade, também conhecido como paracondutividade, é dado por:

$$\Delta\sigma = \sigma - \sigma_R, \quad (5.1)$$

onde $\sigma = 1/\rho$ é a condutividade medida e $\sigma_R = 1/\rho_R$ é a condutividade regular determinada a partir da extrapolação do comportamento linear apresentado pela resistividade em altas temperaturas.

A figura 5.6 mostra a extrapolação do comportamento linear da resistividade de alta temperatura obtida para a medida realizada sem aplicação de campo magnético.

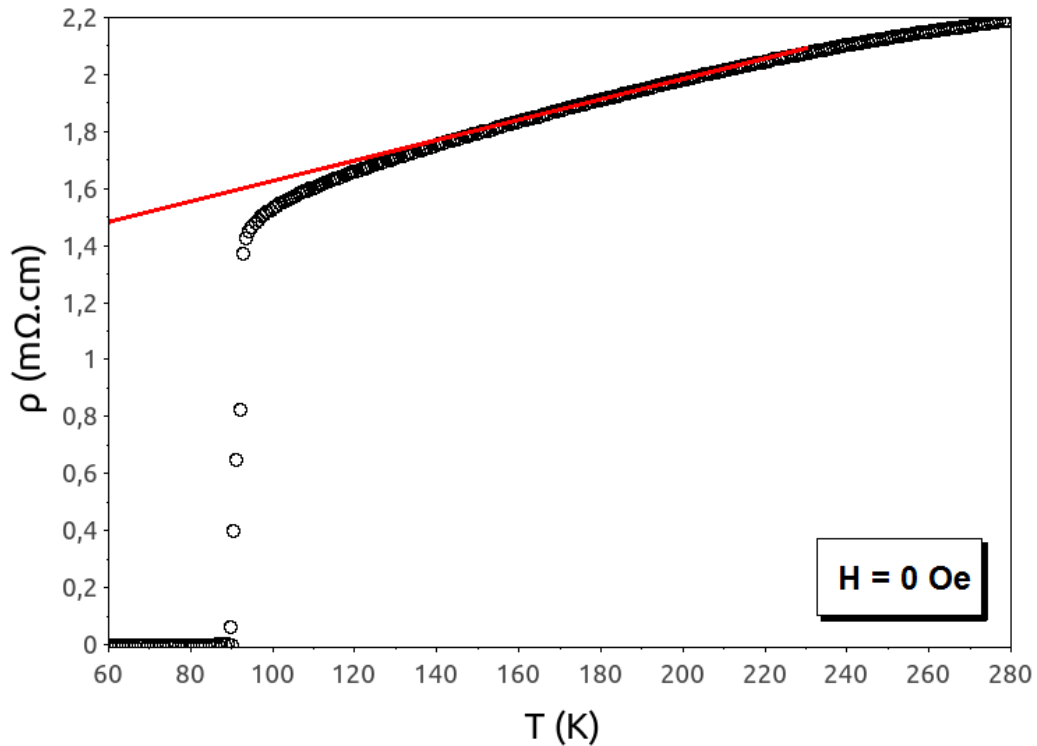


Figura 5.6 – Extrapolação do comportamento linear de alta temperatura da resistividade do Y358 em campo magnético nulo.

5.4.1.1 Determinação da condutividade regular

Uma vez que a resistividade varia linearmente com a temperatura, pode-se extrapolar a resistividade regular como uma função de T ,

$$\rho_R = \rho_0 + \frac{d(\rho_R)}{dT} T, \quad (5.2)$$

sendo ρ_0 e $d(\rho_R)/dT$ constantes obtidas através do ajuste. O intervalo de temperatura do ajuste linear, e as constantes obtidas com o ajuste dado pela equação (5.2), estão listados na tabela 5.3.

Intervalo do ajuste (K)	ρ_0 (m Ω .cm)	$d\rho_R/dT$ (m Ω .cm/K)
166 – 204	1,27 ($\pm 1,71 \times 10^{-3}$)	$3,59 \times 10^{-3}$ ($\pm 9,23 \times 10^{-6}$)

Tabela 5.3 – Valores das constantes que descrevem o comportamento linear de alta temperatura da resistividade do Y358, de acordo com a equação 5.2.

5.4.1.2 Obtenção da contribuição das flutuações à condutividade

De acordo com a proposta de Aslamazov-Larkin (AL), discutida na seção 2.1.3.2, a contribuição das flutuações à condutividade diverge segundo uma lei de potência do tipo:

$$\Delta\sigma = A\varepsilon^{-\lambda}, \quad (5.3)$$

onde $\varepsilon = (T - T_C)/T_C$ é a temperatura reduzida, λ é o expoente crítico e “A” é uma constante. Em lugar de se utilizar diretamente a equação (5.3) para a análise das flutuações, determina-se a derivada logarítmica da condutividade em relação a temperatura. Assim, a derivada logarítmica do excesso de condutividade é definida como:

$$\chi_\sigma \equiv -\frac{d}{dT} \ln(\Delta\sigma) = \frac{1}{\Delta\sigma} \frac{d(\Delta\sigma)}{dT}. \quad (5.4)$$

Usando a equação (5.3), obtém-se que o inverso da derivada logarítmica do excesso de condutividade é dado por:

$$\frac{1}{\chi_\sigma} = \frac{1}{\lambda} (T - T_C). \quad (5.5)$$

Logo, a identificação de um comportamento linear em uma curva de $\chi^{-1}(T,H)$ permite a determinação simultânea da temperatura crítica $T_C(H)$ do regime de flutuações e o expoente crítico λ correspondente.

Utilizaremos também este conceito de derivada logarítmica para analisarmos os resultados de condutividade elétrica sob aplicação de diversos campos magnéticos na região abaixo da temperatura de pareamento T_p . Neste caso, denotamos o excesso de condutividade através da lei de potência da equação (5.3), onde o expoente crítico associado ao regime precursor à transição de

coerência é S_0 e a temperatura reduzida é definida como:

$$\varepsilon_0 = (T - T_{C0}) / T_{C0}, \quad (5.6)$$

sendo T_{C0} a temperatura crítica da transição paracoerente-coerente.

Na figura 5.7 está exemplificado o método de análise empregado, tomando por base resultados obtidos com $H = 0$ Oe. O inverso da inclinação da reta fornece o expoente λ , enquanto que a interseção da reta com o eixo das abscissas fornece o valor de T_C relacionado a cada um dos regimes de flutuações identificados.

