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



Dissertação

O Papel da Pressão Química Sobre as Flutuações Termodinâmicas na Magnetização Diamagnética do YBa₂Cu₃O₇₋₈: Abordado Segundo o Formalismo LLL

Lecione Cavalcante dos Santos

Pelotas, 2017

Lecione Cavalcante dos Santos

O Papel da Pressão Química Sobre as Flutuações Termodinâmicas na Magnetização Diamagnética do YBa₂Cu₃O₇₋₈: Abordado Segundo o Formalismo LLL

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: Prof. Dr. Valdemar das Neves Vieira Coorientador: Prof. Dr. Fábio Teixeira Dias

Pelotas, 2017

Lecione Cavalcante dos Santos

Título: O Papel da Pressão Química Sobre as Flutuações Termodinâmicas na Magnetização Diamagnética do YBa₂Cu₃O_{7-δ}: Abordado Segundo o Formalismo LLL

Dissertação aprovada, como requisito parcial, para obtenção de grau de mestre em Física, Programa de Pós-graduação em Física, Instituto de Física e Matemática, Universidade Federal de Pelotas.

Data da Defesa: 28 de julho de 2017.

Banca examinadora:

Prof. Dr. Valdemar das Neves Vieira Doutor em Ciências (UFPEL)

Prof. Dra. Rosangela Menegotto Costa Doutora em Ciências (FURG)

natuuu

Prof. Dr. Willian Edgardo Alayo Rodriguez Doutor em Física (UFPEL)

"O temor do Senhor é o princípio do conhecimento, mas os insensatos desprezam a sabedoria e a disciplina."

Provérbios 1:7

`A meus pais, aos meus irmãos, Kaléo e André

AGRADECIMENTOS

Primeiramente à Deus por me amparar e ter me dado força nos momentos de dificuldades, por mostrar o caminho ideal nos momentos confusos, e me suprir em todas as minhas necessidades para chegar à fase final deste trabalho.

Aos meus pais Wilson e Fátima, e meus irmãos Salustiano, Onis, Antônio Wilson, Francione, Nelcione, Luciana, Wemerson Kaciane pelos incentivos.

Ao Prof. Dr. Valdemar Vieira pela orientação, apoio, companheirismo, amizade, imensa paciência e pelos ensinamentos durante a disciplina de supercondutividade e as orientações nesse período de extremo aprendizado.

Ao Prof. Dr. Fábio por ter aceitado me corientar neste trabalho, pela troca de ideias, paciência e amizade e os ensinamentos durante as disciplinas de seminário e introdução a supercondutividade.

A minha família, por terem me ajudado durante esse período no meio das dificuldades, e pela compreensão de minha ausência.

Ao Programa de Pós-Graduação em Física da UFPel por ter permitido a execução e a realização deste trabalho.

Aos professores do curso de física da UEA-CEST (Gabriel, Samuel e Israel) pelo o incentivo e o apoio prestado quando necessitado.

Aos meus pais Wilson e Fátima pelo o incentivo, assistência e em meios as dificuldades sempre estiveram ao meu lado, sempre acreditaram em mim, meu muito obrigado por tudo, amo vocês.

Aos meus amigos Rodrigo, Alfreu, Iara, Dorival, Ivanilda, Taylson e Marluce pela assistência, a recepção e ao apoio prestado a minha família, uma palavra só: gratidão. A minha esposa Patricia Costa, pelo companheirismo, por estar sempre ao meu lado, pela compreensão de minha ausência, e o apoio nos momentos de dificuldades.

Aos colegas dos cursos de licenciaturas em Física-UEA, turma 2011.

À Universidade Federal do Rio Grande do Sul (UFGRS) pelas medidas de Magnetização DC, difração de raios X, microscopia de luz polarizada (MLP).

À Fundação de Amparo à Pesquisa do Estado do Amazonas (FAPEAM) pela bolsa de estudo.

RESUMO

DOS SANTOS, L, C,. Lecione Cavalcante, O Papel da Pressão Química Sobre as Flutuações Termodinâmicas na Magnetização Diamagnética do YBa₂Cu₃O₇₋₈: Abordado Segundo o Formalismo LLL 2017, 144p. Dissertação (Mestrado em Física) – Programa de Pós-Graduação em Física, Departamento de Física, Instituto de Física e Matemática, Universidade Federal de Pelotas, 2017.

Neste trabalho pesquisamos o papel da pressão química sobre os efeitos das flutuações termodinâmicas na magnetização diamagnética de monocristais de YBa2- $_xSr_xCu_3O_{7-\delta}$ (x = 0, 0,02, 0,10; 0,25 e 037). A pressão química é introduzida na estrutura cristalina do YBa₂Cu₃O₇₋₈ por meio da distorção da rede promovida pela substituição parcial do Ba por Sr. A estrutura dos monocristais, obtidos por meio da técnica de auto-fluxo, foi analisada através das técnicas de difração de raio-X e microscopia de luz polarizada. As medidas de magnetização DC foram realizadas com o auxílio de um magnetômetro de SQUID onde $H \leq 50$ kOe foram aplicados paralelamente ao eixo c e ao plano ab dos monocristais selecionados. O papel da pressão química sob os efeitos das flutuações termodinâmicas na magnetização diamagnética reversível de nossas amostras foi analisado através do formalismo "lowest Landau level" (LLL). A aplicação deste formalismo revela que o comportamento da magnetização DC reversível para todos os monocristais pesquisados é descrito através da função de escala 3D-LLL quando $H \ge 10$ KOe foram aplicados paralelamente ao eixo c e ao plano ab destes. Desta forma, pode-se sugerir que a pressão química, levando em consideração o montante aplicado, mantém o caráter tridimensional das flutuações termodinâmicas da magnetização diamagnética dos monocristais de YBa₂Cu₃O_{7-δ}, tornando o caráter destas mais robusto em virtude da compactação do bloco supercondutor promovido pela substituição parcial do Ba por Sr na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ.}

Palavras-chave: YBa₂Cu₃O_{7-δ}, Pressão química, lowest Landau level "LLL".

ABSTRACT

DOS SANTOS, L, C,. Lecione Cavalcante, **The Role Chemical Pressure on the Thermodynamic Fluctuations in the of the YBa₂Cu₃O_{7-δ} Diamagnetic Magnetization: Addressed in acordance with LLL Formalism** 2017, 144p. Dissertation (Master Degree in Physics) – Programa de Pós-Graduação em Física, Departamento de Física, Instituto de Física e Matemática, Universidade Federal de Pelotas, 2017.

In this work we investigated the role of chemical pressure on the thermodynamic fluctuation of the YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} (x = 0; 0,02; 0,10; 0,25 e 0,37) single crystals diamagnetic magnetization. The chemical pressure is introduced to the YBa₂Cu₃O₇₋₅ structure through lattice distortion promoted by the Ba partial substitution for Sr. The single crystals structure, which were grown by self-flux method, was characterized by the X ray and polarized light microscopy techniques. The DC magnetization measurements were made with a SQUID magnetometer to $H \le 50$ kOe applied parallel to the c axis and to the ab plane of the single crystals. The role of the chemical pressure on the thermodynamic fluctuation of the diamagnetic magnetization of our samples was analyzed through lowest Landau level (LLL) formalism. The application of this formalism shows that the single crystals reversible DC magnetization behavior is understood by means of 3D-LLL scale function when $H \ge 10$ kOe are applied parallel to the c axis and to the plane of the single crystals. In this way, we could suggest that the chemical pressure, take into account its applied amount, maintains the threedimensional character of the thermodynamic fluctuation YBa₂Cu₃O_{7-δ} diamagnetic magnetization, making their character stronger due to the superconductor block compaction produced by the Ba partial substitution for Sr at YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ} structure.

Key words: Chemical pressure, YBa₂Cu₃O_{7-δ}, lowest Landau level "LLL".

SUMÁRIO

| LISTA DE FIGURAS |
|-----------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| LISTA DE TABELAS |
| LISTA DE SÍMBOLOS |
| INTRODUÇÃO |
| 1 FLUTUAÇÕES TERMODINÂMICAS NA MAGNETIZAÇÃO REVERSÍVEL DE |
| SUPERCONDUTORES DO TIPO II: FUNDAMENTOS TEÓRICOS |
| 1.1.Resistência Elétrica Nula e Efeito Meissner |
| 1.2.Os Comprimentos de Coerência e Penetração |
| 1.3.Supercondutor do Tipo II: A Fase Mista |
| 1.4.Estrutura do Vórtice |
| 1.5.Fase Mista: Líquido e Sólido de Vórtices |
| 1.6.A Teoria de Ginzburg Landau: Generalização e Aplicações |
| 1.6.1.Introdução |
| 1.6.2.O Parâmetro de Ordem Supercondutor |
| 1.6.3.A Energia Livre (G-L) |
| 1.7.Supercondutores Anisotrópicos: Modelo de Lawrence Doniach (L-D)45 |
| 1.8.Flutuações Termodinâmicas e a Teoria G-L50 |
| 2 O FORMALISMO LOWEST LANDAU LEVEL (LLL) APLICADO A |
| MAGNETIZAÇÃO DE SUPERCONDUTORES DO TIPO II53 |
| 2.1.Flutuações Termodinâmicas na Magnetização: Caracterização dos seus Efeitos |
| nas Proximidades da Transição (N-S)53 |
| 2.2.A Energia Livre G-L sobre o ponto de vista da Aproximação de Hartree56 |
| 2.3.As Propriedades de Scaling da Teoria GL-LLL62 |
| 2.4.Os Limites de Aplicabilidade do Scaling GL-LLL e o Modelo 3D-XY71 |
| 3 ASPECTOS GERAIS DO COMPOSTO YBa _{2-x} Sr _x Cu ₃ O ₇₋₅ : O EFEITO DA |
| PRESSÃO QUÍMICA |
| 3.1.A Estrutura Cristalina76 |
| 3.2.0 Comportamento de $T_c(x)$ |
| 4 METODOLOGIA E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS |

| 4.1.0 Crescimento de Monocristais | 85 |
|---------------------------------------------------------------------|-------------------------------|
| 4.2.Caracterização Estrutural e Superficial dos Monocristais | 88 |
| 4.2.1.A Difração de Raio-X | 88 |
| 4.2.2.Microscopia de Luz Polarizada (MLP) | 90 |
| 4.3.Medidas de Magnetização DC | 91 |
| 4.3.1.0 Magnetômetro de SQUID | 91 |
| 4.3.2.Montagem Experimental para as Medidas de Magnetização DC | 94 |
| 4.3.3. Procedimentos Experimentais Empregados nas Medidas de Ma | agnetização |
| DC | 95 |
| 4.3.4.O Tratamento dos Dados de Magnetização | 96 |
| 5 RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO | 98 |
| 5.1.Caracterização Estrutural | 98 |
| 5.1.1.Difração de Raio-X | 98 |
| 5.1.2.Microscopia de Luz Polarizada (MLP) | 101 |
| 5.2.0 Comportamento de $T_c(x)$ | 103 |
| 5.3.A Determinação de $T_{irr}(H)$ e $T_c(H)$ | 106 |
| 5.4. Magnetização DC | 108 |
| 5.5. A Anisotropia de $T_c(H)$ em função da dopagem de Sr | 111 |
| 5.6. As Funções de Escala 2D e 3D-LLL Aplicadas ao Comportamento de | <i>M_{ZFC}(T)</i> das |
| Amostras Pesquisadas | 114 |

| CONSIDERAÇÕES FINAIS | |
|----------------------------|-----|
| APÊNDICE A | 132 |
| APÊNDICE B | 135 |
| APÊNDICE C | 136 |
| REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS | 139 |

LISTA DE FIGURAS

Figura 1.1 - Comportamento da resistência elétrica, em função da temperatura, R(T) Figura 1.2 - A) As linhas de campo magnético atravessam completamente o material em $T > T_c$, e B) representação da expulsão das linhas de campo magnético (Efeito **Figura 1.3** - Representação esquemática do comportamento de $\xi(x) = \lambda(x)$ na interface Figura 1.4 - Diagrama H-T para um supercondutor do tipo II, onde as fases Meissner, Figura 1.5 – Representação esquemática da estrutura de um vórtice no estado misto **Figura 0.1** - Representação esquemática do diagrama *H*-*T* para o supercondutor do tipo II, onde a fase mista é dividida em sólido de vórtices (vórtices aprisionados) e **Figura 1.7** - Identificação de $T_{irr}(H)$, a partir do comportamento das curvas de magnetização "zero field colled" (ZFC) e "field colled colling" (FCC) em um supercondutor do tipo II. Na figura $T_c(H = 5T)$ representa o valor da temperatura crítica **Figura 1.8** - O comportamento das densidades de energia livre G-L para A) $T > T_c$ $(\alpha > 0)$ e B) $T < T_c$ ($\alpha < 0$). Os pontos em destaque nos gráficos representam os Figura 1.9 - Área da seção transversal de um vórtice ao longo do eixo c onde as Figura 2.1 - Comportamento das curvas de m(H,T) de uma amostra de NbTi [25], onde a magnetização, *m* é expressa em e.m.u......54 **Figura 2.2** - O comportamento de M(T,H) para amostra de YBa₂Cu₃O_{7- δ}, onde as linhas sólidas representam a construção do campo crítico superior $Hc_2(T)$ [27]......55 **Figura 2.3** - Comportamento de M(T,H) para amostra monocristalina de Bi-2212. O ponto destacado pela seta, representado pela letra T^* é denominado de temperatura de "crossing point" [28]......55

......68

variações das distâncias interatômicas devido a concentração Sr nesta estrutura [58].

 Figura 3.5 - Comportamento de $T_c(x)$ em função da substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por AI, Co e Fe em amostras policristalinas de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O₇₋₈ e YBa_{2-x}Cu₃хDxO_{7-δ}, D = [Al, Co е Fe [57]].....82 **Figura 3.6** - O comportamento de ΔT_c em função da pressão *P*, para o supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ} [67].83 Figura 4.2 - Diagrama esquemático das etapas, em sequência, empregadas durante Figura 4.3 - Diagrama esquemático básico do funcionamento de um difratômetro de raio X [16]......89 Figura 4.4 - Diagrama esquemático do fenômeno da difração de raios-X em um cristal Figura 4.5 - Imagem obtida através da técnica MLP onde espessura de um monocristal YBa₂Cu_{2,97}Ni_{0,03}O₇₋₈ é quantificada......91 Figura 4.6 - (A-B) Magnetômetro SQUID ("Superconductor Quantum Interference Device"), LSM da UFRGS [73].92 Figura 4.7 - A) 1-cana, 2-rotor, 3-transporte DC da amostra, 4-sonda, 5-Sensor de nível de He, 6-Solenoide supercondutor, 7-Impedância para fluxo de He, 8-cápsula do SQUID, 9 - bobina supercondutora "pick up" B) 10- Dewar do gabinete de isolamento, 11 – Dewar, C) 12 – impressora, 13 – fonte de alimentação do magneto, 14 – controlador de temperatura modelo 1802, 15 - gabinete do console, 16 - unidade de distribuição de força, 17 – controlador MPMS modelo 1822, 18 – unidade de controle **Figura 4.9** - A) Comportamento de $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ junto com PAMST, comportamento M(T) do PAMST,C) Compotamento de $M_{ZFC}(T)$ após o desconto do PAMST quando H = 50 kOe/c foi aplicado a amostra M_cSr037......97 Figura 5.1 - Difratogramas de raio-X para as amostras McY, McSr002, McSr010, McSr025 e McSr037. O feixe de raio-X foi orientado para ângulos de incidência ao Figura 5.3 – Imagens da superfície da amostra McSr025 obtidas por MLP......102

Figura 5.4 – A identificação de T_c das amostras: A) McY, B) McSr002, C) McSr010, D) McSr025 e McSr037 respectivamente.....104 **Figura 5.6** – Determinação e $T_c(H)$ figura (A) e $T_{irr}(H)$ figura (B) para a amostra McSr037, quando H = 50kOe foi aplicado paralelamente ao eixo c......107 **Figura 5.7** - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe foram aplicados paralelamente ao eixo c das amostras: A) McY; B) McSr002; C) McSr010; D) McSr025 e E) McSr037. Os símbolos fechados correspondem aos valores de $T_{irr}(H)$, ao passo que $T_c(0)$ indica o valor da temperatura de transição para H = 0.109**Figura 5.8** - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe foram aplicados paralelamente ao eixo ab das amostras: A) McSr010; B) McSr025 e C) McSr037. Os símbolos fechados correspondem aos valores de $T_{irr}(H)$, ao passo que **Figura 5.9** – Comportamento de $T_c(H)$ e a taxa de variação obtida em função de H e T para as amostras pesquisadas para H//c (símbolos abertos) e H//ab (símbolos fechados)......112

Figura 5.10 – O comportamento da taxa de variação de H_{c2} em função da concentração de Sr para as amostras pesquisadas tanto para H//ab quanto para H//c.