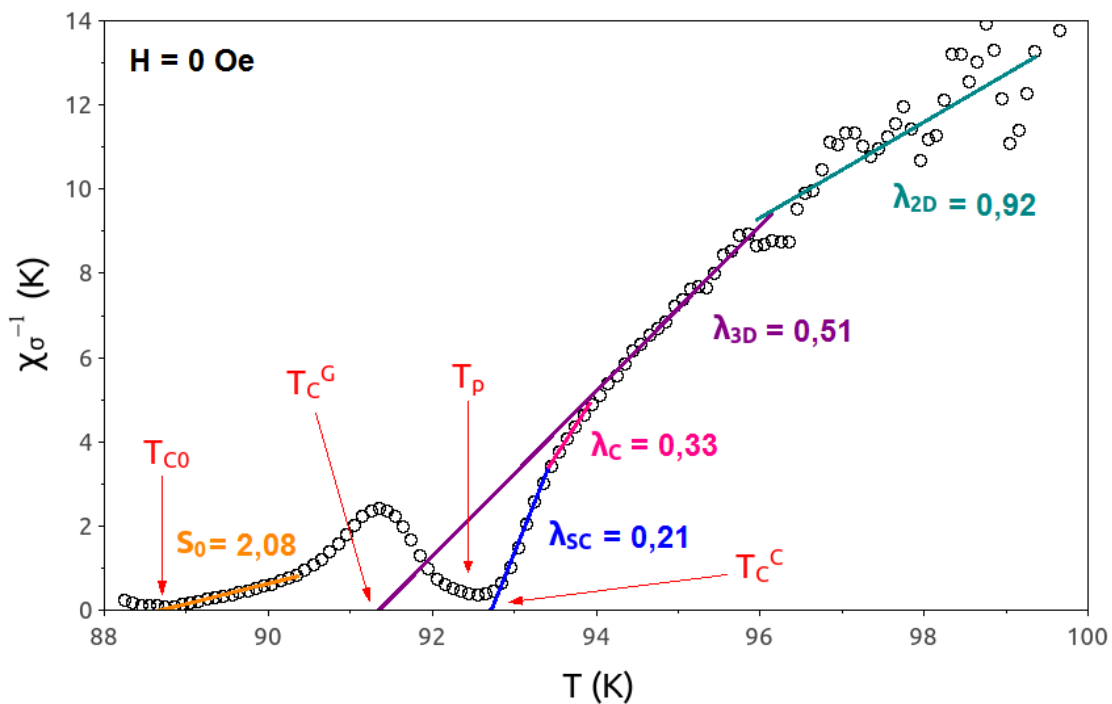


Figura 5.7 – Curva representativa de χ_σ^{-1} como função da temperatura para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, sem campo magnético aplicado. Os segmentos de reta correspondem aos ajustes realizados com a equação (5.5). São identificadas as temperaturas relacionadas aos diferentes regimes de flutuações identificados, onde T_{C0} e T_C^c denotam, respectivamente, as temperaturas críticas relacionadas aos regimes de aproximação ao estado de resistência nula e crítico. T_C^G é a temperatura crítica de campo médio, obtida a partir da extrapolação do regime Gaussiano 3D, e T_p é a temperatura de pareamento.

Como pode ser observado na figura 5.7, foi possível identificar um único regime de flutuações, indicado por S_0 , para temperaturas em que $T < T_p$, enquanto que em temperaturas superiores a T_p foi

possível a identificação de quatro regimes de flutuações, cujos expoentes estão indicados por λ_{SC} , λ_C , λ_{3D} e λ_{2D} .

5.4.2 Flutuações termodinâmicas na fase normal

5.4.2.1 Flutuações Gaussianas

Em temperaturas mais afastadas de T_p os efeitos de flutuações gaussianas na condutividade elétrica predominam. Os regimes identificados nesta região de temperatura foram interpretados em termos das previsões de Aslamazov-Larkin ^[34], onde os expoentes da paracondutividade, denominados expoentes Gaussianos, dependem somente da dimensão efetiva d do espaço onde as flutuações se definem, de acordo com a equação:

$$\lambda = 2 - d/2 . \quad (5.7)$$

Sendo assim, um expoente $\lambda = 1,5$ corresponde ao regime de flutuações unidimensionais (1D), enquanto que expoentes com valores $\lambda = 1,0$ e $\lambda = 0,5$ correspondem, respectivamente, a regimes de flutuações bidimensionais (2D) e tridimensionais (3D).

Na figura 5.8 estão representadas as curvas de χ_σ^{-1} versus temperatura para alguns dos valores de campo magnético aplicado. Os resultados obtidos, através dos ajustes lineares para todos os valores de campo magnético aplicado, bem como o intervalo de validade de cada regime, estão apresentados na tabela 5.4. O valor da temperatura crítica obtida da extrapolação do regime Gaussiano tridimensional, o qual denota a temperatura crítica de campo médio, T_C^G , também encontra-se relacionado na tabela 5.4 para cada um dos valores de campo magnético aplicados.

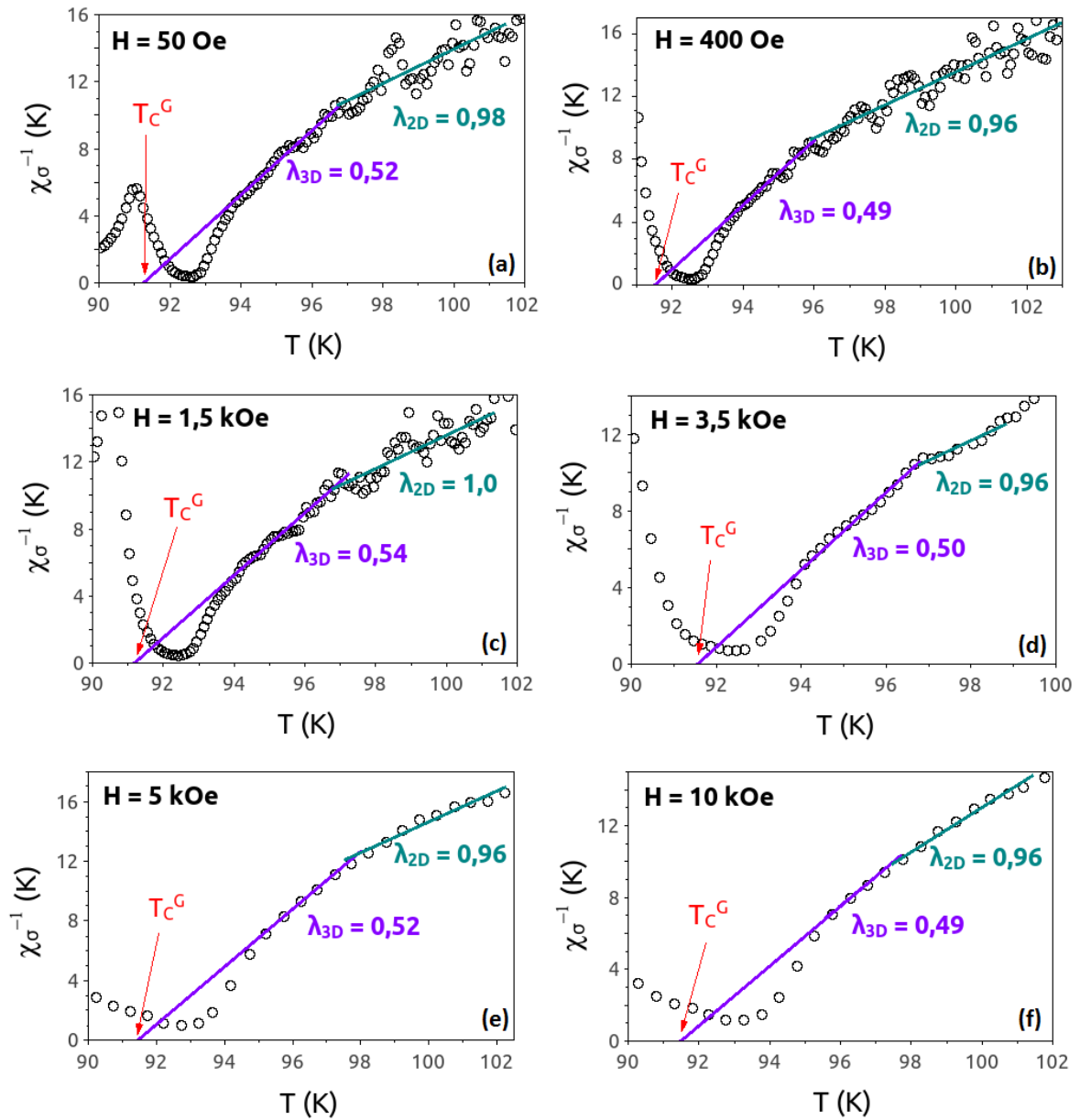


Figura 5.8 – Curvas representativas de χ_{σ}^{-1} em função da temperatura para o Y358, para campos magnéticos aplicados de (a) 50 Oe, (b) 400 Oe, (c) 1,5 kOe, (d) 3,5 kOe, (e) 5 kOe e (f) 10 kOe. Os segmentos de reta correspondem aos ajustes realizados com a equação (5.5).

H (kOe)	λ_{3D} $0,0282 \leq \varepsilon \leq 0,0662$	$\lambda_{3D \leftrightarrow 2D}$ $0,0464 \leq \varepsilon \leq 0,0699$	λ_{2D} $0,0482 \leq \varepsilon \leq 0,1188$	T_C^G (K)
0	0,51	--	0,92	91,35
0,05	0,52	--	0,98	91,26
0,25	0,51	0,72	1,00	91,25
0,4	0,49	--	0,96	91,52
0,5	0,54	0,80	0,99	91,11
0,75	0,51	--	0,97	91,34
1,0	0,51	0,70	0,98	91,37
1,5	0,54	--	1,00	91,19
2,5	0,51	0,83	1,01	91,33
3,5	0,50	--	0,96	91,56
5,0	0,52	--	0,97	91,46
6,0	0,51	0,76	1,01	91,41
7,5	0,52	0,71	0,99	91,48
9,0	0,52	--	0,98	91,20
10,0	0,49	--	0,96	91,61
Média	0,51 ($\pm 0,01$)	0,74 ($\pm 0,05$)	0,98 ($\pm 0,02$)	91,36 ($\pm 0,04$)

Tabela 5.4 – Valores dos expoentes representativos das flutuações gaussianas na amostra de Y358 investigada neste trabalho. Os intervalos de validade de cada regime são indicados em termos das temperaturas reduzidas $\varepsilon = (T - T_C^G)/T_C^G$, onde T_C^G é determinada a partir da extrapolação do regime gaussiano 3D obtido para cada campo magnético aplicado.