Figura 5.13 – O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 3D-LLL quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe são aplicado paralelamente ao eixo c. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa

para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que $T_c(0)$ (seta tracejada) indica o valor da temperatura de transição em $H = 0 \dots 117$ **Figura 5.14** - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 3D-LLL quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe são aplicado paralelamente ao plano ab. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que $T_c(0)$ (seta tracejada) indica o valor da temperatura de Figura 5.15 -Diagrama $H/H_{c2}(0)$ versus r empegado para classificar a dimensionalidade das FT das amostras pesquisadas......123 **Figura 5.16** – O comportamento 3D-LLL de $M_{ZFC}(T)$ quando H = 50kOe foi aplicado ao longo do eixo c dos monocristais pesquisados neste trabalho......126 Figura 5.17 – O efeito da anisotropia planar no comportamento dos scaling 3D-LLL das amostras McSr010, McSr025 e McSr037, onde $T_c(0)$ indica o valor da temperatura

LISTA DE TABELAS

 Tabela 1.1 - Parâmetros supercondutores para diferentes HTSC [21].
Tabela 3.1 - Variação de parâmetros do Y(Ba1-xSrx)2Cu3Ow em função da
 Tabela 3.2 - Os valores para parâmetros definidos em termos da pressão hidrostática
(dp) normalizados em função dos valores dos parâmetros a, b, e c......80 **Tabela 5.1** – Os valores médios para c(x) listados em função da concentração do Sr para as amostras desse trabalho......100 **Tabela 5.2** – As dimensões dos monocristais de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ}, obtidas a partir da análise das imagens de MLP103 **Tabela 5.3** - Os valores de *T_c* para as amostras monocristalinas pesquisadas.105 **Tabela 5.4** - Valores de $\Delta T = T_c(H) - T_{irr}(H)$ obtidos através de $T_c(H)$ e $T_{irr}(H)$ para 50kOe aplicado nas configurações H//c e H//ab das amostras pesquisadas......111 **Tabela 5.5** – Valores de $T_c(0)$ e $\mu_0 H_{c2} = dH_{c2}/dT$ obtidos a apartir do ajuste linear empreagdo na disposição dos dados de $T_c(H)$ representados na figura 5.9......113 Tabela 5.6 - Valores obtidos em função da concentração de Sr para os parâmetros $\gamma, \mu_0 H_{c2}^c(0) \in \mu_0 H_{c2}^{ab}(0), H/H_{c2}(0), \xi_c(0) \in \xi_{ab}(0)$122

LISTA DE SÍMBOLOS

 \vec{A} – vetor potencial

a, b, c – Parâmetros de rede

BCS – Iniciais dos nomes dos Físicos Barden, Cooper, Shieffer, as quais são aplicados a teoria BCS.

DC – Corrente contínua

 $f_s - f_{n-}$ Diferença entre as densidades de energia livre do estado supercondutor e normal

- FT Flutuações termodinâmicas
- Gi- Parâmetro de Ginzburg Landau

 $Hc_1(T)$ – Campo crítico inferior

 $Hc_2(T)$ – Campo crítico superior

- H_{LL}^1 Limite de campo magnético para a aplicação do formalismo LLL
- $H_{irr}(T)$ Campo magnético de irrervesibilidade em função da temperatura
- HTSC Supercondutor de alta temperatura crítica (sigla em inglês)
- h, k, I índices de Müller
- J_{s-} Supercorrentes de blindagem
- m_c^* Massa das superpartículas ao longo do eixo c
- m^*_{ab} Massa das superpartículas ao longo do plano ab
- n_s(x) Densidade de superpartículas
- s Distância interplanar
- T_{LLL}^{i} Temperatura limite onde o formalismo LLL é aplicado
- T* Temperatura de "crossing point"
- t Temperatura reduzida
- Tc-Temperatura crítica de transição
- $T_{irr}(T)$ Temperatura de irreversibilidade em função da temperatura
- $\lambda(x)$ Comprimento de penetração em função da posição
- λ_{ab} Comprimento de penetração ao longo do plano ab
- λ_c Comprimento de penetração ao longo do eixo c
- μ_0 Permeabilidade magnética do vácuo
- $\xi_{ab}(0)$ Comprimento de coerência ao longo do plano *ab* quando T = 0
- $\xi_c(0)$ Comprimento de coerência ao longo do plano *c* quando *T* = 0
- $\delta_{GL}(0)$ Comprimento de coerência G-L para T = 0

INTRODUÇÃO

Os supercondutores de alta temperatura crítica (HTSC) são caracterizados por apresentarem a fase mista do seu diagrama *H-T* dividida em virtude da ativação dos mecanismos responsáveis pelo o aprisionamento do fluxo magnético [6-8]. A região desta fase onde estes mecanismos são inoperantes é caracterizada pelos fortes efeitos de flutuações termodinâmicas sobre a dinâmica dos vórtices [22-25]. Estes efeitos tornam-se mais intensos a medida em que a temperatura de transição para o estado supercondutor é atingida [22-25].

Em particular, os efeitos das flutuações termodinâmicas na magnetização diamagnética reversível dos HTSC, como o YBa₂Cu₃O_{7-δ,} é interpretado em termos do formalismo "lowest Landau level" (LLL), quando campos magnéticos da ordem de 10kOe são empregados [22-25, 32-33, 40-43].

Entre as muitas questões levantadas sobre o efeito destas flutuações no comportamento diamagnético da magnetização reversível do YBa₂Cu₃O_{7-δ}, chama a atenção a efetivação do "crossover" 2D-3D em amostras monocristalinas sub-dopadas em oxigênio [33, 40-43]. Entretanto, esta efetivação mostra-se dependente do conteúdo de oxigênio e da proximidade da temperatura crítica de transição supercondutora apresentadas pelas amostras [40-43]. Esta dependência é realmente intrigante uma vez que o supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ} exibe flutuações termodinâmicas tridimensionais nas da transição para o estado supercondutor e ao longo da região magneticamente reversível da sua dinâmica de vórtices [24].

Desta forma, motivados por este ponto de vista é que nos propormos, neste trabalho, a realizar um estudo experimental explorando o papel da pressão química sob os efeitos das flutuações termodinâmicas na magnetização diamagnética reversível do YBa₂Cu₃O_{7-δ} sobre o ponto de vista do formalismo LLL em duas e três dimensões

Portanto, com o propósito de atingir este objetivo, foram preparados monocristais de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} (x \leq 0,37) onde a pressão química será introduzida por meio da substituição direta do Ba por Sr na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7- δ}.

A caracterização estrutural dos monocristais se dará a partir do emprego das técnicas de raio-X e microscopia de luz polarizada, ao passo que as medidas de

magnetização DC serão realizadas com o auxílio de um magnetômetro SQUID para campos magnéticos aplicados de até 50kOe.

A caracterização do crossover 2D-3D, se houver, e sua dependência em função da pressão química, será analisada sobre a perspectiva do formalismo LLL, 2D ou 3D.

Com o objetivo de cumprir estes propósitos, preparamos a estrutura dessa dissertação para ser apresentada da seguinte maneira:

Capítulo 1

Ele tratará dos efeitos das flutuações termodinâmicas na magnetização reversível e das principais propriedades dos supercondutores do tipo II.

Capítulo 2

É dedicado ao formalismo "lowest Landau level" empregado no tratamento dos efeitos das flutuações termodinâmicas no comportamento da magnetização reversível dos supercondutores do tipo II.

Capítulo 3

Este capítulo tratará dos efeitos provenientes da substituição parcial do Ba por Sr sobre algumas das propriedades supercondutoras do YBa₂Cu₃O_{7-δ.}

Capítulo 4

Neste, serão abordadas as técnicas e metodologias experimentais utilizadas para o desenvolvimento das atividades experimentais.

Capítulo 5

Este capítulo será dedicado à apresentação e discussão dos resultados experimentais obtidos através das técnicas de caracterização estrutural e medidas de magnetização DC. Estes serão interpretados, quando aplicável, através das funções de escala e do próprio formalismo LLL onde o papel da pressão química será colocado em destaque.

1 FLUTUAÇÕES TERMODINÂMICAS NA MAGNETIZAÇÃO REVERSÍVEL DE SUPERCONDUTORES DO TIPO II: FUNDAMENTOS TEÓRICOS

Em um primeiro momento, este capítulo irá apresentar e discutir os aspectos gerais relativos ao estabelecimento da supercondutividade e a caracterização de algumas propriedades magnéticas dos supercondutores do tipo II.

Em um segundo momento, os efeitos das flutuações termodinâmicas sobre o comportamento da magnetização DC dos supercondutores do tipo II serão abordados com enfoque na contextualização e na interpretação dos resultados experimentais obtidos com a realização desse trabalho. Em especial, o formalismo "lowest Landau level" (LLL), empregado na compreensão do comportamento das flutuações diamagnéticas dos supercondutores de alta temperatura crítica (HTSC), receberá atenção especial.

1.1 Resistência Elétrica Nula e Efeito Meissner

As duas propriedades que o material deve satisfazer para ser caracterizado como supercondutor são: resistência elétrica nula e efeito Meissner.

A resistência elétrica nula foi originalmente registrada por Kamerlingh Onnes [1], em 1911, quando esse verificou que a resistência elétrica de uma amostra de mercúrio metálico diminuiu abruptamente para zero, quando uma temperatura de ~4,2K foi atingida. A figura 1.1 ilustra o resultado experimental obtido por Kamerlingh Onnes.



Figura 1.1 - Comportamento da resistência elétrica, em função da temperatura, R(T) do mercúrio metálico, por Karmelingh Onnes, adaptado da referência [1].

A temperatura a partir da qual a resistência elétrica do material se anula, recebe a denominação de temperatura crítica de transição (T_c). Nesta temperatura o material experimenta uma transição de fase, ou seja, ele passa do estado condutor (resistivo) para o estado supercondutor (resistência elétrica nula).

A outra propriedade, a qual refere-se o primeiro parágrafo desta seção, é o efeito Meissner. Este efeito é caracterizado pela expulsão do campo magnético do interior do supercondutor para $T \le T_c$ [1]. A figura 1.2, e suas divisões, ilustram este efeito.



Figura 1.2 - **A)** As linhas de campo magnético atravessam completamente o material em $T > T_c$, e **B)** representação da expulsão das linhas de campo magnético (Efeito Meissner), para $T \le T_c$, adaptado da referência [1].

A figura 1.2(A) idealiza a representação de uma amostra penetrada pelas linhas de campo magnético em $T > T_c$. Já a figura 1.2(B) esquematiza o fenômeno da expulsão destas linhas do interior da amostra para $T \le T_c$, ou seja, no estado supercondutor, a indução magnética torna-se nula no interior do supercondutor em virtude da circulação de correntes na superfície do material. Estas originam uma indução magnética que cancela a ação do campo magnético externo. Estas correntes, recebem a denominação de supercorrentes de blindagem.

A efetivação do estado supercondutor deve-se essencialmente a formação dos pares de Cooper, os quais são os responsáveis por tornar o transporte elétrico não resistivo.

De maneira geral, de acordo com a teoria (BCS), desenvolvida pelos físicos Barden, Cooper e Schrieffer, [1-3,16] pode-se conceber um par de Cooper como sendo constituído por dois elétrons, os quais, sobre determinadas condições específicas, interagem atrativamente entre si [1-3,16]. A mediação da interação desse par com a rede cristalina se dá através da troca de um fônon. O par de Cooper também é comumente conhecido como superpartícula ou superelétron.

1.2 Os Comprimentos de Coerência e Penetração

Variações espaciais na densidade de superpartículas e dimensionamento do alcance das supercorrentes de blindagem são mensurados no estado supercondutor em termos de dois comprimentos característicos, a saber: o comprimento de coerência, ξ e o comprimento de penetração, λ . Entretanto, a temperatura e o campo magnético também podem influenciar no comportamento de ξ e λ [16].

O conceito de comprimento de coerência apresenta definições distintas dependendo do formalismo teórico empregado. Por exemplo, de acordo com a teoria BCS, ξ está diretamente relacionado ao tamanho apresentado pelo o par de Cooper [2,16] ao passo que na teoria formulada por Ginzburg e Landau (G-L), o conceito de ξ está alicerçado à variação espacial da densidade de superpartículas, n_s . No YBa₂Cu₃O₇₋₈, os valores de $\xi(x)$ variam entre 10Å e 20Å [4].

Por outro lado, λ é empregado na mensuração da região do supercondutor, a partir de sua superfície, na qual as supercorrentes fluem com o propósito de manter

 $\vec{B} = 0$ no interior do supercondutor [1, 4]. Este parâmetro, desta forma, fornece uma leitura para o alcance da extensão do campo magnético no interior do supercondutor. O valor típico de $\lambda(x)$ para o YBa₂Cu₃O₇₋₈ pode variar entre 1000Å e 2000Å [4]. A figura 1.3 ilustra uma possível representação esquemática para os comportamentos de $\xi(x)$ e $\lambda(x)$ através de uma interface normal-supercondutor [5].



Figura 1.3 - Representação esquemática do comportamento de $\xi(x) \in \lambda(x)$ através de uma interface normalsupercondutor, hipotética, adapatado da referência [5].

1.3 Supercondutor do Tipo II: A Fase Mista

Neste item será abordado o comportamento da resposta magnética de um supercondutor do tipo II quando sujeito a aplicação de *H*, dando-se ênfase, a caracterização de suas propriedades fundamentais.

A figura 1.4 ilustra o diagrama *H-T* característico para um supercondutor do tipo II, como o YBa₂Cu₃O_{7- δ} [6].



Figura 1.4 - Diagrama *H*–*T* para um supercondutor do tipo II, onde as fases Meissner, mista e normal são colocadas em destaque, adaptado da referência [6].

No diagrama da figura anterior é possível identificar duas fases magnéticas distintas, no estado supercondutor de um material do tipo II, são elas: a Meissner e a mista. Na fase Meissner o supercondutor se magnetiza de tal forma que no seu interior não há campo magnético. A ilustração da figura A, a direita do gráfico da figura 1.4, esquematiza esta situação.

A região do diagrama *H*-*T* delimitada por $Hc_1(T) \le H \le Hc_2(T)$ recebe a denominação de fase mista. Nesta fase, ao contrário da anterior, o campo magnético passa a se estabelecer no interior do supercondutor. Desta forma, o comportamento magnético do material é caracterizado pela exibição do efeito Meissner incompleto. Em particular, nesta fase, ao penetrar no material, o campo magnético assume a forma de linhas de fluxo magnético confinadas localmente por vórtices de supercorrentes. Este comportamento é idealizado pela figura B, no lado direito da figura 1.4.

É importante ressaltar que $Hc_1(T)$, denominado de campo crítico inferior, marca o valor de *H* a partir do qual se dá a penetração do campo magnético no interior do supercondutor. No que se refere ao supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ}, os valores de $Hc_1(T)$ situam-se entre 0,2kOe e 0,5kOe [7].

A intensificação do campo magnético aplicado $[H > Hc_1(T)]$ irá aumentar a quantidade de campo magnético contido no interior do supercondutor, até que o material fique completamente penetrado por esse, veja a figura C, a direita da figura

1.4. Nesse limite, o material deixa de ser supercondutor e passa a se comportar como um condutor convencional.

Na figura 1.4, isso ocorre quando o campo magnético aplicado se iguala ao campo crítico superior, $Hc_2(T)$. Os valores típicos para $Hc_2(T)$ no supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ} situam-se entre 6.740kOe e 1.220kOe [7].

1.4 Estrutura do Vórtice

De acordo com o que foi discutido no item anterior, o diagrama *H*-*T* dos supercondutores do tipo II apresenta uma fase mista na qual ocorre a penetração do campo magnético no supercondutor. Após a penetração, o campo magnético assume forma de linhas de fluxo magnético blindadas por vórtices de supercorrentes. Esta estrutura recebe a denominação de fluxóide ou, simplesmente, vórtice. A figura 1.5 ilustra uma possível representação esquemática da estrutura do vórtice bem como destaca a utilização dos comprimentos $\xi(x) \in \lambda(x)$ para representar a variação espacial de n_s e \vec{B} através da estrutura do vórtice.



Figura 1.5 – Representação esquemática da estrutura de um vórtice no estado misto de um supercondutor do tipo II A) adaptado da referência [6].

De acordo com a figura 1.5, o vórtice assume a forma geométrica, aproximada, de um cilindro o qual é constituído por uma região central não-supercondutora (normal) preenchida por um quantum de fluxo magnético (\emptyset_0), sendo esta estrutura blindada por vórtices de supercorrentes (J_s).

É importante verificar na figura 1.5(A) que $n_s(x)$ decresce de um patamar constante até zero ao longo de uma trajetória que corresponde , aproximadamente, ao raio do núcleo do vórtice. Esta variação espacial de n_s é mensurada, conforme definido anteriormente, por $\xi(x)$. Por outro lado, o comprimento de penetração, $\lambda(x)$, representado na figura 1.5(B), está relacionado a mensuração da variação espacial de B(x) ao longo da estrutura do vórtice. De maneira análoga ao verificado para $n_s(x)$, B(x), na figura 1.5(B), parte de um valor mínimo (nulo) e atinge um valor máximo no centro do vórtice, conforme abordado anteriormente na seção 1.2.