A partir da análise dos dados podemos observar que foram identificados dois regimes em lei de potência dominados por flutuações gaussianas, que são flutuações não correlacionadas e correspondem às regiões definidas pelos expoentes $\lambda_{3D} = 0,51 (\pm 0,01)$ e $\lambda_{2D} = 0,98 (\pm 0,02)$, os quais denotam a existência de flutuações gaussianas tri e bidimensionais, respectivamente. Para o expoente $\lambda_{2D \leftrightarrow 3D} = 0,74 (\pm 0,05)$ não é possível a obtenção de um valor inteiro para a dimensionalidade. Porém, de acordo com a discussão realizada na seção 2.1.3.2, pode-se conciliar este resultado com a teoria de campo médio considerando que as flutuações ocorram em um espaço com topologia fractal. Desta forma, de acordo com a equação 2.14, o expoente neste caso é dado por:

$$\lambda = 2 - \bar{d}/2, \quad (5.8)$$

onde \bar{d} é a dimensão fractal, podendo ser interpretado como resultado do fraco acoplamento entre os planos supercondutores. Sendo assim, obtém-se uma dimensão $\bar{d} = 2,5$ para o expoente $\lambda_{2D \leftrightarrow 3D} = 0,74$ o qual corresponde a um *crossover* entre as dimensões 2D e 3D.

Este comportamento encontrado em nossas análises para as flutuações Gaussianas são consistentes com observações anteriores em amostras policristalinas de Y358 ^[17,66,67]. Os resultados apresentados na tabela 5.4 revelam que os regimes dominados por flutuações gaussianas bi e tridimensionais se mantêm estáveis frente a aplicação de campos magnéticos a de até 10 kOe.

Nossos dados ainda nos permitem estimar, a partir do excesso de condutividade, o comprimento de coerência, $\xi(0)$, e o espaçamento entre os planos supercondutores, d . Desta forma, de acordo com as equações 2.9 e 2.10, temos:

$$\xi(0) = \frac{e^2}{32 \hbar \Delta \sigma_{AL}} \varepsilon^{-\lambda_{3D}}, \quad (5.9)$$

$$d = \frac{e^2}{16 \hbar \Delta \sigma_{AL}} \varepsilon^{-\lambda_{2D}}, \quad (5.10)$$

Os valores de $\xi(0)$ e d , bem como os valores das amplitudes Gaussianas A_{3D} e A_{2D} , estão apresentados na tabela 5.5. Podemos observar que tanto o comprimento de coerência, o espaçamento entre os planos supercondutores, bem como as amplitudes relativas aos regimes Gaussianos, não apresentam uma variação sistemática com a aplicação de campo magnético até o limite empregado de 10 kOe.

H (kOe)	λ_{3D}		λ_{2D}	
	A_{3D} (m Ω .cm) ⁻¹	$\xi(0)$ (Å)	A_{2D} (m Ω .cm) ⁻¹	d (nm)
0	0,0118	64,26	0,0039	38,49
0,05	0,0116	65,22	0,0037	41,26
0,25	0,0119	63,59	0,0035	43,21
0,4	0,0121	62,84	0,0037	41,14
0,5	0,0111	68,65	0,0036	41,91
0,75	0,0118	64,49	0,0039	38,98
1,0	0,0117	65,13	0,0037	40,74
1,5	0,0108	70,16	0,0035	43,67
2,5	0,0117	64,65	0,0031	48,23
3,5	0,0118	64,18	0,0034	44,58
5,0	0,0116	65,46	0,0030	50,61
6,0	0,0114	66,76	0,0033	45,37
7,5	0,0111	68,29	0,0036	42,49
9,0	0,0115	66,19	0,0032	47,98
10,0	0,0121	62,83	0,0036	41,59
Média	0,0116 (± 0,0004)	65,51 (± 0,55)	0,0035 (± 0,0003)	43,35 (± 0,89)

Tabela 5.5 – Relação dos valores das amplitudes Gaussianas, do comprimento de coerência $\xi(0)$, e do espaçamento entre os planos supercondutores d , para os diferentes valores de campo magnético aplicado.

O valor médio encontrado para o comprimento de coerência, $\xi(0) = 65,51 (\pm 0,55)$ Å, e para o espaçamento entre os planos supercondutores, $d = 43,35 (\pm 0,89)$ Å, encontram-se bem acima do valor relatado por Esmaili e col. [66], onde $\xi_c(0) = 4,58$ Å e $d = 29,66$ Å. Esta diferença está associada à natureza extremamente granular da nossa amostra, a qual introduz uma incerteza no fator geométrico. Em geral, este resultado é atribuído a um fator multiplicativo, denominado fator-C, o qual é adimensional [19,68,69]. Este fator, puramente geométrico, reflete os efeitos de desordem no quociente L/A utilizado para o cálculo da condutividade, onde L é a distância entre os contatos elétricos relativos à diferença de potencial, e A é a área da seção transversal da amostra.

Consequentemente, todas as quantidades dependentes do valor absoluto da condutividade, como o comprimento de coerência, o espaçamento entre os planos supercondutores, e as amplitudes críticas, diferem do valor intrínseco por um fator multiplicativo. Como discutido anteriormente, os

valores de $\xi(0)$ e d , bem como os valores das amplitudes Gaussianas A_{3D} e A_{2D} , foram determinados com base no modelo AL, sendo assim, devido à natureza granular da amostra em questão, a expressão a ser ajustada aos dados experimentais deve conter o fator C de forma que:

$$\Delta\sigma = \frac{\Delta\sigma_{AL}}{C}. \quad (5.11)$$

Para estimarmos o valor do fator-C seria necessário conhecer o valor intrínseco do comprimento de coerência obtido para um monocristal de Y358, porém não encontramos na literatura existente este resultado. Por esta razão, os valores apresentados na tabela 5.5 representam valores não-renormalizados de $\xi(0)$, d , A_{3D} e A_{2D} .

5.4.2.2 Flutuações Críticas

Analisando a figura 5.9, notamos que com a aproximação em direção à temperatura de pareamento, T_p , a qual é indicada na figura 5.7 para o campo de 0 Oe e relacionada na tabela 5.2 para os demais valores de campo aplicados, observa-se nitidamente uma mudança no comportamento do regime de flutuações, ou seja, o regime deixa de ser descrito por um comportamento Gaussiano e passa a apresentar um comportamento genuinamente crítico representado pelos expoentes λ_{SC} e λ_C .

Em temperaturas logo acima de T_p , pode-se identificar o regime de flutuação genuinamente crítico caracterizado pelo expoente $\lambda_{SC} = 0,19 (\pm 0,03)$. Estes pequenos valores para o expoente do λ_{SC} não são previstos por nenhuma teoria de flutuações críticas, assim, a interpretação para esse regime não é clara. Uma hipótese proposta por Costa e col.^[70], sugere que este regime, denominado de supercrítico, possa corresponder a um regime precursor de uma transição fracamente de primeira ordem. Este possível caráter fracamente de primeira ordem da transição supercondutora foi discutido teoricamente como sendo uma consequência das flutuações do campo eletromagnético^[71].

Através dos dados apresentados na tabela 5.6 notamos que o regime de flutuações genuinamente críticas, caracterizado pelo expoente λ_{SC} , se mantêm oscilando em torno de um valor médio até o campo magnético aplicado de 2,5 kOe, sendo que acima deste campo o expoente λ_{SC} é suprimido.

Acima do regime super crítico observa-se ainda um outro regime de flutuações genuinamente críticas, o qual se manteve estável frente a aplicação de campo magnético e persistiu até o limite

empregado de 10 kOe. Este regime é previsto pelo modelo 3D-XY, o qual pressupõe que o parâmetro de ordem GL possui duas componentes. O valor médio que obtivemos foi $\lambda_c = 0,33$ ($\pm 0,01$), o qual corresponde ao expoente previsto por Lobb^[39] e é consistente com outros trabalhos existentes na literatura para o Y358^[17,66,67].

A temperatura de transição relacionada aos regimes críticos, T_c^c , foi obtida da extrapolação do regime λ_{sc} para os valores de campo magnético entre 0 e 2,5 kOe. Através da extrapolação do regime λ_c foram obtidos os valores de T_c^c para campos superiores a 2,5 kOe. Assim sendo, e considerando todo o intervalo de campos magnéticos aplicados, o valor médio obtido para T_c^c foi 92,87 K.

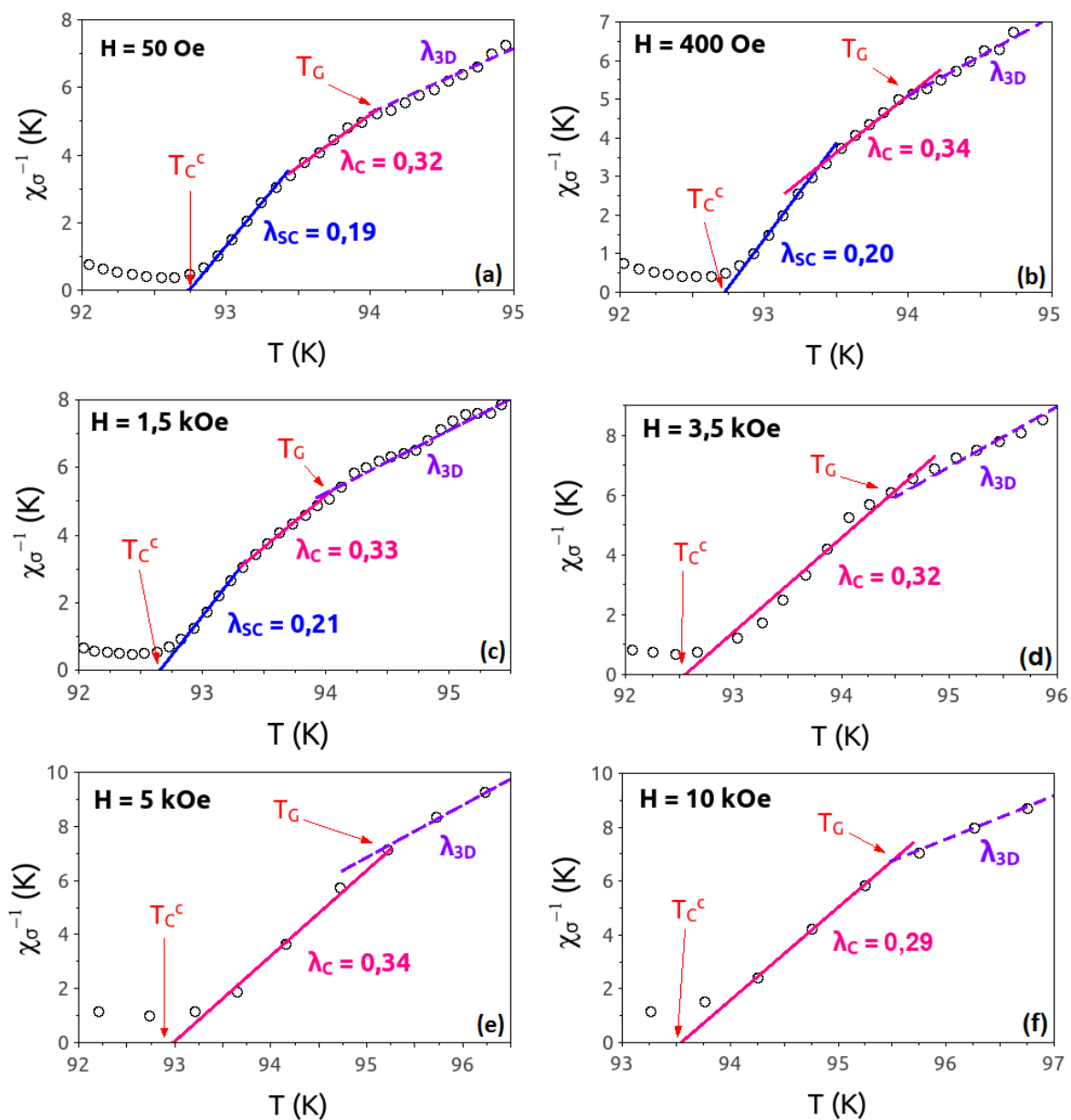


Figura 5.9 – Comportamento dos regimes críticos observados para a amostra de Y358 com campos magnéticos aplicados de (a) 50 Oe, (b) 400 Oe, (c) 1,5 kOe, (d) 3,5 kOe, (e) 5 kOe e (f) 10 kOe. O crossover do comportamento Gaussiano para o comportamento crítico ocorre à temperatura T_G .

H (kOe)	λ_{sc} $0,0011 \leq \varepsilon \leq 0,0089$	λ_c $0,0053 \leq \varepsilon \leq 0,0213$	T_c^c (K)
0	0,21	0,33	92,72
0,05	0,19	0,32	92,75
0,25	0,18	0,35	92,98
0,4	0,20	0,34	92,75
0,5	0,20	0,33	92,92
0,75	0,19	0,33	92,97
1,0	0,17	0,33	93,08
1,5	0,21	0,33	92,66
2,5	0,20	0,33	92,96
3,5	--	0,32	92,55
5,0	--	0,32	92,98
6,0	--	0,31	92,44
7,5	--	0,33	92,89
9,0	--	0,33	92,28
10,0	--	0,29	93,54
Média	0,19 ($\pm 0,03$)	0,33 ($\pm 0,01$)	92,83 ($\pm 0,07$)

Tabela 5.6 – Valores dos expoentes relativos às flutuações críticas na amostra de Y358. Os intervalos de validade de cada regime são indicados em termos das temperaturas reduzidas $\varepsilon = (T - T_c^c)/T_c^c$, onde T_c^c é determinado experimentalmente a partir da extrapolação do regime crítico mais próximo a T_p para cada valor de campo magnético aplicado.

Na tabela 5.7 estão relacionados os valores das amplitudes críticas determinados segundo a teoria AL para os regimes de flutuações caracterizados pelos expoentes λ_{sc} e λ_c . Assim como discutido na seção anterior, os valores indicados são não-renormalizados devido ao fato de não podermos estimar um valor para o fator-C. Desta maneira os valores expressos na tabela 5.7 são valores efetivos para a amplitude, onde podemos observar que as amplitudes relativas aos regimes super crítico e crítico não apresentam uma variação sistemática com a aplicação do campo magnético.

Amplitude Crítica				
H (kOe)	λ_{SC}	$A_{SC} (m\Omega.cm)^{-1}$	λ_C	$A_C (m\Omega.cm)^{-1}$
0	0,21	0,0287	0,33	0,0169
0,05	0,19	0,0318	0,32	0,0177
0,25	0,18	0,0311	0,35	0,0151
0,4	0,20	0,0293	0,34	0,0160
0,5	0,20	0,0283	0,33	0,0165
0,75	0,19	0,0292	0,33	0,0160
1,0	0,17	0,0315	0,33	0,0159
1,5	0,21	0,0291	0,33	0,0171
2,5	0,20	0,0281	0,33	0,0169
3,5	--	--	0,32	0,0189
5,0	--	--	0,32	0,0170
6,0	--	--	0,31	0,0195
7,5	--	--	0,33	0,0164
9,0	--	--	0,33	0,0185
10,0	--	--	0,29	0,0181
Média	0,19 (\pm 0,03)	0,0297 (\pm 0,0005)	0,33 (\pm 0,01)	0,0171 (\pm 0,0003)

Tabela 5.7 – Relação das amplitudes críticas obtidas para os diferentes valores de campo magnético aplicado. A amplitude designada por A_{SC} está relacionada ao regime super crítico, λ_{SC} , enquanto que A_C está relacionada ao regime crítico, λ_C .