1.5 Fase Mista: Líquido e Sólido de Vórtices

Na fase mista de um supercondutor do tipo II os vórtices interagem fortemente entre si. Esta interação se dá em termos do estabelecimento de uma rede onde os efeitos provenientes do campo magnético, da temperatura e da desordem ("pinning") influenciam fortemente na dinâmica desta [7-8].

De forma geral, pode-se dizer que a fase mista do diagrama *H*-*T*, representada na figura 1.6, é dividida em duas regiões distintas, a saber: líquido de vórtices, região entre $Hc_2(T)$ e $H_{irr}(T)$, e sólido de vórtices, região entre $H_{irr}(T)$ e $Hc_1(T)$. Estas duas regiões são separadas pela linha de irreversibilidade magnética (LIM) (representada na figura pelo conjunto de pontos de $H_{irr}(T)$ ou $T_{irr}(T)$.



Figura 1.6 - Representação esquemática do diagrama *H*-*T* para o supercondutor do tipo II, onde a fase mista é dividida em sólido de vórtices (vórtices aprisionados) e liquido de vórtices (vórtices em movimento) [6].

A fase líquida de vórtices é caracterizada pela livre movimentação de vórtices. Nesta, a força de Lorentz e os efeitos de flutuações termodinâmicas se destacam como sendo os mecanismos motores principais [6]. Nesta fase a resposta magnética do material é reversível, ou seja, ela não depende do histórico termo-magnético empregado na sua determinação [6].

A fase sólida de vórtices é caracterizada pela ausência de movimentação dos vórtices, ou seja, nesta fase, estes encontram-se aprisionados pelo potencial de "pinning" proveniente dos defeitos estruturais ativos na estrutura desses materiais [7-8]. Este potencial prepondera sobre a interação vórtice-vórtice, colaborando para que os mesmos interajam através de uma estrutura rígida de curto- alcance denominada de rede de vórtice [7-8]. Nesta fase do diagrama *H*-*T*, a resposta magnética do material é irreversível, ou seja, ela se mostra dependente do histórico termo-magnético empregado na sua obtenção [7-8].

A determinação de $T_{irr}(H)$, e consequentemente da LIM, de um supercondutor do tipo II pode ser realizada a partir do emprego de diferentes técnicas experimentais como: a magnetização DC [9] e AC [10], a magnetoresistividade elétrica [6], o torque magnético[6] e etc. Em particular, a determinação de $T_{irr}(H)$ a partir do emprego da técnica de magnetização DC ocorre segundo os protocolos "zero field colled" (ZFC) e "field colled colling" (FCC) [10-11]. A figura a seguir, ilustra o comportamento das magnetizações $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ quando um campo magnético de 50kOe foi aplicado paralelamente ao eixo c (H // c) do monocristal de YBa_{1,63}Sr_{0,37}Cu₃O_{7-δ}, pesquisado neste trabalho.


Figura 1.7 - Identificação de $T_{irr}(H)$, a partir do comportamento das curvas de magnetização "zero field colled" (*ZFC*) e "field colled colling" (*FCC*) em um supercondutor do tipo II. Na figura $T_c(H = 50kOe)$ representa o valor da temperatura crítica de transição.

A temperatura a qual marca a separação entre as respostas $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ é identificada como $T_{irr}(H)$. É importante ressaltar que o comportamento das magnetizações ZFC e FCC, na figura 1.7, é reversível para $T > T_{irr}(H)$ ao passo que para $T < T_{irr}(H)$ este comportameto é irreversível [10-11].

Neste trabalho, essencialmemente, iremos tratar das flutuações termodinâmicas no comportamento da magnetização reversível uma vez que os efeitos destas flutuações são mais robustos na região do diagrama *H-T* situada na fase líquido de vórtices onde o potencial de aprisionamento ("pinning") dos vórtices mostra-se inoperante [6].

1.6 A Teoria de Ginzburg Landau: Generalização e Aplicações

1.6.1 Introdução

O comportamento da magnetização reversível dos supercondutores do tipo II é interpretado através da aplicação da teoria fenomenológica de Ginzburg – Landau (G-L) [12-13]. Na fase mista, em particular, ela é empregada na descrição e na

compreensão do comportamento apresentado por n_s . Esta teoria é fundamentada na concepção teórica da transição de fase de segunda ordem implementada por Landau para sistemas magnéticos [13]. O emprego de suas equações permite que o cálculo da distribuição de campos magnéticos e da variação espacial do número de supercondutores se dê por meio dos parâmetros fenomenológicos α e β . A partir do uso das equações G-L é possível rever e redefinir alguns parâmetros característicos do estado supercondutor, como: λ , ξ , abordados na seção 1.2, e κ (parâmetro de Ginzburg-Landau).

Apesar da teoria G-L ter sido originalmente concebida levando em consideração efeitos de flutuações Gaussianas, a sua releitura em termos dos níveis quantizados de Landau, atualmente, permite que essa seja empregada na interpretação do comportamento das flutuações críticas na magnetização dos HTSC, as quais especialmente são preponderantes nas proximidades de $Hc_2(T)$ [14-15].

1.6.2 O Parâmetro de Ordem Supercondutor

De acordo com esta teoria, não apenas a variação espacial de $n_s(r)$ mas também a sua dependência em termos de *T* e *H* pode ser escrita a partir do emprego do conceito do parâmetro de ordem supercondutor, $\psi(r, T, H)$. A relação entre n_s e $\psi(r)$ é dada a partir do emprego da seguinte igualdade:

$$n_{\rm s}(r) = |\psi(r)|^2$$
 (1.1)

De acordo com a teoria G-L, $\psi(r)$ é analiticamente tratada como a representação de uma função de onda dada por:

$$\psi(r) = |\psi(r)|^2 e^{i\emptyset(r)} \tag{1.2}$$

Na equação (1.2), $|\psi(r)|^2 \in \phi(r)$ representam, respectivamente, a amplitude e a fase de $\psi(r)$. Particularmente, a teoria G-L prevê que $\psi(r,T) = 0$ para $T > T_c \in \psi(r,T) \neq 0$ para $T < T_c$ [16].

1.6.3 A Energia Livre (G-L)

De acordo com a definição e o comportamento, em função da temperatura, apresentados por ψ , ambos discutidos no parágrafo anterior, a teoria G-L define que para um supercondutor homogêneo, na ausência de H, $\psi \rightarrow 0$ quando $T \rightarrow T_c$. Neste cenário, a densidade de energia do estado supercondutor, f_s pode ser expandida em termos de uma série de potências de $|\psi|^2$ representada na equação (1.3).

$$f_s = f_n + \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4$$
(1.3)

Na expressão (1.3), f_n é a densidade de energia do estado normal ao passo que α e β são parâmetros fenomenológicos. A ausência de termos ímpares na expressão (1.3) é justificada pelo fato de que esses não são analíticos em $|\psi| \rightarrow 0$, quando tratar-se de uma transição de fase de segunda ordem. Por outro lado, as soluções de ψ as quais minimizam a equação (1.3) são: $|\psi|^2 = 0$, para $\beta > 0$ e $\alpha > 0$ $(T > T_c)$ e $|\psi|^2 = |\psi_{\infty}|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$ para $\beta > 0$ e $\alpha < 0$ $(T < T_c)$. O provável comportamento apresentado por estas soluções é ilustrado na figura 1.8 (A-B).



Figura 1.8 - O comportamento das densidades de energia livre G-L para A) $T > T_c(\alpha > 0)$ e B) $T < T_c(\alpha < 0)$. Os pontos em destaque nos gráficos representam os valores que minimizam a expressão 1.3 [17].

A condição $\beta > 0$ é essencial para que a teoria G-L se torne aplicável. Por outro lado, a troca dos valores de α quando $T \rightarrow T_c$, permite definir que em T_c , a temperatura mais elevada na qual $|\psi|^2 \neq 0$, seja fornecido o menor nível de energia livre, não considerando o obtido em $|\psi|^2 = 0$. Desta forma, submetendo o parâmetro $\alpha(T)$ a uma expansão em série de Taylor é possível dizer que:

$$\alpha(T) = a(t-1) \ (a > 0) \tag{1.4}$$

onde *t* é definido como t = T/Tc.

A notação ψ_{∞} é convencionalmente utilizada uma vez que ψ aproxima-se deste valor no interior do material tido como homogêneo. Quando o valor de $|\psi|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$ for substituído na equação (1.3), pode-se afirmar que:

$$f_s - f_n = -\frac{1}{2}\mu_0 H_c^2 = \frac{\alpha^2}{2\beta}$$
(1.5)

Na equação anterior μ_0 é a constante de permeabilidade magnética, H_c é o campo crítico termodinâmico e o termo $-\frac{1}{2}\mu_0 H_c^2$ representa a energia de condensação do estado supercondutor [16].

Os efeitos provenientes da variação espacial de n_s e da aplicação de campo magnético sobre a densidade de energia livre G-L são considerados na expressão (1.6).

$$f_s = f_n + \alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| (-i\hbar \nabla - \frac{e^* \vec{A}}{c})\psi \right|^2 + \frac{\vec{B}^2}{8\pi}$$
(1.6)

Na expressão anterior, $m^* e e^*$ representam a massa e a carga dos superelétrons, respectivamente, \vec{A} é o potencial vetor, \vec{B} é o campo magnético, $\hbar = h/2\pi$ é a constante de Planck. Na equação (1.6) o segundo e o terceiro termos, juntos, representam a densidade de energia de condensação do estado supercondutor, o quarto termo representa a penalização em energia associada à gradientes na magnitude de ψ ao passo que o quinto termo está relacionado a energia cinética proveniente das supercorrentes e o último termo, por sua vez, encontra-se relacionado a densidade de energia do campo magnético.

A minimização da expressão (1.6) em relação a $\psi (\partial f_s / \partial \psi = 0)$ e a $\vec{A} (\partial f_s / \partial \vec{A} = 0)$ fornece as equações fundamentais da teoria G-L. A primeira equação G-L é dada por:

$$\frac{1}{2m^*} \left(-i\hbar \nabla - \frac{e^* \vec{A}}{c} \right)^2 \psi + \beta |\psi|^2 \psi + \alpha \psi = 0$$
(1.7)

A equação anterior é aplicada na descrição da variação de $\psi(\vec{r})$ uma vez que o potencial vetor \vec{A} seja conhecido.

Nas proximidades de T_c , $|\psi|^2 \rightarrow 0$ o que nos permite desconsiderar termos de mais alta ordem por parte de ψ . Desta forma a equação (1.7) assume a forma linearizada da teoria G-L.

$$\frac{1}{2m^*} \left(-i\hbar \nabla - \frac{e^* \vec{A}}{c} \right)^2 \psi + \alpha \psi = 0$$
(1.8)

Agora, escrevendo a equação (1.8), para o caso unidimensional, na ausência de campo magnético aplicado, obtém-se a seguinte expressão:

$$-\frac{\hbar^2}{2m^*}\frac{d^2\psi}{dx^2} + \alpha\psi = 0$$
$$\frac{d^2\psi}{dx^2} = \frac{1}{\xi^2}\psi$$

A quantidade $\xi(T)$ é definida como o comprimento de coerência G-L e como tal apresenta dimensão de comprimento ao quadrado, ou seja:

$$\xi(T) = \left(\frac{\hbar^2}{2m^* \left| \alpha(T) \right|} \right)^{1/2} \tag{1.9}$$

Conforme abordado na seção 1.2, $\xi(T)$ representa a escala de variação espacial do parâmetro de ordem supercondutor e diverge para $T \rightarrow T_c$ onde $\alpha \rightarrow 0$.

A segunda equação G-L é dada por:

$$\vec{j} = \frac{ie^*}{2m^*} (\psi^* \nabla \psi - \psi \nabla \psi^*) - \frac{(e^*)^2}{m^*} |\psi|^2 \vec{A}$$
(1.10)

A equação anterior representa a expressão quantum-mecânica para a densidade de corrente das superpartículas na presença de campo (\vec{A}). Agora, se o

valor de campo magnético aplicado for suficientemente incapaz de produzir variações espaciais relevantes em $\psi(\vec{r})$, pode-se simplificar a equação (1.10) de maneira que essa possa ser escrita como:

$$\vec{J} = \frac{(e^*)^2}{m^*} \vec{A} |\psi|^2$$
(1.11)

o que permite configurar a seguinte grandeza:

$$\lambda(T) = \left[\mu_0 \; \frac{(e^*)^2}{m^*} \; |\psi|^2\right]^{-1/2} \tag{1.12}$$

Na equação anterior, $\lambda(T)$ é o comprimento de penetração, cujo conceito foi introduzido na seção 1.1 deste capítulo. Essencialmente pode-se utilizar esta grandeza no cálculo da distribuição da densidade de corrente e do campo magnético em um supercondutor, uma vez que $n_s = |\psi|^2$. Desta forma, pode-se ressaltar a forte dependência de λ em função de *T*, uma vez que $\psi \rightarrow 0$, quando $T \rightarrow T_c$, e $\lambda \rightarrow \infty$, o que resulta na total penetração do campo magnético no interior do supercondutor em $T=T_c$.

A razão entre $\xi(T)$ e $\lambda(T)$ recebe a denominação de parâmetro de Ginzburg -Landau (κ) definido como:

$$\kappa = \frac{\lambda}{\xi} \tag{1.13}$$

A combinação das equações (1.5), (1.9) e (1.12) fornece uma importante relação entre as grandezas $H_c(T)$, $\xi(T) e \lambda(T)$ a qual aparece destacada pela equação (1.14).

$$H_c(T)\,\xi(T)\lambda(T) = \frac{\hbar}{2\sqrt{2}\,\mu_0 e} = \frac{\phi_0}{2\pi\sqrt{2}\,\mu_0} = cte \tag{1.14}$$

Na equação anterior, *e* é a carga do elétron e $\phi = h/2e$ é o quantum de fluxo, definido como: $\phi = \frac{h}{2e} = 2,07. \ 10^{-15}$ Wb no SI e $\phi = \frac{hc}{2e} = 2,07. \ 10^{-7}$ G.cm² no sistema Gaussiano. Uma das aplicações da teoria G-L remete a descrição do comportamento da supercondutividade em amostras volumétricas ("bulk samples"). Especialmente quando estas encontram-se sobre a aplicação de campos magnéticos, os quais sejam suficientemente intensos, para que a condição $|\psi|^2 \ll |\psi_{\infty}|^2 = -\frac{\alpha}{\beta}$ torne desprezível os termos $|\psi|^2$ da equação (1.7), assim como verificado ocorrer quando $T \rightarrow T_c$. Desta forma, a equação (1.15) representa a equação G-L linearizada quando α é substituído por ξ na equação (1.8).

$$\left[\left(\frac{\nabla}{i} - \frac{2\pi\vec{A}}{\phi_0}\right)\psi\right]^2 - \frac{2m^*\alpha}{\hbar^2}\psi = -\frac{\psi}{\xi^2(T)}$$
(1.15)

É importante verificar, que a equação (1.15) apresenta uma forte semelhança com a equação de Schrödinger para uma partícula livre de massa m^* e carga e^* em um campo magnético $\vec{h} = \nabla x \vec{A}$, onde $-\alpha = |\alpha|$ desempenha o papel dos autovalores de energia.

De acordo com o cenário descrito nos parágrafos anteriores, se considerar-se que *H* encontra-se aplicado ao longo do eixo z de uma amostra supercondutora volumétrica é conveniente que a equação (1.15) seja submetida a seguinte condição de gauge:

$$A_y = Hx \tag{1.16}$$

Desta forma, a equação (1.15) assume a seguinte forma quando tratar-se de uma amostra infinita, submetida a aplicação de um campo magnético ao longo do eixo z:

$$\left[-\nabla^2 + \frac{4\pi i}{\phi_0} Hx \frac{\partial}{\partial y} + \left(\frac{2\pi H}{\phi_0}\right)^2 x^2\right]\psi = \frac{1}{\xi^2}\psi$$
(1.17)

A equação (1.17) apresenta como solução, para o comportamento de ψ , a seguinte expressão:

$$\psi = e^{ik_y} y e^{ik_z} z F(x) \tag{1.18}$$

Ao substituir a condição imposta pela equação (1.18) na equação (1.17), e logo após executar as operações algébricas necessárias, obtém-se a seguinte expressão:

$$-\frac{d^2F}{dx^2} + \left(\frac{2\pi H}{\phi_0}\right)^2 (x - x_0)^2 F = \left(\frac{1}{\xi^2} - k_z^2\right) F$$
(1.19)

onde

$$x_0 = \frac{k_y \phi_0}{2\pi H}$$
(1.20)

Ao multiplicarmos a equação (1.19) pela quantidade $\hbar^2/2m^*$ a tornamos semelhante a equação de Shrödinger para uma partícula de massa m^* centrada em um ponto x_0 . Esta equação encontra-se sujeita ao potencial de um oscilador harmônico com força constante[$(2\pi\hbar H/\phi_0)^2/m^*$]. Esta situação assemelha-se a determinação dos estados quantizados para uma partícula carregada sobre ação de um campo magnético, estados estes conhecidos como níveis de Landau [38]. Estes níveis encontram-se separados por uma energia de cíclotron igual a $\hbar\omega_c = e^*H/m^*c$ [17]. Desta forma, devido a analogia estabelecida, os demais valores de energia serão dados por:

$$\varepsilon_n = \left(n + \frac{1}{2}\right)\hbar \frac{e^*H}{m^*} \tag{1.21}$$

Sendo que estes encontram-se relacionados a equação (1.19) por meio da seguinte igualdade:

$$\frac{\hbar^2}{2m^*} \left(\frac{1}{\xi^2} - k_z^2\right) = \left(\frac{2n+1}{2}\right) \frac{\hbar e^* H}{m_c^*}$$
(1.22)

Após efetuar-se as operações algébricas necessárias para promover a explicitação de *H* na equação anterior, obtém-se:

$$H = \frac{\phi_0}{2\pi(2n+1)} \left(\frac{1}{\xi^2} - k_z^2\right)$$
(1.23)

O valor mais elevado para *H*, na equação anterior, é obtido quando $k_z = 0$ e n = 0, ou seja:

$$H_{C2}(T) = \frac{\phi_0}{2\pi\xi^2(T)}$$
(1.24)

onde $H_{C2}(T)$ é o campo crítico superior, cuja definição foi discutida na seção 1.3 deste capítulo.