5.4.2.3 O número de Ginzburg

Com a aproximação à temperatura de pareamento T_p , cujos valores estão relacionados na tabela 5.2, é observada uma mudança no comportamento das flutuações nas vizinhanças de T_G , as quais deixam de ser descritas pela teoria de campo médio, e o excesso de condutividade passa a ser dominado por flutuações genuinamente críticas, ou seja, a temperatura T_G define um *crossover* entre os regimes crítico e Gaussiano. A temperatura de Ginzburg foi determinada pelo ponto de interseção dos segmentos de reta que definem os regimes crítico (λ_C) e Gaussiano tridimensional (λ_{3D}), como indicado na figura 5.9.

Em nossas análises é notório que o regime crítico descrito pelo modelo 3D-XY, bem como o regime de flutuações Gaussianas 3D, se mantiveram estáveis frente a aplicação de campo magnético. Sendo assim, nos é permitido determinar o número de Ginzburg, ϵ_G , como função do campo magnético, tal que:

$$\epsilon_G = \frac{(T_G - T_C^G)}{T_C^G}, \quad (5.12)$$

onde T_G é a temperatura de Ginzburg e T_C^G é a temperatura crítica de campo médio relacionada ao regime Gaussiano tridimensional.

Os valores da temperatura e do número de Ginzburg estão relacionados na tabela 5.8 para todos os valores de campo magnético aplicados. Podemos observar que não há uma evolução destes valores, de modo que ambos oscilam em torno de um valor médio em que $T_G = 94,49 (\pm 0,12)$ e $\epsilon_G = 0,034 (\pm 0,001)$.

H (kOe)	T_G (K)	ϵ_G	H (kOe)	T_G (K)	ϵ_G
0	93,92	0,028	2,5	94,34	0,033
0,05	94,05	0,031	3,5	94,86	0,036
0,25	94,67	0,037	5,0	94,80	0,037
0,4	94,22	0,030	6,0	94,10	0,029
0,5	94,47	0,037	7,5	95,19	0,041
0,75	94,28	0,032	9,0	94,25	0,033
1,0	94,59	0,035	10,0	95,69	0,046
1,5	93,92	0,030	Média	94,49 ($\pm 0,12$)	0,034 \pm (0,001)

Tabela 5.8 – Relação dos valores da temperatura de Ginzburg T_G e do número de Ginzburg, $\epsilon_G = (T_G - T_C^G) / T_C^G$, obtidos para os diferentes valores de campo magnético aplicados à amostra de Y358.

5.4.3 Flutuações termodinâmicas na aproximação da resistência nula

Nesta seção apresentaremos os resultados das flutuações termodinâmicas na condutividade elétrica na região paracoerente, ou seja, nas proximidades de T_{C0} . Nesta região a condutividade é dominada por flutuações na fase do parâmetro de ordem supercondutor nos diferentes grãos.

Os resultados de condutividade elétrica sob aplicação de diferentes intensidades de campo magnético foram estudados na região abaixo da temperatura T_p utilizando-se o método descrito na seção 5.4.1.2. De maneira idêntica a utilizada anteriormente, a determinação de um comportamento linear na curva do inverso da derivada logarítmica da condutividade, $\chi^{-1}(T,H)$, identifica o regime caracterizado pelo expoente crítico S_0 e a respectiva temperatura crítica T_{C0} . Na figura 5.10 é ilustrado o comportamento apresentado pelas flutuações termodinâmicas para algumas das intensidades de campo magnético aplicado. Os valores encontrados para o expoente S_0 , bem como para a temperatura crítica T_{C0} , estão relacionados na tabela 5.9.

Podemos observar claramente que o valor de T_{C0} decresce acentuadamente à medida que o valor do campo magnético aplicado aumenta. O comportamento das flutuações apresentou valores para o expoente crítico que não variaram significativamente, com um valor médio $S_0 = 2,37 (\pm 0,03)$. Esse expoente revela a granularidade do sistema, sendo consistente com a ocorrência de uma transição de fase paracoerente-coerente em T_{C0} e está de acordo com a classe de universalidade 3D-XY com desordem relevante ^[43]. Nota-se ainda da figura 5.10 que o aumento da intensidade do campo magnético aplicado alarga consideravelmente, em temperatura, a extensão do regime de flutuações representado por S_0 .

Utilizando-se do mesmo método empregado nas seções anteriores, foram determinadas as amplitudes efetivas relacionadas ao regime de flutuações nas proximidades de T_{C0} . Os valores para estas amplitudes, identificadas por A_0 , estão relacionados na tabela 5.9. Diferentemente do que ocorreu para os regimes Gaussianos e críticos, a amplitude relacionada ao regime de aproximação ao estado de resistência nula apresentou uma variação sistemática com o campo magnético, sendo que com o aumento da intensidade de campo magnético observa-se um aumento no valor da amplitude A_0 .

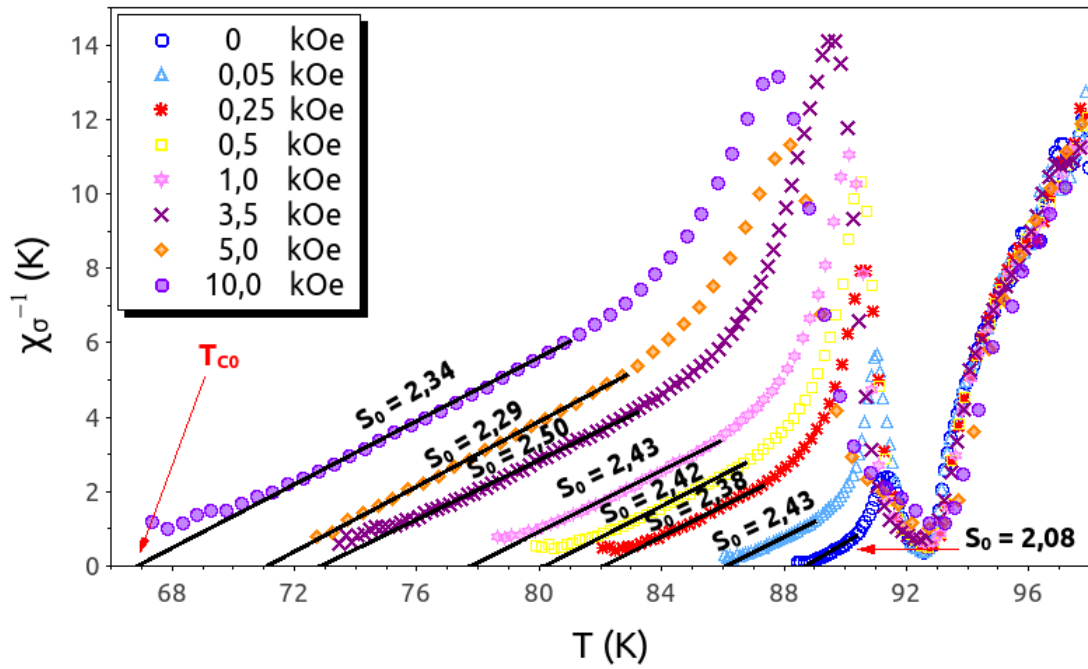


Figura 5.10 – Regimes de aproximação ao estado de resistência nula para a amostra de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ para alguns dos valores de campo magnético aplicado.

H (kOe)	S_0 $0,0018 \leq \epsilon \leq 0,2242$	T_{co} (K)	A_0 ($m\Omega.cm$) ⁻¹	H (kOe)	S_0 $0,0018 \leq \epsilon \leq 0,2242$	T_{co} (K)	A_0 ($m\Omega.cm$) ⁻¹
0	2,08	88,69	0,00048	2,5	2,46	74,07	0,01585
0,05	2,43	86,11	0,00063	3,5	2,50	72,86	0,01799
0,25	2,42	82,09	0,00289	5,0	2,29	71,11	0,03202
0,4	2,42	81,15	0,00386	6,0	2,36	70,50	0,03608
0,5	2,38	80,16	0,00544	7,5	2,32	68,70	0,04255
0,75	2,39	78,88	0,00717	9,0	2,30	67,05	0,05410
1,0	2,43	77,75	0,00844	10,0	2,34	66,97	0,06593
1,5	2,44	76,70	0,01037	Média	2,37 (\pm 0,03)	--	--

Tabela 5.9 – Relação dos valores dos expoentes S_0 , da temperatura T_{co} , e da amplitude A_0 para a amostra na presença de diferentes intensidades de campo magnético aplicado.

5.4.4 Comparação com o sistema $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123)

A análise dos resultados obtidos para os regimes de flutuações supercondutoras na magnetorresistência sugerem comportamentos curiosos e interessantes. Aparentemente são relatados na literatura apenas trabalhos em que o estudo das flutuações termodinâmicas para o supercondutor Y358 é realizado através de medidas de resistividade elétrica sem aplicação de campo magnético ^[17,66] ou com intensidades variadas de corrente elétrica ^[67]. Assim sendo, utilizaremos para comparação com os nossos resultados o supercondutor Y123 submetido à diferentes intensidades de campo magnético. Conforme discutido nos capítulos anteriores, a semelhança entre as estruturas dos sistemas Y123 e Y358 nos permite tal comparação.

Em nossa análise, realizada na região de temperaturas acima da temperatura de pareamento (T_p), foram identificados regimes de flutuações Gaussianas em duas e três dimensões, bem como um regime genuinamente crítico descrito pelo modelo 3D-XY e um regime supercrítico, o qual pode ser interpretado como precursor de uma transição fracamente de primeira ordem. Em geral, esses regimes de flutuações também são identificados no sistema Y123 ^[19,43,69,70], porém, é interessante observar que a faixa de campo magnético aplicado nestes trabalhos está abaixo do limite de 10 kOe por nós utilizado.

Observamos no Y358 um regime supercrítico (λ_{sc}) extremamente robusto frente a aplicação de campos magnéticos até 2,5 kOe, enquanto que nos resultados reportados por Dias ^[19] e Vieira ^[43], para policristais de Y123, este regime persistiu apenas até o limite de 500 Oe. É interessante notar ainda que, em nossas análises, os regimes genuinamente crítico e Gaussiano se mantêm estáveis mesmo em intensidades relativamente elevadas de campo magnético, como $H = 10$ kOe, não apresentando nenhuma tendência de evolução com o aumento do campo magnético aplicado.

Curioso também é o fato do regime de flutuações identificado na região paracoerente apresentar um pequeno valor para o expoente S_0 , em torno de 2,37, sendo que no Y123 este mesmo expoente geralmente situa-se entre 3 e 4 ^[41].

Estes interessantes resultados apresentados pelos regimes de flutuações termodinâmicas necessitam de análises mais detalhadas, as quais fogem do escopo deste trabalho. Medidas de magnetorresistência a campos magnéticos mais intensos e utilizando outras amostras para comparação também poderiam fornecer resultados ainda mais interessantes.

Conclusões

Este trabalho consistiu na síntese de uma amostra policristalina do supercondutor $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ (Y358), a qual foi caracterizada segundo as técnicas de difração de raios-X, microscopia eletrônica de varredura e EDS. Foram realizadas medidas de magnetorresistência e magnetização com o objetivo de investigar as propriedades elétricas e magnéticas.

As principais conclusões a cerca deste trabalho são relatadas, resumidamente, a seguir.

I. Caracterização estrutural

- Utilizando a microscopia eletrônica de varredura, observou-se que a amostra é homogênea e possui um caráter acentuadamente granular. Os grãos, cujos tamanhos variam de 1 à 3 μm , possuem formato irregular.
- A análise de EDS revelou apenas a presença dos elementos químicos desejáveis na composição da amostra, sendo eles ítrio (Y), bário (Ba), cobre (Cu) e oxigênio (O).
- O caráter granular da amostra foi confirmado pela técnica de difração de raios-X, onde observou-se a não existência de uma orientação cristalográfica preferencial. Comparando os difratogramas de raios-X obtidos para a nossa amostra com os existentes na literatura para o sistema Y358, foi possível calcular os parâmetros da célula unitária, cujos valores são consistentes com os já reportados para este sistema e confirmam a estrutura ortorrômbica do composto, sendo eles $a = 3,8878 \text{ \AA}$, $b = 3,8185 \text{ \AA}$ e $c = 31,116 \text{ \AA}$.

II. Caracterização magnética

- Através do estudo do comportamento da magnetização ZFC em função da temperatura observou-se o efeito de blindagem diamagnética, o qual apresentou um enfraquecimento quando foram aplicados campos magnéticos superiores à 500 Oe.

- O comportamento da magnetização ZFC apresentou-se linear com o campo aplicado até cerca de 250 Oe, em temperaturas inferiores a 77 K. Este resultado sugere que, para a nossa amostra policristalina de $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$, $H_{C1}(0)$ seja da ordem de 250 Oe.
- O efeito Meissner apresentou-se bastante dependente do campo magnético aplicado, como esperado para este tipo de material. Acima de 1 kOe a amostra passou a apresentar um enfraquecimento da resposta diamagnética decorrente da penetração do fluxo magnético do seu interior.
- Os valores obtidos para a temperatura de irreversibilidade magnética, $T_{irr}(H)$, nos permitiram determinar a linha de irreversibilidade (LIM), a qual teve seu comportamento interpretado de acordo com o modelo do vidro supercondutor. Na região de mais baixos campos, $H < 1$ kOe, os dados foram ajustados pela lei de potências segundo o modelo Almeida-Thouless (AT), enquanto que para regiões acima deste valor de campo, ou seja $H \geq 1$ kOe, o ajuste seguiu a lei de potências com base no modelo Gabay-Toulouse (GT). Este comportamento AT-GT da linha de irreversibilidade magnética deve-se à dinâmica de fluxo de Josephson, uma vez que nossa amostra é granular e acoplada através de ligações fracas. Porém, é interessante observar que, comparado ao sistema Y123, uma vez que são escassos os resultados para o Y358, o comportamento Gabay-Toulouse descreve de modo satisfatório a linha de irreversibilidade para campos de até 10 kOe, sendo que em geral os valores reportados na literatura para o Y123, usando o modelo GT, encontram-se abaixo deste.

III. Caracterização elétrica

- As medidas de magnetorresistência elétrica apresentaram uma transição resistiva fortemente dependente da intensidade do campo magnético aplicado, uma vez que o aumento deste fez com que a largura da transição aumentasse consideravelmente.
- Os resultados obtidos com a derivada da resistividade em função da temperatura (dp/dT) apresentaram uma estrutura de dois picos, caracterizando uma transição normal-supercondutora em duas etapas. A primeira etapa, em temperatura mais elevada, corresponde à transição de pareamento, ou seja, transição supercondutora dentro dos grãos, enquanto que a segunda etapa registra o estabelecimento de um estado supercondutor com coerência de longo alcance, obtido através da ativação das ligações fracas entre os grãos supercondutores, denominada de transição de coerência. O aumento da intensidade do campo magnético aplicado não influenciou

significativamente a temperatura de pareamento T_p , porém, a temperatura em que $dp/dT=0$ (T_0) foi consideravelmente afetada. A presença de campo magnético provocou um alargamento do pico da derivada centrado em temperaturas menores, fazendo com que a temperatura T_0 fosse deslocada para baixas temperaturas.

➤ Na correlação entre a resistividade nula e o limite irreversível observou-se que a linha obtida das temperaturas de resistividade nula (T_{C0}), se manteve bem abaixo da linha de irreversibilidade magnética, sendo que, com o aumento da intensidade de campo aplicado, a divergência entre ambas aumentou consideravelmente, estando este resultado de acordo com o comportamento de uma amostra com acentuado caráter granular.

➤ Na região paracoerente ($T > T_p$) foram observados efeitos de flutuações termodinâmicas, as quais foram caracterizadas pelos expoentes críticos $\lambda_{2D} = 0,98 (\pm 0,02)$ e $\lambda_{3D} = 0,51 (\pm 0,01)$, que correspondem às flutuações Gaussianas bi e tridimensionais descritas pela teoria de Aslamazov-Larkin. Estes regimes Gaussianos se mantiveram estáveis em toda faixa de campo aplicado ($0 \leq H \leq 10$ kOe). Como consequência desta robustez, a temperatura extrapolada do regime gaussiano tridimensional, T_C^G , permaneceu praticamente invariante frente à aplicação de campo magnético.