A determinação do comportamento de $H_{C2}(T)$ é de extrema importância para a caracterização do fenômeno das flutuações termodinâmicas nos HTSC. A aplicação do resultado obtido pela equação (1.24) na equação (1.14) permite qestabelecer uma relação entre H_{C2} e H_c , desta forma é possível afirmar que:

$$H_{C2} = \sqrt{2} \,\mu_0 k H_C \tag{1.25}$$

Na equação anterior pode-se ressaltar a relevância do parâmetro G-L, *k* para a classificação dos supercondutores em tipo I e tipo II. Particularmente, quando $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}} (H_{C2} > H_C)$ estará lidando-se com supercondutores do tipo II. Estes, por sua vez, tornam-se supercondutores a partir da efetivação de uma transição de segunda ordem em $H_{C2} > H_C$ (onde $|\psi|^2$ varia continuamente a partir de zero) [7].

Por outro lado, quando $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$ ($H_{C2} < H_C$) estará lidando-se com supercondutores do tipo I. Estes por sua vez, tornam-se supercondutores a partir da efetivação de uma transição de primeira ordem para $H_{C2} < H_C$ (onde o comportamento de $|\psi|^2$ exibe um salto descontínuo e atinge o valor de ψ_{∞}^2).

1.7 Supercondutores Anisotrópicos: Modelo de Lawrence Doniach (L-D)

No capítulo 3 desta dissertação será ressaltado que uma das características fundamentais da estrutura cristalina dos HTSC é ser constituída por multicamadas de planos de Cu2-(O2-03) (planos supercondutores), majoritariamente, responsáveis pelo estabelecimento da supercondutividade nestes sistemas. Estas multicamadas encontram-se intercaladas por blocos, denominados de reservatórios de carga, os quais, aproximadamente, desempenham um papel semelhante à de um isolante [18].

Esta anisotropia planar é característica da estrutura dos HTSC e consequentemente produz uma forte anisotropia nas demais propriedades do estado supercondutor e do estado normal desses materiais [19]. Nesta seção serão destacados os efeitos desta anisotropia intrínseca, especialmente sobre Hc_2 .

Lawrence e Doniach [20] proporam um modelo fenomenológico para explicar a natureza da transição normal-supercondutor em materiais supercondutores os quais apresentam estruturas semelhantes à dos HTSC. O modelo L-D, [20] por aproximação, é aplicado aos HTSC. De acordo com este modelo, os supercondutores planares são concebidos como um empilhamento de estruturas supercondutoras bidimensionais, acopladas entre sí por meio de tunelamento Josephson [20]. É importante destacar que o estado supercondutor de cada um destes planos, até que seja contabilizado o n-ésimo plano da estrutura, é representado individualmente através de um parâmetro de ordem G-L em duas dimensões, $\psi_n(x, y)$.

De maneira semelhante ao formalismo empregado na teoria G-L, seção 1.6, o modelo L-D fundamenta-se no uso de uma expressão a qual representa a energia livre para esse conjunto de planos supercondutores empilhados ao longo de uma direção preferencial. Em relação a disposição espacial destes planos, o modelo adota a concepção tradicional apresentada para a disposição cristalográfica em três dimensões, ou seja, os eixos cristalográficos *a* e *b*, em conjunto, definem a estrutura planar, ao passo que o eixo cristalográfico *c*, define a direção geométrica normal á estrutura, à coordenada *z* corresponde a direção do eixo cristalográfico *c* com *s* representado a distância interplanar, e os eixos *x* e *y* as respectivas coordenadas dos planos.

A expressão prevista pelo modelo L-D para a densidade de energia livre, *F* encontra-se representada na equação (1.26).

$$F = \sum_{n} \int_{V} \left\{ \alpha |\psi_{n}|^{2} + \frac{1}{2} \beta |\psi_{n}|^{4} + \frac{1}{2m_{ab}^{*}} \left| (-i\hbar\nabla' + 2e\vec{A'})\psi_{n} \right|^{2} + \frac{\hbar^{2}}{2m_{c}^{*}s^{2}} \left| \psi_{n} - \psi_{(n-1)} \exp\left(\frac{2ieA_{z}s}{\hbar}\right) \right|^{2} \right\} dV$$
(1.26)

Na equação anterior $m_{ab}^* e m_c^*$ são as massas efetivas dos superelétrons que estão movendo-se ao longo do plano *ab* e do eixo *c* respectivamente, $\nabla' e \vec{A'}$ são vetores bidimensionais orientados ao longo do plano *ab* e A_z é a componente z do vetor potencial.

A equação L-D é obtida a partir da minimização da equação (1.26) em relação a ψ_n^* , recebendo a denominação de equação L-D e é expressa como:

$$\alpha\psi_{n} + \beta|\psi_{n}|^{2}\psi_{n} + \frac{1}{2m_{ab}^{*}}(-i\hbar\nabla' + 2e\vec{A}')^{2}\psi_{n}$$

$$-\frac{\hbar^{2}}{2m_{c}^{*}s^{2}}\left[\psi_{n+1}\exp\left(-\frac{2ieA_{z}s}{\hbar}\right) - 2\psi_{n} + \psi_{(n-1)}\exp\left(\frac{2ieA_{z}s}{\hbar}\right)\right] = 0$$
(1.27)

Agora, se a variação espacial ao longo do eixo z se der de maneira gradativa, ψ_n (função descontínua) poderá ser substituída por uma função ψ contínua. Esta aproximação é incorporada na equação anterior quando o comportamento de ψ passa a ser expresso em termos de sua derivada, sendo assim, de acordo com a equação (1.28), têm-se

$$\alpha\psi + \beta|\psi|^2\psi + \frac{1}{2}\left(-i\hbar\nabla + 2e\vec{A}\right)\left[\frac{1}{m^*}\right]\left(-i\hbar\nabla + 2e\vec{A}\right)\psi = 0 \qquad (1.28)$$

Sendo que agora, $\nabla \in \vec{A}$ são grandezas tridimensionais e $(1/_{m^*})$ é o tensor de massa, definido como:

$$\begin{bmatrix} \frac{1}{m^*} \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \frac{1}{m^*_{ab}} & 0 & 0\\ 0 & \frac{1}{m^*_{ab}} & 0\\ 0 & 0 & \frac{1}{m^*_c} \end{bmatrix}$$
(1.29)

A equação (1.28) é denominada de equação G-L anisotrópica [20].

A natureza fraca do acoplamento interplanar, como no caso dos HTSC, permite afirmar que: $m_c^* \gg m_{ab}^*$, ou seja, que a massa das superparticulas ao longo do eixo *c* é muito maior do que a observada para esta grandeza ao longo do plano *ab*. Portanto, em função do que foi afirmado no parágrafo anterior, define-se o parâmetro de anisotropia, γ representado na equação (1.30).

$$\gamma = \left(\frac{m_c^*}{m_{ab}^*}\right)^{1/2} \tag{1.30}$$

A questão da anisotropia também é estendida para os demais parâmetros característicos da supercondutividade, como:

$$\xi_i(T = \left(\frac{\hbar^2}{2m^* \mid \alpha(T) \mid}\right)^{1/2}$$
(1.31)

e, a partir do emprego da equação (1.14);

$$\lambda_i(T) = \frac{\hbar}{2\sqrt{2}\,\mu_0 e\,H_c(T)\xi_i(T)}\tag{1.32}$$

Nas equações (1.31) e (1.32), o índice *i* é empregado para representar estas quantidades no plano *ab* ou ao longo do eixo *c*.

Estendendo a definição de γ , expressa pela equação (1.30), as equações (1.31) e (1.32), para $\xi_i \in \lambda_i$, respectivamente, e após de realizar as operações algébricas necessárias, obtém-se a seguinte relação:

$$\gamma = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} \tag{1.33}$$

Na figura 1.9 encontra-se esquematizada a configuração proposta pela equação (1.33) para $\xi_i \in \lambda_i$, ao longo do plano *ab* de um vórtice hipotético [17].



Figura 1.9 - Área da seção transversal de um vórtice ao longo do eixo c onde as grandezas ξ_{ab} , ξ_c , λ_{ab} , λ_c encontram-se representadas [17].

A resolução da equação (1.28), em termos de θ , onde θ é o ângulo entre o eixo *c* do material e a direção do campo magnético aplicado, pode ser aproximada a generalização anisotrópica empregada no cálculo do oscilador harmônico da seção 1.6, desta forma obtém-se a seguinte relação:

$$H_{c2}(\theta) = H_{c2}^{c}(\cos^{2}\theta + \gamma^{-2}sen^{2}\theta)^{-1/2}$$
(1.34)

Na equação anterior H_{c2}^c é o campo crítico superior para a orientação H // c. Em particular, o valor de H_{C2}^c é definido a partir da aplicação da equação (1.24), lembrando que a sua determinação levou em conta a circulação de vórtices de supercorrentes fluindo em um plano perpendicular à direção do campo magnético aplicado. Desta forma, é possível afirmar que:

$$H_{c_2}^c = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{ab}^2}$$
(1.35)

Por outro lado, para $\theta = 90^{\circ}$, teremos o campo magnético na direção do plano *ab (H // ab),* condição essa, que aplicada a equação (1.34), em conjunto com a equação (1.33), irá fornecer a seguinte expressão para $H_{c_2}^{ab}$:

$$H_{c_2}^{ab} = \frac{\phi_0}{2\pi\xi_{ab}\xi_c}$$
 1.36

Desta forma, a anisotropia de vários parâmetros supercondutores pode ser comumente relacionada entre estes através da aplicação da equação (1.37).

$$\gamma = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \frac{\lambda_c}{\lambda_{ab}} = \frac{H_{c_2}^{ab}}{H_{c_2}^c}$$
(1.37)

Na tabela 1.1 são apresentados os parâmetros supercondutores típicos para os supercondutores YBa₂Cu₃O_{7- δ} (Y-123), Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ (Bi-2212) e HgBa₂Ca₂CaCu₂O_{6+ δ} (Hg-1212) e HgBa₂Ca₂Cu₃O_{8+ δ} (Hg-1223) [21].

| Supercondutor | Тс (<i>К</i>) | $H_{c_2}^{ab}(0)$ (7) | $H_{c_2}^c(0)$ (7) | ξ _{ab} (0) (nm) | ξ _c (0) (nm) | k _{ab} | k _c |
|---------------|--------------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------------|----------------------------|-----------------|----------------|
| Y-123 | 93 | 670 | 102 | 1,80 | 0,27 | 67 | 355 |
| Bi-2212 | 91 | >530 | 19 | 4,16 | <0,15 | - | - |
| Hg-1212 | 128 | 454 | 113 | 1,71 | 0,42 | 114 | 466 |
| Hg-1223 | 138 | 389 | 88 | 1,93 | 0,44 | 76 | 339 |

Tabela 1.1 - Parâmetros supercondutores para diferentes HTSC [21].

1.8 Flutuações Termodinâmicas e a Teoria G-L

As flutuações termodinâmicas (FT) nos HTSC apresentam uma magnitude consideravelmente maior que aquelas observadas para os supercondutores convencionais do tipo II [22]. Em particular, a primeira estimativa numérica sobre a contribuição das FT para a capacidade térmica de supercondutores, nas proximidades de T_c , foi feita por Ginzburg [17]. Nesse estudo, ele mostrou que as FT aumentam consideravelmente a capacidade térmica do material já em $T > T_c$ o que atenuava sensivelmente a magnitude do salto apresentado pela capacidade térmica, em $T \approx T_c$.

Além da capacidade térmica, outras propriedades [22-25] como condutividade elétrica, susceptibilidade diamagnética, poder termoelétrico, condutividade térmica e etc, apresentaram variações significativas em seu comportamento quando $T \approx T_{c.}$

Por outro lado, na presença de campo magnético o efeito proveniente das FT sobre algumas das propriedades dos HTSC é intensificado [22-24]. A aplicação de campos magnéticos elevados efetivamente promove a supressão do alcance das FT ao longo da direção perpendicular na qual este foi aplicado. Esta situação promove a redução da dimensionalidade das FT [24]. Neste cenário, as FT além de influenciarem

várias propriedades físicas dos HTSC, também tornam-se responsáveis por promover mudanças significativas na dinâmica de vórtices destes materiais. Mudanças essas, identificadas pela divisão da fase mista em duas regiões distintas, conforme ressaltado pela figura 1.6.

De maneira específica, a quantificação da relevância, em escala mesoscópica, das FT nos supercondutores do tipo II é obtida a partir da aplicação do conceito do parâmetro de Ginzburg, *Gi* [22, 25,37], dado por:

$$G_{i} = \left(\frac{T_{c}}{4\pi f_{GL}\xi^{2}\xi_{c}}\right)^{2} = \left(\frac{16\pi^{2}T_{c}\kappa^{2}\xi\gamma}{\phi_{0}^{2}}\right)^{2}$$
(1.38)

Na equação anterior f_{GL} é a densidade de energia de condesação do estado supercondutor, definida pela equação (1.5). O valor típico de G_i para os supercondutores convencionais do tipo II situa-se entre 10^{-7} e 10^{-5} [2, 22, 25,37] ao passo que para os HTSC estes valores passam para a faixa de 10^{-3} e 10^{-2} [22, 25,37].

Conforme discutido no parágrafo anterior, o forte efeito das FT, em particular, nas proximidades da transição normal-supercondutor dos HTSC, desabilita o emprego da equação para energia livre G-L, equação (1.6), levando apenas em consideração os efeitos das FT a nível microscópico, ou seja, através da dependência em função da temperatura apresentada pelos coeficientes da equação (1.4).

A quantificação dos efeitos mesoscópicos das FT nos HTSC e sua devida incorporação na expressão da energia livre G-L se dá por meio da realização de um tratamento estatístico em termos da aplicação de alguns conceitos da mecânica estatística de Boltzmann [26]. De acordo com a teoria de Boltzmann, quando tratar-se de um ensamble canônico, a função de partição é dada pela seguinte integral funcional [26]:

$$Z = \int D \,\psi \exp\left(-\frac{F}{K_B T}\right) \tag{1.39}$$

onde o termo no integrando recebe a denominação de fator de Boltzmann, F é a energia por estado ocupado e k_B é a constante de Boltzmann. De acordo com a teoria

de Boltzmann as médias estatísticas obedecem a expressão dada pela equação (1.40).

$$\langle f \rangle = \frac{\int exp\left(-\frac{H}{k_B T}\right) f \, d^3 r}{\int exp\left(-\frac{H}{k_B T}\right) d^3 r} \tag{1.40}$$

A interligação entre o formalismo da teoria de Boltzmann com a teoria G-L se dá a partir da compreensão da energia por estado ocupado em termos da energia por estado do parâmetro de ordem supercondutor, expresso pela equação (1.6). De acordo com esta aproximação é possível escrever a equação (1.39) como:

$$Z = \int D\psi \exp\left\{-\int \frac{1}{k_B T} \left[\alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2} \beta |\psi|^4 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar \nabla}{i} - \frac{e^* \vec{A}}{c} \right) \psi \right|^2 \right] d^3 r \right\}$$
(1.41)

Antes de finalizar-se este capítulo, é importante destacar que a energia livre de Helmoltz encontra-se relacionada a função de partição, equação (1.39), por meio de:

$$F = -K_B T ln(Z) \tag{1.42}$$

2 O FORMALISMO LOWEST LANDAU LEVEL (LLL) APLICADO A MAGNETIZAÇÃO DE SUPERCONDUTORES DO TIPO II

Neste capítulo será apresentado e discutido o formalismo LLL o qual será empregado no tratamento dos efeitos das FT nas propriedades de calor específico, magnetização e resistividade elétrica dos HTSC. Em particular, dar-se-á ênfase ao efeito dessas sobre o comportamento da magnetização na fase reversível do diagrama *H-T* e nas proximidades da transição normal-supercondutor(N-S) onde os efeitos das FT críticas tornam-se relevantes.