➤ À medida em que a temperatura é reduzida, nas regiões imediatas à temperatura de pareamento (T_p), observou-se um regime de flutuações genuinamente críticas caracterizado pelo expoente $\lambda_C = 0,33 (\pm 0,01)$, compatível com o modelo 3D-XY, e um regime supercrítico caracterizado pelo expoente $\lambda_{SC} = 0,19 (\pm 0,03)$, o qual pode ser tratado como precursor de uma transição fracamente de primeira ordem.

➤ A faixa de campos magnéticos aplicados aparentemente não afetou o regime de flutuações genuinamente críticas dado pelo expoente λ_C , pois este se manteve robusto até o campo aplicado de 10 kOe, o que é um valor de campo consideravelmente elevado para observação deste expoente quando comparado com o supercondutor Y123.

➤ A aplicação de campo magnético afetou o regime de flutuações supercrítico (λ_{SC}), embora este tenha permanecido estável até o campo de 2,5 kOe, o que também é um valor de campo consideravelmente elevado para observação deste expoente quando comparado com o supercondutor Y123.

➤ Na região de aproximação ao estado de resistência nula, a identificação do expoente $S_0 \approx 2,37 (\pm 0,03)$ revelou um regime relacionado à granularidade do sistema, conforme o esperado para nossa amostra.

- Foi identificada uma temperatura de crossover (T_G) entre as regiões dominadas por flutuações Gaussianas (λ_{3D}) e genuinamente críticas (λ_C), a qual, devido a robustez destes regimes, aparentemente não apresentou uma evolução em decorrência do campo aplicado.
- Fazendo uso das expressões para as amplitudes críticas relacionadas aos regimes Gaussianos bi e tridimensionais, foram estimados, para cada campo aplicado, os valores do comprimento de coerência em $T = 0$, dado por $\xi(0)$, e o espaçamento d entre os planos supercondutores. Os resultados por nós obtidos, $\xi(0) \approx 65,51 \text{ \AA}$ e $d \approx 43,35 \text{ \AA}$, encontram-se bem acima dos valores reportados na literatura, onde tipicamente $\xi_C(0) = 4,58 \text{ \AA}$ e $d = 29,66 \text{ \AA}$. Esta diferença pode ser atribuída à efeitos de desordem e por um fator de natureza puramente geométrica, denominado fator-C, o qual não foi possível ser estimado neste trabalho.

Referências

- [1] ONNES, H. K. The Superconductivity of Mercury. **Commun. Phys.** Lab. Univ. Leiden, 1911.
- [2] GAVALER, J. R. Superconductivity in Nb-Ge films above 22 K. **Applied Physics Letters**, Woodbury, v. 23, n. 08, p. 480-482, Oct 1973.
- [3] MURER, M. **Processamento, Caracterização e Estudo dos Fenômenos Críticos no Supercondutor (Gd_{1-x}Ce_x)Ba₂Cu₃O_{7-δ}**. Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de concentração Física), UEPG, Ponta Grossa, 2012.
- [4] BEDNORZ, J. G.; MÜLLER, K. A. Possible high T_c superconductivity in the Ba-La-Cu-O system. **Zeitschrift für Physik B**, Berlin, v. 64, n. 2, p. 189-193, 1986.
- [5] WU, Maw-Kuen et al. Superconductivity at 93 K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. **Physical Review Letters**, v. 58, n. 9, p. 908, 1987.
- [6] CAVA, R. J. et al. Bulk superconductivity at 91K in single phase oxygen deficient perovskite Ba₂YCu₃O_{9-δ}. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 58, n. 16, p. 1676-1679, 1987.
- [7] CYROT, M; PAVUNA, D. Introduction to Superconductivity and High-Tc Materials. Continental Press, **World Scientific**, Singapore, 1992.
- [8] JORGENSEN, J. D.; VEAL, B. W. Structural Properties of Oxygen-Deficient YBa₂Cu₃O_{7-δ}. **Physical Review B**, Woodbury, v. 41, n. 4, p. 1863–1877, 1990.
- [9] CAVA, R. J.; HEWAT, A. W. Structural anomalies, oxygen ordering and superconductivity in oxygen deficient Ba₂YCu₃O_x. **Physica C**, Amsterdam, v. 165, n. 5-6, p. 419-433, 1990.
- [10] BENO, M. A., SODERHOLM, L., CAPONE, D. W. et al. Structure of the single-phase high temperature superconductor YBa₂Cu₃O_{7-δ}. **Applied Physics Letters**, Woodbury, v. 51, n. 1, p. 57-59, 1987.

- [11] Wikimedia Commons – <http://commons.wikimedia.org/wiki/File:Ybco.jpg?uselang=pt-br>, (acesso em março de 2013).
- [12] UDOMSAMUTHIRUN, P.; KRUAEHONG, T.; NILKAMJON, T.; RATRENG, S. The New Superconductors of YBaCuO Materials. **J Supercond Nov Magn**, v. 23, p. 1377-1380, 2010.
- [13] ALIABADI, A.; FARSCHI, Y. A.; AKHAVAN, M. A New Y- based HTSC with T_c above 100K. **Physica C**, v. 469, p. 2012-2014, November 2009.
- [14] TAVANA, A.; AKHAVAN, M. How T_c can GO above 100K in the YBCO family, **The European Physical Journal B**, p.1-5, 2009.
- [15] BOLAT, S.; KUTUK, S. Fabrication of the New $Y_3Ba_5Cu_8O_y$ Superconductor Using Melt–Powder–Melt–Growth Method and Comparison with $YBa_2Cu_3O_{7-x}$. **Journal of superconductivity and novel magnetism**, v. 25, n. 4, p. 731-738, 2012.
- [16] KONNE, J. et al. A new stoichiometry of cuprate nanowires. **Superconductor Science and Technology**, v. 25, n. 11, p. 115005, 2012.
- [17] AKDURAN , N. Superconducting Fluctuations in Polycrystalline $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$. **J Low Temp Phys**, v. 168, n. 5-6, p. 323-333, 2012.
- [18] de AZAMBUJA, P. **Processamento e caracterização de compósitos supercondutores $YBa_2Cu_3O_{7.8}/Ag$** . Dissertação (Mestrado em Ciências – Área de concentração Física), UEPG, Ponta Grossa, 2008.
- [19] DIAS, F. T. **Efeito meissner paramagnético e magnetocondutividade em supercondutores de $YBa_2Cu_3O_{7.8}$ texturizado**. Tese (Doutorado em ciências) – Instituto de Física, UFRGS, Porto Alegre, 2003.
- [20] GHOLIPOUR, S. et al. Structural Phase of Y358 Superconductor Comparison with Y123. **Journal of superconductivity and novel magnetism**, v. 25, n. 7, p. 2253-2258, 2012.
- [21] AYAŞ, A. O. et al. The Structural, Superconducting and Transport Properties of the Compounds $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ and $Y_3Ba_5Ca_2Cu_8O_{18}$. **J Supercond Nov Magn**, v. 24, p. 2243-2252, 2011.