2.1 Flutuações Termodinâmicas na Magnetização: Caracterização dos seus Efeitos nas Proximidades da Transição (N-S).

Na seção 1.8 deu-se ênfase, de maneira ampla, aos efeitos das FT sobre algumas das propriedades supercondutoras dos HTSC e especialmente como estes efeitos eram incorporados na expressão da densidade de energia livre G-L. Nesta seção, será abordada de maneira geral a caracterização experimental e o formalismo teórico empregados na descrição e na interpretação dos efeitos das FT sobre o comportamento da magnetização nos HTSC, bem como, será ressaltado a limitação apresentada pelo formalismo Gaussiano na descrição destes efeitos.

A aplicação das equações G-L, equações (1.7) e (1.10), na descrição do comportamento da magnetização dos HTSC, ao longo de todo o seu estado misto, não é possível em virtude do caráter não-linear apresentado por estas quando acopladas entre si. Entretanto, para algumas regiões distintas da fase mista do diagrama *H*-*T* esta possibilidade é real. Uma delas é a região denominada de alto campo, localizada nas proximidades de $Hc_2(T)$, e a outra é a região de campo intermediário ($Hc_1 < H \ll Hc_2$) [25].

Especificamente, iremos nos deter a região de alto campo ($H \approx Hc_2$), onde os efeitos das FT no comportamento da magnetização, por volume, M(T,H) são mais robustos. Nesta região, o comportamento de M(T,H) é descrito pela aplicação da equação (2.1), cuja origem é dada a partir do uso das equações G-L linearizadas:

$$-4\pi M = \frac{Hc_2(T) - H}{(2k^2 - 1)\beta_A}$$
(2.1)

Na equação (2.1) β_A é um fator numérico relacionado a estrutura da rede de vórtices [25], onde $\beta_A = 1,16$ para uma rede hexagonal [25], e *k* é o parâmetro G-L, definido pela equação (1.13).

O comportamento descrito pela equação (2.1) é reproduzido experimentalmente pelos dados de M(T,H) ilustrados na figura 2.1 os quais ressaltam o comportamento de M(T,H) para uma amostra de NbTi, classificada como supercondutor do tipo II convencional, quando essa foi submetida a aplicação de campos magnéticos superiores a 10kOe [25].



Figura 2.1 - Comportamento das curvas de m(H,T) para uma amostra de NbTi [25], onde a magnetização, *m* é expressa em e.m.u.

É possível verificar na figura anterior que nas proximidades de $T_c(H)$ as curvas de m(T,H) apresentam um comportamento linear em função de T e H, no limite $Hc_2(T) \propto (T - T_c)$. É possível verificar também que a inclinação das linhas sólidas, as quais reproduzem o comportamento de m(T,H) nas proximidades de $T_c(H)$, permanece praticamente inalterada, conforme sugere a equação (2.1). A determinação desta inclinação fornecerá uma estimativa para o parâmetro k, ao passo que a extrapolação do seu comportamento linear, em relação a linha da base m(T) =0, fornecerá $T_c(H)$ e consequentemente $Hc_2(T)$. Por outro lado, o comportamento de m(T,H), do ponto de vista ilustrada pela figura 2.1, é muito diferente para os HTSC. Por exemplo, na figura 2.2, o comportamento de M(T,H) para um monocristal de YBa₂Cu₃O_{7-δ} é analisado sobre o mesmo ponto de vista empregado na figura anterior [27], ou seja, quando *H* é aplicado paralelamente ao eixo cristalográfico *c* do monocristal, da mesma forma, para um monocristal de Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, cujo o comportamento de *M*(*T*,*H*) encontra-se ilustrado na figura 2.3. Tanto na figura 2.2 quanto na figura 2.3, *M*, encontra-se expresso em termos de *M* = *m*/V onde *m* é dado em emu e, *V* é o volume da amostra, dado em cm³ [25, 27].



Figura 2.2 - O comportamento de M(T,H) para uma amostra de YBa₂Cu₃O_{7- δ}. As linhas sólidas fornecem uma estimativa para a intensidade de $T_c(H)$. [27]



Figura 2.3 - Comportamento de M(T,H) para amostra monocristalina de Bi-2212. O ponto destacado pela seta, representado pela letra T^* é denominado de temperatura de "crossing point" [28].

É importante realizar o contraste entre os comportamentos de M(T,H)apresentados nas figuras 2.2 e 2.3, com o apresentado na figura 2.1. O comportamento de M(T,H) nas figuras 2.2 e 2.3, mostra-se bastante afetado com a intensificação do valor de campo magnético aplicado. Além disso, é perceptível o alargamento e o arredondamento, na escala da temperatura, do comportamento de M(T,H) nas proximidades da linha de base M(T,H = 0). Estas particularidades apresentadas pelos dados de M(T,H) encontram-se associadas ao papel relevante desempenhado pelas FT nas proximidades da transição (N-S) dos HTSC [25].

A intensificação dos efeitos das FT nos dados de M(T,H) da amostra de Bi₂Sr₂CaCu₂O, em relação aos apresentados pela amostra de YBa₂Cu₃O_{7-δ}, está associado ao diferente valor apresentado pelo parâmetro de anisotropia γ , definido pela equação (1.30). Enguanto que para o YBa₂Cu₃O_{7- δ_1} optimanente oxigenado, γ assume valores entre 5 e 7 [29-30], para o Bi₂Sr₂CaCu₂O₈, $\gamma \sim 150$ [31]. Além disso, é possível verificar, que no caso da figura 2.3, M(T,H) apresenta uma temperatura na qual os valores de M(T) mostram-se independentes de H. Esta temperatura recebe a denominação de temperatura de "*crossing point*", T* [25, 28, 32-34]. O fenômeno de *"crossing point*", igualmente observado em amostras monocristalinas desoxigenadas de YBa₂Cu₃O_{7-δ} [32-34], torna não-físico a interpretação de alguns dos parâmetros supercondutores, obtidos a partir da aplicação da teoria G-L [35]. Em particular, os valores de $T_c(H)$ na figura 2.3, obtidos a partir da aplicação do critério empregado na figura 2.1, irão indicar um provável aumento de $T_c(H)$, em função do aumento de H, para o supercondutor em questão. Desta forma, o emprego da teoria G-L, concebida em termos da aproximação de campo médio [37] não se mostra apropriada para a descrição do fenômeno real, necessitando, portanto, ser revista.

2.2 A Energia Livre G-L Sob o Ponto de Vista da Aproximação de Hartree

Conforme discutido em algumas seções do capítulo 1, a incorporação dos efeitos provenientes das FT na teoria G-L se dará por meio da adequação da energia livre G-L ao formalismo descrito pelos níveis de Landau [38]. Esta adequação começa a ser construída a partir dos acolhimentos do termo quártico da equação (1.6) em conjunto com a função de partição apresentada na equação (1.41), agora, aplicados

a aproximação de Hartree [39]. Esta aproximação reescreve o termo quártico da equação (1.6) da maneira expressada pela equação (2.2):

$$|\psi|^4 = \langle \psi^2 \rangle |\psi|^2 \tag{2.2}$$

Na equação anterior, $\langle \psi^2 \rangle$ representa a média estatística do parâmetro de ordem. A representação do termo quártico, da maneira na qual encontra-se expresso na equação (2.2), é empregada na descrição da natureza da interação individual de um determinado parâmetro de ordem com o todo, ou seja, as interações entre diversos parâmetros de ordem irão se efetivar por meio de uma média estatística.

Por outro lado, a adoção deste formalismo permite que a função partição da equação (1.41) possa ser resolvida de forma exata, por meio da aplicação do formalismo Gaussiano, entretanto, não apresentado os incovinientes observados quando o termo quártico $|\psi|^4$ não é considerado, para maiores detalhes verifique o Apêndice A.

Agora, submetendo a equação (1.41) a aproximação de Hartree, equação (2.2), obtém-se:

$$Z = \int D\psi \exp\left\{-\int \left[\frac{1}{k_B T} \left(\bar{\alpha} |\psi|^2 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(-\frac{\hbar \nabla}{i} - \frac{e^* \vec{A}}{c}\right) \psi\right|^2\right) \right] d^3r\right\}$$
(2.3)

É importante ressaltar que a variável $\bar{\alpha}$ foi obtida a partir da introdução das equações (2.2) e (1.6), o que implicou na seguinte troca de variável:

$$\bar{\alpha} = \alpha + \beta \langle \psi^2 \rangle \tag{2.4}$$

Na seção 1.7, foi tratada de maneira geral, a questão da anisotropia planar apresentada por ξ , λ e H_{c2} a qual foi introduzida através da aplicação dos conceitos de tensor de massa , equação (1.29), e do fator de anisotropia, equação (1.30). Em particular, a equação (1.34) tratou da dependência angular de $H_{c2}(\theta)$. Desta forma, a caracterização da magnetização, bem como do calor específico, em termos da anisotropia (da dependência angular) planar frente a aplicação de campo magnético, torna-se um propósito relevante. Buscando atingir este fim, aplica-se a seguinte condição de calibre para tratar dessa dependência, ou seja:

$$A_{\nu} = H(x\cos\theta - z\sin\theta) \tag{2.5}$$

Na equação anterior, *H* encontra-se aplicado ao longo do plano xz, e exibe um ângulo θ em relação ao eixo *z*, que por sua vez coincide com o eixo cristalográfico *c* do material.

A função da energia livre, *F* obtida a partir da aplicação da equação (1.42), levando em consideração os efeitos de anisotropia sobre o seu comportamento, é descrita pela equação (2.6): (para maiores detalhes veja o apêndice B):

$$F = -\frac{k_B T e^* H V g(\theta)}{4\pi^2 c\hbar} \int \sum_{n=0}^{\infty} ln \left(\frac{\pi k_B T}{\bar{\alpha}_{\theta} + 2nh_{\theta} + \xi_{ab}^2(0)g(\theta)k^2} \right) dk$$
(2.6)

Na equação anterior, V é o volume, e *n* encontra-se relacionado a natureza dos diferentes níveis de Landau, *k*, nesta equação, é o vetor de onda relativo a localização dos níveis de Landau. As quantidades ξ_{ab}^2 , $\bar{\alpha}_{\theta}$, h_{θ} e $g(\theta)$ são definidas a seguir:

$$\xi_{ab}^2 = \frac{\hbar^2}{2am_{ab}^*} \tag{2.7}$$

A equação (2.7) é oriunda da equação (1.31) e representa o comprimento de coerência ao longo do plano cristalográfico *ab* para um supercondutor anisotrópico. A variável $\bar{\alpha}_{\theta}$ é dada por:

$$\bar{\alpha}_{\theta} = \bar{\alpha} + h_{\theta} \tag{2.8}$$

onde a variável $\bar{\alpha}_{\theta}$ representa a dependência angular da variável $\bar{\alpha}$, tomada a partir de uma média estatística do parâmetro de ordem, em termos da correspondente dependência angular de h_{θ} (densidade de fluxo magnético a nível microscópico). Ela desempenha um papel semelhante ao de α_{H} , empregado na aproximação Gaussiana do apêndice A. Por outro lado, a variável h_{θ} é definida como:

$$h_{\theta} = \xi_{ab}^{2}(0) \left(\frac{e^{*}H}{\hbar c}\right) \left(\frac{m_{ab}^{*}}{m_{c}^{*}}\right)^{1/2} g(\theta)^{1/2}$$
(2.9)

ao passo que a quantidade $g(\theta)$ é dada por:

$$g(\theta) = sen^2\theta + \frac{m_c^*}{m_{ab}^*}cos^2\theta$$
(2.10)

Agora, o comportamento da magnetização de um certo sistema pode ser obtido uma vez que sua energia livre seja conhecida. Essa ação é possível através da aplicação da seguinte relação termodinâmica:

$$M = -\left(\frac{\partial F}{\partial H}\right)_T \tag{2.11}$$

Desta forma, aplicando a equação (2.6) na equação anterior obtém-se:

$$M = -\frac{k_B(e^*)^2 V H T g(\theta)}{8\pi \hbar c^2 (am_c^*)^{\frac{1}{2}}} \sum_{n=0}^{\infty} (\bar{\alpha}_{\theta} + 2nh_{\theta})^{-\frac{1}{2}}$$
(2.12)

A determinação do comportamento de *M* ainda não é possível apenas com a aplicação da equação anterior, uma vez que o comportamento da variável $\bar{\alpha}_{\theta}$ precisa ser conhecido. De acordo com este contexto, o cálculo de $\bar{\alpha}_{\theta}$ se dará a partir da elaboração da equação (1.40) em termos da definição expressa pela equação (2.4) o que permite, por analogia, definir:

$$\bar{\alpha}_{\theta} = \alpha_{\theta} + \beta \frac{\int \psi^2 exp(-F/k_B T) d^3 r}{\int exp(-F/k_B T) d^3 r}$$
(2.13)

cuja resolução analítica fornece o seguinte resultado:

$$\bar{\alpha}_{\theta} = \alpha_{\theta} + \frac{e^* k_B \beta HT(m_{ab}^*)^{1/2} g(\theta)^{1/2}}{2\sqrt{2\pi}c\hbar^2 a^{3/2}} \sum_{n=0}^{\infty} (\bar{\alpha}_{\theta} + 2nh_{\theta})^{-1/2}$$
(2.14)

Desta forma, o uso em conjunto das equações (2.12) e (2.14) permite tornar possível o cálculo de *M* levando em consideração a anisotropia intrínseca do material. É importante destacar que tanto a equação (2.12) quanto a equação (2.14), além das variáveis destacadas, apresentam somatório sobre os níveis de Landau [38]. O espaçamento entre os níveis de Landau encontra-se diretamente correlacionado a magnitude do campo magnético aplicado. Desta forma, se os campos magnéticos aplicados forem capaz de produzirem um aumento do espaçamento entre os níveis, o qual torne pouco provável que os elétrons ocupem um nível diferente do fundamental, então pode considerar-se n = 0 nas questões (2.12) e (2.14), o que implica em escrevê-las da seguinte forma:

$$M = -\frac{k_B (e^*)^2 V H T g(\theta) \bar{\alpha}_{\theta}^{-1/2}}{8\pi \hbar c^2 (a m_c^*)^{1/2}}$$
(2.15)

$$\bar{\alpha}_{\theta} = \alpha_{\theta} + \frac{e^* k_B \beta HT(m^*_{ab})^{1/2} g(\theta)^{1/2} \bar{\alpha}_{\theta}^{-1/2}}{2\sqrt{2\pi}c\hbar^2 a^{3/2}}$$
(2.16)

Ao verificar-se as equações (2.15) e (2.16), percebe-se que as mesmas são contínuas e dependem fortemente do ângulo de aplicação do campo magnético θ . A figura 2.4 ilustra o possível comportamento assumido pela magnetização, em função da temperatura, a partir da aplicação da equação (2.15), em função de diferentes valores de θ .



Figura 2.4 – O comportamento de M(T) para diferentes ângulos θ , obtidos a partir da aplicação da equação (2.15) [40].

De acordo com a figura 2.4, a resposta da magnetização é mais abrupta quando $\theta = 0^0$ (*H* paralelo ao eixo c) que as demais configurações de θ nela especificadas.

A adequação da energia livre G-L aos efeitos das FT, por meio do emprego da aproximação de Hartree, permitiu que o comportamento da magnetização, calor específico e etc, possa ser interpretado, no limite de altos campos magnéticos, em termos do formalismo LLL, entretanto, ao justapor-se as equações (2.6) e (2.15), em termos de uma variável comum, denominada de x, dada por [40]:

$$x = \frac{4\sqrt{2\hbar^2 c\pi} (a \,\bar{\alpha}_{\theta})^{3/2}}{\beta e^* k_B (m_{ab}^*)^{1/2} g(\theta)^{1/2} HT}$$
(2.17)

Obtém-se as seguintes expressões para F e M, respectivamente.

$$F = 2\beta^{\frac{1}{3}} \left(\frac{e^* k_B (m_{ab}^*)^{-\frac{1}{2}} g(\theta)^{\frac{1}{2}} HT}{4\sqrt{2} \pi c \hbar^2} \right)^{\frac{4}{3}} f(x)$$
(2.18)

$$M = -2^{5/6} V \left(\frac{e^*}{2 c}\right)^{5/3} \left(\frac{k_B H T}{2 \pi}\right)^{2/3} g(\theta)^{5/6} (m_c^*)^{-1/2} (\beta \hbar m_{ab}^*)^{-1/3} x^{-\frac{1}{3}}$$
(2.19)

Na equação (2.18), f(x) recebe a denominação de função de escala ou "scaling" a qual é definida como:

$$f(x) = (2x - 1)(x)^{-2/3}$$
(2.20)

Portanto, ao verificar-se a disposição das equações (2.18) e (2.19), pode-se constatar que o uso da aproximação de Hartree proporciona a representação de *M* e *F* em termos de um comportamento universal ("scaling") toda a vez que as quantidades termodinâmicas envolvidas, através destas grandezas, estiverem devidamente normalizadas. A próxima seção será dedicada ao tratamento experimental das propriedades de "scaling" a magnetização dos HTSC, sobre o ponto de vista do formalismo GL-LLL.

2.3 As Propriedades de Scaling da Teoria GL-LLL

As propriedades de "scaling" da teoria G-L, aplicadas ao nível fundamental do formalismo dos níveis de Landau, ou simplesmente, teoria GL-LLL, sugere que a expressão para a energia livre passa a ser escrita da forma apresentada na equação (2.18), ou seja: [25, 41].

$$F(T,H) = Hf(At)$$
(2.21)

onde A é um coeficiente independente de T e H e a variável de escala t é dada por:

$$t = \frac{T - T_c(H)}{(HT)^{(n-1)/n}}$$
(2.22)

Na equação anterior *n está* ligado a dimensionalidade do sistema, o qual pode ser 3D (n = 3) ou 2D (n = 2) [25, 41].

Por outro lado, o comportamento da magnetização, normalizada em termos da função de "scaling" GL-LLL [41], equação (2.22), é dada pela equação (2.23) [41].

$$\frac{M}{(HT)^{(n-1)/n}} \propto \frac{T - Tc(H)}{(HT)^{(n-1)/n}}$$
(2.23)

Na equação anterior, n = 3, reproduz a normalização natural prevista pela equação (2.19) para sistemas tridimensionais (3D), ou seja, $M(HT)^{-2/3}$ ao passo que n = 2 para sistemas (2D), onde $M(HT)^{-1/2}$.

Na literatura, encontram-se diversos resultados experimentais reportados para diferentes HTSC e outros supercondutores os quais confirmam o excelente escalonamento dos dados de magnetização reversível obtidos a partir da aplicação da equação (2.23) para H > 10kOe [22-24, 32-33, 40-43]. Por exemplo, a figura 2.5 ilustra a aplicação da equação, para n = 2, na descrição do comportamento da magnetização de amostras monocristalinas de YBa₂Cu₃O₇₋₈, com diferentes estados de oxigênio, e uma amostra policristalina de (Bi-Pb)₂Sr₂Ca₂Cu₃O₁₀ [42] ao passo que as figuras 2.6 e 2.7 ilustram o escalonamento da magnetização quando a equação (2.23), com n = 3, é aplicada para a descrição do comportamento desta grandeza em monocristais de YBa₂Cu₃O₇₋₈ quando H // ab, fig 2.6 e H // c, figura 2.7.



Figura 2.5 – O comportamento das curvas de M(T,H) descrito a partir da aplicação da função de "scaling 2D-LLL para diferentes amostras supercondutoras [42].



Figura 2.6 – O comportamento das curvas de M(T,H) descrito a partir da aplicação da função de "scaling" 3D-LLL para um monocristal de YBa₂Cu₃O_{7- δ} quando H // ab [43].



Figura 2.7 - O comportamento das curvas de M(T,H) descrito a partir da aplicação da função de "scaling" 3D-LLL para um monocristal de YBa₂Cu₃O_{7-δ} quando H // c [43].

É importante destacar que os dados escalonados das figuras anteriores são ajustados por funções teóricas [42-44] desenvolvidas de acordo com o contexto da teoria GL-LLL [12]. A aplicação destas qualifica e reafirma o caráter 2D ou 3D das FT nestas amostras.

As concepções as quais fundamentam analiticamente a construção destas funções teóricas são obtidas a partir da aplicação da função partição, dada pela equação (1.41), a uma aproximação não pertubativa.[45] Os autores desta proposta, levaram em consideração o fato da energia livre G-L poder ser escrita em termos de

uma função de escala f(At), equação (2.21),[25, 44-45]. Ainda de acordo com estes autores, a contribuição das FT para a energia livre G-L é aproximadamente 98% oriunda da amplitude do parâmetro de ordem e apenas 2% da sua fase [25, 45]. Isto, segundo eles, ocorre em virtude do confinamento dos pares de Cooper no LLL aumentar consideravelmente a contribuição das FT oriundas da amplitude do parâmetro de ordem. Neste cenário, a equação (1.41) é expressa em termos da modulação coletiva dos pares de Cooper no sub-espaço LLL [41].

O aspecto central da proposta de Tesanovic e Xing [44] fundamenta-se no fato de que a integração destas modulações se dá precisamente no limite termodinâmico no qual o número de vórtices tende ao infinito [45]. Desta forma, a energia livre G-L, de acordo com as considerações anteriores, na forma escalonada, considerando um sistema na qual as FT preponderante são 2D, é dada por [44].

$$f(g,U) = -\frac{1}{2}g^2U^2 + \frac{1}{2}gU(g^2U^2 + 2)^{\frac{1}{2}} + \sinh^{-1}(gU/\sqrt{2}) - s(U)$$
(2.24)

Na equação anterior, $g \cong At$, $A = \alpha' (\phi_0 d/2\beta)^{1/2}$, sendo $\alpha' = \frac{d\alpha}{dT}$, d a distância interplanar, $U = (\langle \beta_A \rangle)^{-1/2}$ e s(U) é o termo relativo as correções das FT em relação ao parâmetro de ordem, sendo que $s(U) \approx 0$. Desta forma, submetendo a equação anterior a definição (2.11), obtém-se:

$$\frac{M(H,T)}{(HT)^{1/2}}\frac{d\phi_0 H'_{c2}}{A} = gU^2 - U(g^2 U^2 + 2)^{\frac{1}{2}}$$
(2.25)

Onde, $H'_{c2} = \left| \frac{dH_{c2}}{dT} \right|$. A equação (2.25) pode ser escrita segundo uma a forma usual se considerar -se que $f(g, U) \cong f(x = At)$ [41], ou seja:

$$\frac{M(H,T)}{(HT)^{1/2}}\frac{d\phi_0 H'_{c2}}{A} = x - (x^2 + 2)^{\frac{1}{2}}$$
(2.26)

A equação (2.26) tem sido empregada com sucesso na descrição do comportamento de dados de magnetização escalados a partir da aplicação da função de escala (2.23) para duas dimensões (n = 2) [44]. Por exemplo, as linhas tracejadas na figura (2.5) representam um ajuste utilizando a equação (2.26).

Por outro lado, a energia livre G-L, na sua forma escalonada, para um sistema no qual as FT são preponderantemente 3D, é dada por [41]:

$$f(g) = -\frac{1}{2}G^2U^2 + \frac{1}{2}GU(G^2U^2 + 2)^{\frac{1}{2}} + \sinh^{-1}\left(\frac{GU}{\sqrt{2}}\right) - s'(U)$$
(2.27)

onde, por analogia, seguindo o método empregado para a obtenção de M(H,T) em duas dimensões, obtém-se agora para 3D:

$$\frac{4\pi M(H,T)H'_{C2}}{(TH)^{2/3}} \left\{ \left[\frac{4(2\pi T_c(0))^{1/2} \xi k \phi}{k_B H' c_2} \right] \right\}^{2/3} = \left[g + \left(g^2 + \frac{tan^{-1}Q}{\pi U^2} \right)^{1/2} \right]^{1/3} \left[GU^2 - U(G^2 U^2 + 2)^{\frac{1}{2}} \right]$$
(2.28)

onde, a relação entre $g \in T \acute{e}$ dada por:

$$g\left[g + \left(g^2 + \frac{tan^{-1}Q}{\pi U^2}\right)^{1/2}\right]^{1/3} = Bt$$
 (2.29)

sendo $B = \{{H'}_{c2}{}^2 \xi \phi_0 [T_c(0)]^{1/2} / [8\pi \sqrt{2}k^2 k_B] \}^{2/3}$ e $t = [T - T_c(H)] / (TH)^{2/3}$. Por outro lado,

$$U(G) = 0,818 - 0,110 \tanh\left(\frac{G+K}{M}\right)$$
(2.30)

onde K e M são parâmetros de "fitting", ao passo que a variável G é dada por:

$$G = g + I \left[g + \left(g^2 + \frac{tan^{-1}Q}{\pi U^2} \right)^{1/2} \right]$$
(2.31)

onde $I = (Q - tan^{-1}Q)/[2tan^{-1}Q]$.

Nas equações anteriores, Q, K e M são quantidades cujos valores são aproximadamente $\pi, \sqrt{2} e 2\sqrt{2}$ [46]. Por outro lado, pode verificar-se que a relação entre $g \in T$ é bastante complexa [equação (2.29)], quando comparada a observada para a equação (2.24), ($g \cong At$). A função de escala em 3D é muito mais complexa do que a função 2D, equação (2.25). Isto deve-se ao fato da existência de uma escala de comprimento extra, localizada, neste caso, ao longo do eixo *c*. Esta é empregada na contabilização da deformação dos vórtices ao longo da direção do campo magnético [46].

Desta forma, o emprego da equação (2.28) não é trivial, uma vez que U(g), equação (2.30), e G(g), equação (2.31), são funções acopladas, onde g está relacionado a T através de uma equação transcendental. Na literatura, encontra-se listado, de acordo com o nosso conhecimento, apenas uma publicação empregando a equação (2.28) na descrição do comportamento de M(H,T). Este resultado encontrase ilustrado por meio da linha sólida nas figuras 2.6 e 2.7. De acordo com os autores deste trabalho, o emprego da equação (2.28), para a descrição do comportamento 3D-LLL dos dados de suas amostras, somente tornou-se viável quando a aproximação $U = U_0 \approx 0.8$ foi considerada [43, 46].

Uma alternativa a aplicação da equação (2.28) é apresentada na literatura por Salem-Sugui e colobaradores [43]. Utilizando as ideias de Gerhardts [47] e Klem [48] sobre flutuações diamagnéticas em supercondutores planares, estes autores caracterizam a dimensionalidade do sistema $Ba_{1-x}K_xFe_2$ As₂ (x = 0,28 e 0,25) monocristalino.

A figura 2.8 ilustra o colapso das diversas curvas de magnetização reversíveis expresso em termos da função de escala 3D-LLL, figuras (a) e (b) principais, e 2D-LLL, "insert" da figura (a), para monocristais Ba_{1-x}K_xBaFe₂As₂ (x = 0,28 e 0,25) quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe foram aplicados paralelamente ao eixo *c* dos monocristais.



Figura 2.8 - O comportamento das curvas de M(T,H) dos monocristais de Ba_{1-x}K_xBaFe₂As₂ (x = 0,28 e 0,25) descrito em termos das funções 2D e 3D GL-LLL [43].

De acordo com a figura anterior, tanto a função de escala 2D-LLL quanto a 3D-LLL podem serem empregadas na descrição do comportamento escalonado da magnetização reversível da amostra $Ba_{1-x}K_xFe_2As_2$ (x = 0,28). Entretanto, os autores elegem o comportamento 3D-LLL, como sendo o mais apropriado para esta descrição. Eles fundamentam a sua escolha não apenas levando em consideração a melhor disposição estatística apresentada pelos dados ajustados com a aplicação da função de escala 3D-LLL, quando comparada a disposição dos dados ajustados pela função de escala 2D-LLL, mas também pelo comportamento do parâmetro *r*, o qual é dado pela equação (2.32) [47].

$$r = 8\frac{m}{M} \left[\frac{\delta_{GL}(0)}{\pi s}\right]^2 \tag{2.32}$$

Na equação anterior, m e *M* são as massas efetivas das quasipartículas ao longo do plano e na direção perpendicular a este, s é a distância interplanar e $\delta_{GL}(0)$ é o comprimento de coerência G-L, em *T* = 0, dado por:

$$\delta_{GL}(0)^{2} = \frac{\phi_{0}}{2\pi T_{c} \left| \frac{dH_{c2}}{dT} \right|}$$
(2.33)

É importante ressaltar que o parâmetro *r* encontra-se relacionado a dimensionalidade do sistema e é expresso pela equação (2.32), quando tratar-se de supercondutores planares com campo magnético aplicado perpendicular à sua estrutura de planos [47]. Nesse cenário, o comportamento da magnetização dos sistemas supercondutores, classificados como limpos, pode ser afetado por efeitos não locais, como, por exemplo a interação com impurezas [47] o que remete ao emprego da equação (2.32), para a descrição do parâmetro *r*. Por outro lado, a equação (2.34) é empregada quando tratar-se de um supercondutor planar no limite sujo, ou seja, quando o comportamento da magnetização é afetado por FT de frequência finita [47].

$$r = \frac{2\hbar mD}{k_B M s^2 T_{c0}} \tag{2.34}$$

Na equação anterior *D* é a constante de difusão para um sistema bidimensional e $T_{c0} = T_c(H = 0)$.

Desta forma, Salem-Sugui e colaboradores [43], empregando a equação (2.32), determinaram o valor de $r \cong 0,1$ para ambos os monocristais de Ba_{1-x}K_xBaFe₂As₂ (x = 0,28 e 0,25) e utilizaram o comportamento de *H* / *H*_{C2}(*T* = 0) versus *r*, ilustrado na figura 2.9, proposto por Gerhardts e colaboradores[47] para analisar o caráter da dimensionalidade das FT de suas amostras.



Figura 2.9 - Diagrama $H/H_{C2}(0)$ versus *r* obtido por Gehardts e colaboradores [47] e empregado por Salem – Sugui e colaboradores para classificar a dimensionalidade das FT nas amostras de Ba₁₋ _xK_xBaFe₂As₂ (x = 0,28 e 0,25) [43].

Como ressaltado anteriormente, o comportamento $de H/H_{C2}(0)$ versus *r*, representado na figura anterior, tem como finalidade a determinação da dimensionalidade de sistemas supercondutores do tipo II convencionais, o que torna possível a sua aplicação nos HTSC.

Na figura anterior, a linha identificada como "dimensionality crossover" separa os regimes 2D do 3D. Por outro lado, a linha identificada como "dynamical cutoff" divide o diagrama em termos da predominância de efeitos não locais na eletrodinâmica e das FT de frequência finita, região inferior da figura, do comportamento da magnetização onde os efeitos dinâmicos das FT são de alta energia, região superior da figura, a partir da linha considerada [47-48].

Desta forma, considerando $\mu_0 H_{C2}(0) \approx 100$ T para H // c nos monocristais de Ba_{1-x}K_xFe₂As₂ [49] e levando em consideração que o valor mais elevado de campo magnético aplicado pelo autores neste trabalho foi de 5T, é possível verificar, empregando o comportamento de $H/H_{C2}(T = 0)$ versus *r*, na figura 2.9, que a dimensionalidade das FT neste sistema é 3D, o que está de acordo com a descrição do comportamento da magnetização reversível apresentado na figura 2.8 em termos de uma função de escala 3D-LLL.

2.4 Os Limites de Aplicabilidade do Scaling GL-LLL e o Modelo 3D-XY

A função de escala GL-LLL, representada na equação (2.23), foi concebida para descrever o comportamento da magnetização dos supercondutores do tipo II, nas proximidades da região de transição do diagrama H-T desses, onde os efeitos das FT na amplitude do parâmetro de ordem supercondutor são regidos pelo formalismo LLL [25]. O intervalo em temperaturas no qual o comportamento das FT pode ser descrito em termos do formalismo LLL mostra-se fortemente dependente da aplicação de H, equações (2.15) e (2.16). Desta forma, a delimitação da aplicabilidade da teoria GL-LLL, para um determinado intervalo de temperatura ΔT [25], a partir de T_c , pode ser estimado por: $\Delta T \cong G_i(0) T_c$, onde $G_i(T = 0)$ é o número de Ginzburg, equação (1.38) [25]. Esta estimativa para ΔT foi concebida considerando um sistema 3D na ausência de campo magnético aplicado [25]. Ela apresenta o inconveniente de fornecer o valor de ΔT a partir da determinação indireta de $\xi(0)$, que por sua vez, introduz uma forte imprecisão ao valor de ΔT . Uma alternativa a utilização de $\xi(0)$ no cálculo de ΔT é fornecida pelos autores da referência [41]. Eles definem o cálculo de $G_i(0)$ como $G_i(0) = (T_c(0) - T^*)/T^*$ onde $T_c(0) = T_c e T^*$ é a temperatura "crossing *point*^{\prime}, indicada na figura 2.3. Na literatura, $G_i(0) \approx 0.010$ para o YBa₂Cu₃O₇₋₈[25, 41].

Conforme foi comentado no início desta seção, a aplicação do formalismo GL-LLL encontra-se vinculado a aplicação de um campo magnético que atenda a condição $H > H_{LL}^1(T)$, [25,41] onde $H_{LL}^1(T)$ é o valor de campo magnético a partir do qual é possível estabelecer um intervalo de separação, no diagrama H-T, entre o nível fundamental e os demais níveis ocupados pelas órbitas de Landau. Uma estimativa para $H_{LL}^1(T)$ é obtida a partir da aplicação da seguinte relação empírica: $H_{LL}^1 \approx$ $1/3H_{c2}(T)$. [25]. A figura 2.10 ilustra, esquematicamente, ao longo do diagrama H-T, a separação entre H_{LLL} (proximidade de $H_{c2}(T)$) e H_{LL}^1 de um supercondutor do tipo II [41].