- [22] EKICIBIL, A.; CETIN, S. K.; AYAŞ, A. O.; COŞCUN, A.; FIRAT, T.; KIYMAC, K. Exploration of the Superconducting Properties of $Y_3Ba_5Cu_8O_{18}$ With and Without Ca Doping by Magnetic Measurements . **Solid State Sciences**, v. 13, p. 1954-1959 , 2011.
- [23] JOHN, Asha M. et al. Superconducting YBCO ($T_c(0)=92$ K) and Bi-2223 ($T_c(0)=110$ K) thick films on polycrystalline Ba_2LaHfO_5 . 5: a new perovskite ceramic substrate. **Superconductor Science and Technology**, v. 15, n. 6, p. 907, 2002.
- [24] MARSH, P. et al. Crystal structure of the 80 K superconductor $YBa_2Cu_4O_8$. **Nature**, v. 334, n. 6178, p. 141-143, 1988.
- [25] BORDET, P. et al. Structure determination of the new high-temperature superconductor $Y_2Ba_4Cu_7O_{14+x}$. **Nature**, v. 334, n. 6183, p. 596-598, 1988.
- [26] GENOUD, J.-Y. et al. Preparation, resistivity, magnetic properties and specific heat of the 95 K superconductor $YBa_2Cu_{3.5}O_{7.5+x}$ ("247"). **Physica C: Superconductivity**, v. 177, n. 4, p. 315-329, 1991.
- [27] FRIEDMANN, T. A. et al. Direct measurements of the anisotropy of the resistivity in a-b plane of twin-free, single-crystal, superconducting $YBa_2Cu_3O_{7.6}$. **Physical Review B**, Woodbury, v. 42, n. 10, p. 6217-6221, 1990.
- [28] STANLEY, H. Eugene. Introduction to phase transitions and critical phenomena. **Introduction to Phase Transitions and Critical Phenomena**, by H Eugene Stanley, pp. 336. Foreword by H Eugene Stanley. Oxford University Press, Jul 1987. ISBN-10: 0195053168. ISBN-13: 9780195053166, v. 1, 1987.
- [29] PUREUR, P.; SCHAF, J.; KUNZLER, J. V. Electric and magnetic measurement on the high- T_c oxide superconductors $YBa_2Cu_3O_7$, $EuBa_2Cu_3O_7$ and $GdBa_2Cu_3O_7$. In: NICOLSKY, R. (Eds.) et al. **Latin-American conference on high temperature superconductivity**. Singapore: World Scientific, 1988. p. 137-140.
- [30] HIKITA, Makoto; SUZUKI, Minoru. Magnetoresistance and thermodynamic fluctuations in single-crystal $YBa_2Cu_3O_y$. **Physical Review B**, v. 39, n. 7, p. 4756, 1989.
- [31] MURAKAMI, M. **Melt processed high-temperature superconductors**. Singapore: World Scientific, 1992.

- [32] CRISAN, Mircea. **Theory of superconductivity**. Singapore: World Scientific, 1989.
- [33] GINZBURG, V. L. Superconductivity and superfluidity (What was done and what was not). **Physics-Uspekhi**, Letchworth, v. 40, n. 4, p. 407-432, 1997
- [34] RYKOV, A. I.; TAJIMA, S.; KUSMARTSEV, F. V. High-field paramagnetic effect in large crystals of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. **Physical Review B, Woodbury**, v. 55, n. 13, p. 8557- 8563, 1997.
- [35] MAKI, K. THOMPSON, R. S. Fluctuation conductivity of high- T_c superconductors. **Physical Review B**, Woodbury, v. 39, n.4, p. 2767-2777, 1989.
- [36] LAWRENCE, W. E.; DONIACH, S. Theory of Layer-Structure Superconductors. In: **pp 361-2 of Proceedings of the Twelfth International Conference on Low Temperature Physics./Kanda, E.(ed.). Tokyo Keigaku Publishing Co., Ltd.(1971)**. Stanford Univ., Calif., 1971.
- [37] CHAR, K.; KAPITULNIK, A. Fluctuation conductivity in inhomogeneous superconductors. **Zeitschrift für Physik B**, Berlin, v. 72, n. 2, p. 253-259, 1988.
- [38] COOPER, S. L.; KLEIN, M. V.; PAZOL, B. G.; RICE, J. P.; GINSBERG, D. M. Raman scattering from superconducting gap excitations in single-crystal $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. **Physical Review B**, v. 37, n. 10, p. 5920–5923, 1988.
- [39] LOBB. C. J. Critical fluctuations in high- T_c superconductors. **Physical Review B**, Woodbury, v. 36, n. 7, p. 3930-3932, Sept. 1987.
- [40] 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.
- [41] JURELO, A. R. et al. Fluctuation conductivity and microscopic granularity in Bi-based high-temperature superconductors. **Physical Review B**, Woodbury, v. 56, n. 22, p. 14815-14821, Dec. 1997.
- [42] **BASIC RESEARCH NEEDS FOR SUPERCONDUCTIVITY**, Report on the Basic Energy Sciences Workshop on Superconductivity. p. 43-59, 8 – 11, May 2006.

- [43] VIEIRA, V. N. **Efeitos das substituições químicas na irreversibilidade magnética e magnetocondutividade do supercondutor $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$** . Tese (Doutorado em ciências) – Instituto de Física, UFRGS, Porto Alegre, 2004.
- [44] ABRIKOSOV, A. A. On the Magnetic Properties of Superconductors of the Second Group. **Soviet Physics JETP.**, New York, v. 5, p. 1174-1182, 1957.
- [45] YESHURUN, Yu; 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, 1988.
- [46] 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, 1964.
- [47] 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.
- [48] 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.
- [49] 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.
- [50] ALMEIDA, J. R. L., 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.
- [51] GABAY, M.; TOULOUSE, G. Coexistence of spin-glass and ferromagnetic orderings. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 47, n. 3, p. 201-204, July 1981.
- [52] 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.
- [53] FISHER, D. S. Flux-lattice melting in thin-film superconductors. **Physical Review B**, New York, v. 22, n. 3, p. 1190-1199, Aug. 1980.

- [54] NELSON, D. R. Defect-mediated phase transitions. **Phase transitions and critical phenomena**, v. 7, p. 165, 1983.
- [55] NELSON, D. R.; SEUNG, H. S. Theory of melted flux liquids. **Physical Review B**, Woodbury, v. 39, n. 13, p. 9153-9174, May 1989.
- [56] 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.
- [57] LINDEMANN, F. A. Molecular frequencies. **Phys. Zeitschr.**, Leipzig, v. 11, p. 609-612, July 1910.
- [58] 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.
- [59] Manual do PPMS, disponível em:
http://web.njit.edu/~tyson/PPMS_Documents/PPMS_Manua/
- [60] NUNES, S. E. **Correlação entre a irreversibilidade magnética e a resistência nula em supercondutores de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$** . Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física e Matemática, UFPEL, Pelotas, 2013.
- [61] de MENDONÇA , A. P. A. **Os efeitos da desordem química na energia cinética de condensação dos pares de cooper no supercondutor $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$** . Dissertação (Mestrado em Física) - Instituto de Física e Matemática, UFPEL, Pelotas, 2013.
- [62] TOPAL, U.; AKDOGAN, M. The Role of Oxygenation on Superconducting Properties of $RE_3Ba_5Cu_8O_{18}$ (RE= Y, Sm and Nd) Compounds. **Journal of superconductivity and novel magnetism**, v. 25, n. 2, p. 239-244, 2012.
- [63] http://www.kayelaby.npl.co.uk/atomic_and_nuclear_physics/4_2/4_2_1.html, (acesso em dezembro de 2013).
- [64] GHOLIPOUR, S. et al. Y358 against Y123 structural phase in a Y-based superconductor. **arXiv preprint arXiv:1110.0893**, 2011.

- [65] FABRIS, F. W.; ROA-ROJAS, J.; PUREUR, P. Magnetotransport properties and the irreversibility line in ceramic $\text{DyBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7\pm d}$. **Physica C**, v. 354, p. 304-308, 2001.
- [66] ESMAEILI, A.; SEDGHI, H.; AMNIAT-TALAB, M.; TALEBIAN, M. Fluctuation-induced conductivity and dimensionality in the new Y-based $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18-x}$ superconductor. **Eur. Phys. J. B**, v. 79, p. 443–447, 2011.
- [67] TELLEZ, D. A. L.; BAEZ, M. C.; ROA-ROJAS, J. Structure and conductivity fluctuations of the $\text{Y}_3\text{Ba}_5\text{Cu}_8\text{O}_{18}$ superconductor. **Modern Physics Letters B**, v. 26, n. 11, 2012.
- [68] FERREIRA, L. M. **Efeitos de pressão nas flutuações termodinâmicas da condutividade elétrica de supercondutores de alta temperatura crítica**. Tese (Doutorado em ciências) – Instituto de Física, UFRGS, Porto Alegre, 2003.
- [69] 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**, v. 66, p. 224506, December 2002.
- [70] COSTA, R. et al. Scaling beyond 3D-XY in the fluctuation conductivity of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$. **Solid State Solid State Communications**, v. 113, n. 1, p. 23–27, 2000.
- [71] HALPERIN, B. I.; LUBENSKY, T. C.; MA, S. K. First-order transitions in superconductors and smectic-A liquid crystals. **Physical Review Letters**, Woodbury, v. 32, n. 6, p. 292-295, Feb. 1974.