Figura 2.10 - Representação esquemática para os níveis de Landau ao longo do diagrama *H*-*T* de um supercondutores do tipo II [41, 25].

De acordo com o ilustrado pela figura 2.10, é possível observar que quando $H \le H_{LL}^1$ o comportamento das FT deverá ser expresso em termos dos "higher Landau level" (H_{LL}). Na figura 2.10, o limite superior a H_{LL}^1 pode ser estimado a partir do emprego de G_i , onde o valor de H_{LL}^1 é obtido a partir de $H/H_{c2}(0) \approx (G_i/16) (T/T_c(0))$, o qual apresenta um valor estimado em torno de 8kOe para o supercondutor de Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ [25].

O estabelecimento de um formalismo em termos de H_{LL} para tratar os efeitos das FT na energia livre G-L não é aplicável uma vez que no limite de baixos campos magnéticos a integralidade dos níveis de Landau é destruída principalmente em razão da relevância do termo quártico de ψ na expressão da energia livre G-L, da equação (1.3). Neste cenário, o espaçamento da frequência de "cyclotron" entre os diferentes níveis de Landau torna-se menor do que a magnitude da interação em virtude do termo $|\psi|^4$ o que promove a indissociabilidade entre os níveis de Landau, tornando a contribuição de todos necessária para a descrição dos efeitos das FT em $H < H_{LL}^1(T)$ [25].

Na figura 2.10 pode-se verificar que a região crítica em torno de $H_{c2}(T)$, estimada em termos de $G_i(0)T_c$, onde a teoria LLL é aplicada, encontra-se delimitada pelos limites pontilhados, da mesma forma para a região crítica em torno de $H_{LL}^1(T)$, onde a aproximação GL-LLL não se aplica. É importante destacar que a delimitação
destas regiões críticas, ao longo do diagrama *H-T,* pode ser mais ampla do que projeta a figura 2.10.

Os valores de *H*, os quais compõem o regime de baixos campos magnéticos, encontram-se situados entre as regiões pontilhadas em torno de $H_{LL}^1(T)$. Por outro lado, T^* localiza-se próximo a região da fronteira inferior do regime LLL, em torno de $H_{c2}(T)$ [41]. Entretanto, a verificação da reprodutibilidade da função de escala da equação (2.23), para $T < T^*$, nos HTSC, figura 2.3, [44, 25] sugere que a aplicação do formalismo GL-LLL pode se estender para além do limite inferior da região crítica localizada em torno da linha de $H_{c2}(T)$.

Tesanovic e Andreew buscaram estabelecer uma relação analítica para a determinação da temperatura, em função de *H*, a partir da qual a aplicação da teoria GL-LLL tornaria-se efetiva. Eles determinaram que esta temperatura, denominada de T_{LLL}^{i} , irá obedecer aos parâmetros estipulados pela equação (2.35) [41]:

$$T_{LLL}^{i}(H) \ge T_{c}(0) - 3H \left| \frac{dH_{c2}}{dT} \right|^{-1}$$
 (2.35)

No caso de um monocristal de Bi₂Sr₂CaCu₂O₈ [52] $T_C(0) \approx 87,32K$, $d\mu_0 H_{c2}/dT = 2,73 T/K \in \mu_0 H = 5T$ o que fornece $T_{LLL}^i \approx 81,8K$. Por outro lado, o limite superior de T_{LLL} é definido através da aplicação do critério de Ginzburg. Desta forma, pode-se verificar que o formalismo LLL é adequado para a descrição do fenômeno das FT críticas nos HTSC quando $H > H_{LL}^1(T)$ são utilizados. Por outro lado, no regime de campos magnéticos aplicados onde $H < H_{LL}^1(T)$ a descrição deste fenômeno encontra-se além do alcance do formalismo baseado nos níveis de Landau, sendo mais apropriado, portanto, descrevê-lo em termos do formalismo XY aplicado ao parâmetro de ordem [53-54], o qual será abordado de maneira simplificada nos parágrafos vindouros.

O modelo 3D-XY é fundamentado nas teorias de normalização de grupo e "scaling" [53-54]. Através destas propriedades e das ideias de universalização, formas de escalonamento para a descrição do comportamento de diferentes variáveis termodinâmicas podem serem concebidas, nas proximidades de um ponto crítico característico. Estas variáveis, uma vez determinadas, permitirão o cálculo dos expoentes críticos para modelos específicos. No caso específico dos HTSC, o modelo 3D-XY em questão se assemelha ao empregado na descrição da transição em superfluídos como o He.

Neste contexto, o efeito das FT sobre a magnetização também é contabilizado em termos de uma função de escala 3D, onde o expoente crítico é dado por: $v \approx 2/3$ [53-54]. Neste contexto, a função de escala para a energia livre de Helmoltz é dada pela equação (2.36)

$$(H,T) = H^{\frac{D}{2}} f_{xy}(y)$$
(2.36)

Na equação anterior *D* é a dimensionalidade do sistema e $f_{xy}(y)$ é a função de escala do modelo XY, onde *y* é a variável de escala dada por:

$$y = \frac{[T.T_c^{-1} - 1]}{H^{\frac{1}{2\nu}}}$$
(2.37)

O uso da equação (2.36) em conjunto com a equação (2.37) irá fornecer a forma analítica da função de escala empregada para a determinação do comportamento 3D da magnetização, a qual é dada por:

$$M(H,T) = H^{0,5}m_{xy}(y)$$
(2.38)

onde o valor 0,5 é obtido para um sistema 3D. A função de escala descrita na equação (2.38) é empregada com o sucesso na descrição do comportamento em escala da magnetização quando $\mu_0 H \leq 1$ T são aplicados [22-23]. O comportamento da magnetização do monocristal de YBa₂Cu₃O_{7-δ}, ilustrado na figura 2.9 [23] é escalado com a aplicação dessa funcionalidade.



Figura 2.11 - O "scaling" da magnetização usando o formalismo 3D-XY para um monocristal de YBa₂Cu₃O_{7- δ}, quando $\mu_0 H \leq 1$ T são aplicados paralelamente ao plano *ab* [23].

Alguns estudos listados na literatura argumentam que a função de escala descrita pela equação (2.38) pode ser estendida para a região de campos magnéticos localizado entre $1T < \mu_0 H < 10T$ [22-23, 55-56]. Entretanto, é importante ressaltar que o modelo 3D-XY é concebido levando em consideração o caráter das FT predominantes no limite de baixos ou na ausência de campos magnéticos aplicados. Por outro lado, o modelo 3D-XY não incorpora contribuições provenientes das propriedades dos vórtices [22-23, 55-56].

Ao concluir esta seção, é importante destacar que os efeitos das FT no comportamento da magnetização DC não será pesquisado neste trabalho para o intervalo de baixos campos magnético aplicados ao longo do diagrama *H-T*.

3 ASPECTOS GERAIS DO COMPOSTO YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}: O EFEITO DA PRESSÃO QUÍMICA

A aplicação de pressão hidrostática sobre os planos supercondutores dos HTSC constitui uma importante ferramenta empregada com o objetivo de fornecer resultados experimentais os quais colaborem para a elucidação do mecanismo responsável pela elevação do valor de T_c nestes sistemas. Por outro lado, o comportamento de T_c nestes sistemas está fortemente conectado a natureza da composição química da estrutura dos HTSC, o que incentiva o emprego das substituições químicas como outra importante ferramenta para a busca de informações as quais colaborem para a otimização das propriedades físicas dos supercondutores.

Neste capítulo iremos abordar, de maneira geral, os efeitos provenientes da pressão química introduzida na estrutura do supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ}, por meio da substituição parcial do Ba por Sr, sobre algumas das propriedades supercondutoras desse sistema. E quando oportuno, realizar um paralelo com os efeitos provenientes da aplicação de pressão hidrostática.

3.1 A Estrutura Cristalina

A figura 3.1A ilustra a disposição atômica da cela unitária do composto YBa₂₋ xSrxCu₃O_{7-δ} onde a posição ocupada pelo átomo de Sr, nesta estrutura, encontra-se em destaque.



Figura 3.1 - A) Estrutura da cela unitária do compostoYBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ} [57], B). As variações das distâncias interatômicas devido a concentração Sr nesta estrutura [58].

A estrutura cristalina do YBa₂Cu₃O_{7- δ} é ortorrômbica, [59] os três parâmetros de rede característico são: a = 3.82Å, b = 3.89Å, c = 11.68Å [59]. De maneira geral, a cela unitária do YBa₂Cu₃O_{7- δ}, é constituída por um átomo de Y, justaposto entre dois planos supercondutores de cobre-oxigênio [Cu₂ – (O₂- O₃)] os quais, por sua vez, encontram-se unidos as cadeias lineares de cobre–oxigênio (Cu₁-O₄) por meio dos átomos do oxigênio apical O₁. Entre os planos supercondutores, responsáveis pela supercondutividade, e as cadeias lineares, denominadas de reservatórios de cargas, localiza-se o Ba.

A estrutura cristalina, do YBa₂Cu₃O_{7- δ} é fortemente dependente do conteúdo de oxigênio (7 - δ) [19]. Por exemplo, a estrutura deixará de ser ortorrômbica e passará a ser tetragonal, caso $\delta \leq 0.5$ [19].

Por outro lado, a figura 3.1B ilustra o comportamento apresentado pelas distâncias interatômicas dos elementos que constituem a estrutura cristalina do YBa₂Cu₃O₇₋₈ quando o Ba é parcialmente substituído por Sr [57, 60]. Conforme mostra a figura 3.1A, o Sr (região hachurada) substitui diretamente o Ba (Ba/Sr) em proporções que podem atingir até 50% [57, 60]. A partir da análise da figura 3.1B, é

possível verificar-se que conforme a proporção de Ba substituído por Sr aumenta a distância interatômica Cu2-O1 sofre uma rápida diminuição, ao passo que a distância interatômica Cu1-O1 decresce suavemente. Por outro lado, a distância interatômica (Ba/Sr) - (O2-O3) diminui com taxa semelhante a observada para a diminuição da distância interatômica Cu2-O1. Desta forma, Kakihama e colaboradores [57] concluíram que o menor tamanho do átomo de Sr (1.31 Å), em relação ao do Ba (1.47 Å) produz uma compressão na cela unitária do YBa₂Cu₃O_{7-δ}, distorcendo, principalmente, a região compreendida entre os planos de condução e as cadeias lineares, localizada ao longo da direção cristalográfica *c*. De fato, de acordo com os dados da referência [58], a distorção da estrutura ortorrômbica, definida como s = [2(*b*-*a*)/(*b*+*a*)], sendo *a e b* os parâmetros de rede [58], no composto Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₃O_w ($x \le 0,65 \in w \ge 6,68$) é bastante acentuada e maior do que a observada no sistema YBa₂Cu₃O_w. Os comportamentos de *s*, dos parâmetros de rede *a*, *b*, e *c*, bem como do volume da cela unitária, *V*, no composto Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₃O_{7-δ}, são ilustrados na figura 3.2 A e B.



Figura 3.2 - O comportamento de *c* e V, B) O comportamento de *a*, *b* e *S*, ambos em função da concentração de Sr no YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} [58].

É possível verificar na figura 3.2(A) que o eixo *c* decresce linearmente em função de *x* a uma taxa bastante elevada o que vai de encontro a proporcional redução observada para as distâncias interatômicas Cu2-O1 e (Ba/Sr)-(O2-O3), ilustrada na figura 3.1(B). De maneira semelhante, mas, a uma taxa bem mais suave, observa-se

o decréscimo linear do parâmetro *b* ao passo que para o parâmetro *a*, este decréscimo se dá de maneira não-linear. Estes comportamentos, apresentados pelos os eixos *a* e *b* em função de *x*, são justificados em virtude da diminuição da distância interatômica Cu1-O4 em função de *x*. Por outro lado, para valores x < 0,5 o decréscimo do parâmetro *a*, se dá à uma taxa mais elevada que a observada para o parâmetro *b*, o que justifica o aumento da distorção ortorrômbica observada para x < 0,625.

Entretanto, a atenuação do decréscimo do parâmetro a quando x < 0,625, pode ser justificado pela possível ocupação de uma posição na estrutura pelos os átomos de O5 [58], os quais, nesta circunstância, encontram-se distribuídos ao longo das cadeias de Cu1-O4 na estrutura da figura 3.1A. A existência dos átomos de O5, por sua vez, tornaria menos anisotrópica a região em torno dos átomos de Sr em relação as cadeias de Cu1-O4, o que resultaria na observação de uma menor taxa para o decréscimo do parâmetro a.

A tabela 3.1 expressa a variação de alguns parâmetros (Δ), obtidos para um determinado intervalo de concentração de átomos de Sr (Δx), normalizado em termos deste mesmo parâmetro quando x = 0, e $p_x = 0$, ou seja, $[(\Delta p/\Delta x)/p_0(x^{-1})]$ [58].

Tabela 3.1 - Variação de parâmetros estruturais do $Y(Ba_{1-x}Sr_x)_2Cu_3O_w$ em função da concentração de $Sr(\Delta x)$ normalizado [58].

| $(\Delta_a/\Delta_x)/a_0(x^{-1})$ | $-19.6 X 10^{-3}$ |
|---------------------------------------------------------------------------|--------------------|
| $(\Delta_b/\Delta_x)/b_0(x^{-1})$ | $-17.5 X 10^{-3}$ |
| $(\Delta_c/\Delta_x)/c_0(x^{-1})$ | $-20.2 X 10^{-3}$ |
| $(\Delta V/\Delta_x)/V_0(x^{-1})$ | $-56.8 X 10^{-3}$ |
| $[\Delta(Cu(2) - O(1)/\Delta_x)/V_0(x^{-1})]/(Cu(2) - O(1))_0(x^{-1})$ | $-60.8 X 10^{-3}$ |
| $[\Delta(Cu(1) - O(1)/\Delta_x)/V_0(x^{-1})]/(Cu(1) - O(1))_0(1)(x^{-1})$ | $-13.7 X 10^{-3}$ |
| $[\Delta(Cu(2) - O(2)/\Delta_x)/V_0(x^{-1})]/(Cu(2) - O(2))_0(x^{-1})$ | $+27.9 X 10^{-3}$ |
| $[\Delta(Ba/Sr - Ba/Sr)/\Delta_x]/(Ba/Sr - a/Sr)_0(x^{-1})^a$ | $-22.2 X 10^{-3}$ |
| | |

Por outro lado, a tabela 3.2 apresenta os valores obtidos para os parâmetros listados a, b, e c, V e B ("bulk modulus") [61] quando a pressão hidrostática aplicada

sobre amostras policristalinas de YBa₂Cu₃O_{6,93} e YBa₂Cu₃O_{6,60} varia de ambiente (0GPa) até 0,6GPa. Na tabela 3.2, de maneira análoga a apresentação dos parâmetros da tabela 3.1, os valores para os parâmetros listados são definidos em termos da variação da pressão hidrostática (d*P*), normalizados em função dos valores dos parâmetros *a*, *b*, e *c*, *V* obtidos em pressão ambiente (*P* = 0) [61].

YBa₂Cu₃O_{6.93} YBa2Cu3O6,60 $(da/dP)/a_0(GP_a^{-1})$ -2.40×10^{-3} $-2.22 X 10^{-3}$ $-1.65 X 10^{-3}$ $(db/dP)/b_0(GP_a^{-1})$ $-2.14 X 10^{-3}$ $(dc/dP)/c_0(GP_a^{-1})$ $-4.26 X 10^{-3}$ $-4.39 X 10^{-3}$ $(dV/dP)/V_0(GP_a^{-1})$ $-8.12 X 10^{-3}$ $-8.92 X 10^{-3}$ 123 112 $B(GP_a)$

Tabela 3.2 - Os valores para parâmetros definidos em termos da pressão hidrostática (dp) normalizados em função dos valores dos parâmetros a, b, e c [61].

A figura 3.3A, ilustra o comportamento da distância interatômica Cu2-O1 quando P < 0,6GPa são aplicadas nas amostras policristalinas da tabela 3.2. Por outro lado, na figura 3.3B o efeito da pressão hidrostática (P < 0,6GPa) é contrastado com o efeito da substituição do Ba por Sr ($x \le 0,5$) em termos do comportamento da distância entre planos de O3-Cu2-O2.



Figura 3.3 - A) O comportamento da distância Cu2-O1 para as amostras em função da pressão hidrostática $P \le 0,6$ GPa e B) O comportamento da distância Cu2-O2 em função da pressão hidrostática (GPa) e a pressão química (x) na estrutura YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} [61].

Ao comparar-se os valores apresentados nas tabelas 3.1 e 3.2 bem como o comportamento das distâncias interatômicas ilustrados nas figuras 3.1A, 3.2 (A e B) e 3.3 (A e B) pode-se concluir que:

- A contração dos parâmetros de rede devido a pressão química ocorre de maneira aproximadamente isotrópica quando comparado ao comportamento anisotrópico apresentado por estes em virtude da aplicação de pressão hidrostática;
- (2) A completa substituição do Ba por Sr induz uma variação nos parâmetros de rede que equivale aproximadamente a aplicação de uma pressão hidrostática em torno de 5 a 10GPa;
- (3) A distância Cu(2)-O(1) diminui com o emprego dos dois tipos de pressão;
- (4) A distância entre planos de O(3)-Cu(2)-O(2) aumenta em função de x e diminui em função da pressão hidrostática.

3.2 O Comportamento de $T_c(x)$

Diversos estudos reportados na literatura [62-66] revelam que o parâmetro de $T_c(x)$ para o composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O₇₋₈ apresenta comportamento semelhante ao do parâmetro $\bar{c}(x)$, figura 3.2A, conforme ilustram as figuras 3.4 e 3.5.

Na figura 3.4 [62-66], a redução linear de $T_c(x)$ para monocristais de YBa₂₋ _xSr_xCu₃O₇₋₈ ($x \le 0,5$) é ilustrada no inserto dessa, ao passo que na figura 3.5, [62-66] este comportamento encontra-se destacado na figura principal. Por outro lado, chama atenção a taxa de variação de $T_c(x)$ apresentada pela amostra policristalina de YBa₂₋ _xSr_xCu₃O₇₋₈ quando comparada à apresentada pelas amostras onde o Cu foi substituído parcialmente por átomos de AI, Co e Fe. É possível verificar a relevância dos planos supercondutores para a supercondutividade nestes sistemas.



Figura 3.4 - Curvas de $M_{ZFC}(T)$ dos monocristais $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$ (x=0; 0,1; 0,25; 0,25; 0,37 e 0,5). O inserto da figura mostra o comportamento de $T_c(x)$ para as diferentes concentrações de Sr utilizadas [62].



Figura 3.5 - Comportamento de $T_c(x)$ em função da substituição parcial do Ba por Sr e do Cu por Al, Co e Fe em amostras policristalinas de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ} e YBa_{2-x}Cu_{3-x}D_xO_{7-δ}, (D = Al, Co e Fe) [57].

Por outro lado, o efeito da aplicação de pressão hidrostática sobre a temperatura crítica de transição [$T_c(P)$] no YBa_{2-x}Cu₃O_{7- δ} é praticamente desprezível frente ao efeito observado para $T_c(x)$ no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ}. A figura 3.6 ilustra o comportamento de ΔT_c em função da pressão *P*, para o supercondutor YBa₂Cu₃O_{7- δ}. Onde $T_c(P)$ apresenta uma variação de apenas 0,07K/bar.



Figura 3.6 - O comportamento de ΔT_c em função da pressão *P*, para o supercondutor YBa₂Cu₃O_{7- δ} [67].

No que diz respeito ao comportamento de $T_c(x)$ no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ , algumas justificativas são apresentadas na literatura com o objetivo de interpretar fisicamente a taxa de até -20kOe/*x* apresentada por $T_c(x)$ neste composto.}

O fenômeno da supercondutividade nos sistemas 123, como o YBa₂Cu₃O_{7- δ}, está fortemente conectado ao fenômeno de transferência de cargas entre as cadeias lineares e os planos supercondutores. Neste cenário, buracos são criados nos planos supercondutores em virtude da transferência de elétrons provenientes das cadeias lineares [19, 61, 68]. A quantidade de carga envolvida durante o processo de transferência é controlado pelo nível de oxigenação dos átomos de Cu pertencentes as cadeias lineares. Este nível de oxidação depende do conteúdo de oxigênio $(7 - \delta)$ e da estrutura cristalina [19, 61, 68]. O balanceamento entre os processos de oxidação e redução, sofridos pelos os átomos de Cu das cadeias lineares, envolvidos no

processo de transferência de cargas, mostra-se decisivo para provocar a variação de 0 à 90K, experimentada por T_c no YBa₂Cu₃O_{7- δ}, [19, 61; 68].

De acordo com Licci e colaboradores, [58] o decréscimo de $T_c(x)$ no YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}, estaria associado a redução da intensidade das somas de valência (BVS) apresentada pelos átomos de Ba, em virtude da incorporação dos átomos de Sr, de menor tamanho, junto ao sítio do Ba. Essa incorporação evitaria a transferência de carga das cadeias de Cu1 para os planos de Cu2 o que consequentemente seria responsável pelo decréscimo de $T_c(x)$ neste composto.

Por outro lado, Ono e colaboradores [69] associam a redução de $T_c(x)$ ao fato de que a concentração de oxigênio $(7 - \delta)$ é reduzida sensivelmente nas amostras dopadas com Sr. Segundo estes autores, paralelamente a redução do conteúdo de oxigênio, o volume da cela unitária também apresenta uma redução significativa veja fig 3.3, desta forma a combinação conjunta destes dois acontecimentos colaboraria para a redução de $T_c(x)$.

No que se refere a distorção estrutural proveniente da substituição parcial do Ba por Sr, discutido no item 3.1, Veal e colaboradores [60] elegeram este fenômeno como o responsável pela redução do valor de $T_c(x)$. Entretanto, Zhang e colaboradores [75] concluíram, através do uso da técnica XAFS ("x-ray absortian fine structure"), que a distorção da estrutura local, conforme propôs Veal [60], não seria responsável pela redução de $T_c(x)$ no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}, mas sim a redução da distância interatômica da estrutura dupla de planos supercondutores, (O3-Cu2-O2)-Y-(O3-Cu2-O2).

4 METODOLOGIA E PROCEDIMENTOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo serão apresentados e discutidos as principais técnicas e metodologias experimentais utilizadas para o desenvolvimento das atividades experimentais. Neste item serão realizados, preferencialmente, a descrição dos equipamentos e procedimentos experimentais empregados no crescimento de monocristais, difração de raio-X, microscopia de luz polarizada e medidas de magnetização DC.

4.1 O Crescimento de Monocristais

Foram crescidos no laboratório de materiais de supercondutividade (LMS) da Universidade Federal de Pelotas – UFPel os seguintes monocristais: YBa₂Cu₃O_{7-δ,} (McY), YBa_{1,98}Sr_{0,02}Cu₃O_{7-δ}, (McSr002), YBa_{1,9}Sr_{0,10}Cu₃O_{7-δ} (McSr010), YBa_{1,75}Sr_{0,25}Cu₃O_{7-δ} (McSr025), e YBa_{1,63}Sr_{0,37}Cu₃O_{7-δ} (McSr037).

A técnica empregada no crescimento foi a de auto-fluxo [15]. Esta técnica produz o crescimento de monocristais para temperaturas abaixo da fase líquida da mistura inicial. Os principais procedimentos e metodologias empregados nessa atividade serão descritos nos parágrafos vindouros.

Os reagentes precursores utilizados para a produção dos monocristais foram carbonatos e óxidos com alta pureza, tais como: o óxido de ítrio (Y_2O_3) , com pureza de 99,999%, o carbonato de bário (BaCO₃), com pureza de 99,999%, o carbonato de estrôncio (SrCO₃), com pureza de 99,995%, o óxido de cobre (CuO) com pureza de 99,999%. Foi empregada a seguinte estequiometria para a produção dos monocristais: YBaCu – 1: 4: 10 [6] na qual o Ba foi substituído parcialmente por Sr, obedecendo as proporcões nominais desejadas de 1%, 5%, 12,5% e 18%. O carbonato de bário (BaCO₃) e o óxido de cobre (CuO) foram colocados em execesso a fase YBCO - 123 para atuarem como meio líquido onde os demais elementos da composição serão dissolvidos, formando a nucleção dos futuros monocristais.

Uma vez executado o cálculo estequiométrico, os reagentes selecionados foram colocados em uma estufa, por um período de até 1h, com a finalidade de desumudifica-los. Após isso, os reagentes foram mensurados, com o auxílio da balança de precisão, até que uma massa total de 5g dos óxidos e carbonatos

precursores fosse atingida. Logo em seguida, esta massa foi colocada em um almofariz de ágata e foi misturada por maceração, até que a mistura apresentasse uma coloração homogênea.

A mistura homogênea, obtida no processo anterior, é então colocada em um dos lados de um cadinho retangular de zircônia. O cadinho, contendo a mistura, é levado para o interior de um forno do tipo mufla e acomodado em uma base inclinada em 20º em relação a posição horizontal do forno. Este procedimento tem a finalidade de proporcionar o escorrimento da mistura a medida em que a temperatura no interior do forno vai sendo elevada. A ciclagem térmica, em função do tempo, empregada durante o processo de crescimento é ilustrada na figura 4.1.



Figura 4.1 - Ciclo térmico usado para a produção dos monocristais [6].

As etapas da figura 4.1 são descritas abaixo:

ETAPA A: a temperatura é elevada de 20º até 300ºC a uma taxa de 280ºC/h. ETAPA B: a manutenção da temperatura em 300ºC, por um período de tempo de 1h, tem por objetivo eliminar qualquer umidade por parte da mistura obtida após o processo de maceração. <u>ETAPA C</u>: nesta etapa a temperatura foi elevada de 300°C para 880°C, a uma taxa de 105,45°C/h, com o objetivo de proporcionar a ocorrência da queima total dos carbonos existentes na reação.

ETAPA D: a temperatura é estabilizada em 880°C durante um período de tempo de 2h.

<u>ETAPA E</u>: a temperatura é elevada de 880°C para 980°C a uma taxa de 25°C/h. Nesta etapa espera-se que a formação inicial do fluxo de BaO-CuO saturado de Y₂O₃ SrO ocorra.

<u>ETAPA F</u>: a temperatura é mantida em 980°C no período de tempo de 2h. Nesta etapa ocorre a dissolução iônica da solução saturada, formada na etapa E, sendo o CuO (óxido de cobre) e o BaO (óxido de bário) os solventes e o Y₂O₃ e SrO os solutos. Esta formação saturada ocorre a medida em que a mistura escorre para o lado inferior do cadinho de zircônia ao mesmo tempo que o fluxo de CuO-BaO começa a evaporar.

<u>ETAPA G</u>: a temperatura é decrescida de 980°C para 880°C, a uma taxa de 5.88°C. Esta etapa é a fase mais importante do processo, pois nesta ocorre a evaporação do fluxo e o surgimento de muitos centros de nucleação na solução saturada os quais transforma-se em monocristais.

<u>ETAPA H</u>: a temperatura é decrescida de 880°C para 300°C a uma taxa de 105,45 C/h. Esta etapa determina o fim do processo de crescimento dos monocristais e marca o início da transição estrutural tetragonal-ortorrômbica, tornando os monocristais supercondutores.

ETAPA I: a temperatura é decrescida de 300°C para 20°C (temperatura ambiente), a uma taxa de -280°C/h.

Após o crescimento os monocristais selecionados foram submetidos a um processo de oxigenação adicional com o objetivo de otimizar o valor de T_c [7]. Os monocristais selecionados, para este processo de oxigenação, foram encapsulados entre duas pastilhas de YBa₂Cu₃O₇₋₈. Esta ação tem por finalidade tornar a atmosfera de oxigênio em torno dos cristais a mais homogênea possível. Logo após, essa cápsula foi ajustada em um cadinho de alumina sendo esse conjunto, posteriormente, colocado no interior de um tubo de quartzo o qual teve o seu interior preenchido por oxigênio e foi mantido a uma pressão de 1 atm. A temperatura foi então elevada de ambiente até 450°C, em aproximadamente 2h. Os monocristais permaneceram nesta

temperatura por dez dias e ao término desse período a temperatura foi diminuída para 20°C em aproximadamente 24h.

A figura 4.2 ilustra o diagrama esquemático dos diferentes procedimentos empregados durante o crescimento dos monocristais, começando a partir do cálculo estequiométrico.



Figura 4.2 - Diagrama esquemático das etapas, em sequência, empregadas durante o procedimento de crescimento das amostras. Adaptado da referência [70].

4.2 Caracterização Estrutural e Superficial dos Monocristais

As amostras de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}, selecionadas para as medidas de magnetização DC, tiveram sua estrutura caracterizada por meio da técnica de difração de raio-X. Por outro lado, a caracterização da superfície desses monocristais foi obtida a apartir do emprego da técnica de microscopia de luz polarizada (MLP).

4.2.1 A Difração de Raio-X

As estruturas cristalográficas dos monocristais de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} (x = 0; 0,02; 0,10; 0,25 e 0,37) foram analisadas através da técnica de difração de raio-X. Para a realização dessas medidas utilizou-se um difratômetro da marca Siemens,

localizado no Instituto de Física (IF) da UFRGS, onde a radiação CuK α ($\lambda_{Cuk\alpha}$ =1,5417Å) foi empregada. Este equipamento apresenta o seu princípio de funcionamento baseado no diagrama esquemático da figura 4.3.



Figura 4.3 - Diagrama esquemático básico do funcionamento de um difratômetro de raio X [51].

O processo consiste na incidência de um feixe de raio-X, emitido pelo tubo de raio-X, através do plano *ab* das amostras analisadas. Esta ação tem como finalidade a determinação do valor do espaçamento entre os planos interatômicos das amostras, conforme destaca a figura 4.4.



Figura 4.4 - Diagrama esquemático do fenômeno da difração de raios-X em um cristal [71].

Uma vez que as condições de Bragg, equação (4.1), para o fenômeno de interferência construtiva entre raios difratados, seja satisfeita, então um máximo de intensidade é registrado pelo detector da figura 4.4.

$$n\lambda = 2d_{hkl}sen\theta \tag{4.1}$$

Na equação anterior n é um número inteiro, λ é o comprimento de onda da radiação incidente, θ é o ângulo de incidência, d é a distância entre os planos de difração. Sendo que esta última variável se relaciona com os parâmetros de rede através da equação (4.2) [72].

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

Na equação acima, h, k e l representam os índices de Müller, enquanto a, b e c são os parâmetros de rede.

Nos difratogramas obtidos com o emprego desta especialidade, as posições angulares, intensidades e larguras dos picos registrados nestes, fornecem informações relevantes sobre a estrutura do material pesquisado.

Nas amostras pesquisadas nesta Dissertação a varredura angular ocorreu com um incremento de 0,05° em um intervalo de $10^{\circ} \le 2\theta \le 70^{\circ}$.

4.2.2 Microscopia de Luz Polarizada (MLP)

A técnica de microscopia de luz polarizada utiliza a análise de imagens geradas a partir do emprego de um microscópio ótico de luz polarizada, constituído basicamente por um tubo ótico, revestido por um conjunto de lentes.

Neste sistema, a luz polarizada, pela ação de um polarizador, interage com o conjunto de lentes para logo após incidir sobre a superfície do monocristal. A partir desse momento o feixe de luz refletido passa pelo analisador até que seja projetado na lente ocular onde ocorre a captação e formação das imagens.

O uso da MLP permite, de maneira geral, caracterizar, a nível qualitativo, a superfície dos monocristais, permitindo a identificação de defeitos mesoscópicos, como domínios e a direção dos planos de maclas [6]. Por outro lado, esta técnica

também permite a determinação das dimensões para amostras, uma vez que imagens projetando a espessura e a superfície desta, são obtidas em conjunto com uma escala métrica padrão [6] como ilustra a figura 4.5 onde a espessura de um monocristal YBa₂Cu_{2,97}Ni_{0,03}O_{7-δ} é quantificado.



Figura 4.5 - Imagem obtida através da técnica MLP onde espessura de um monocristal YBa₂Cu_{2,97}Ni_{0,03}O_{7-δ} é quantificada.

Neste trabalho, utilizamos um microscópico ótico de luz polarizada da marca Olympus Bx53 que se encontra localizado no Laboratório de Supercondutividade e Magnetismo (LSM) da UFRGS.

4.3 Medidas de Magnetização DC

Neste ítem serão abordados os procedimentos experimentais e os equipamentos utilizados para a realização das medidas de magnetização DC bem como o tratamento empregado para a obtenção da resposta magnética das amostras.

4.3.1 O Magnetômetro de SQUID

As medidas das curvas de magnetização foram realizadas com o auxílio do magnetômetro SQUID ("Superconductor Quantum Interference Device") modelo 2000 da Quantun Desing, equipamento esse representado na figura 4.6 (A-B).

A figura 4.6A, evidencia a parte criogênica composta do criostato superisolado e da bobina de campo magnético. Ao passo que a figura B ilustra a parte eletrônica do equipamento, composta basicamente pela fonte de corrente e o software automatizado empregado na realização das medidas. O referido equipamento encontra-se instalado no LSM da UFRGS onde as medidas foram realizadas.



Figura 4.6 - (A-B) Magnetômetro SQUID ("Superconductor Quantum Interference Device"), LSM da UFRGS [73].

Este equipamento proporciona que a resposta magnética (magnetização DC) das amostras seja determinada com uma precisão de até 5.10⁻⁶ e.m.u para campos magnétcos contínuos (DC) de até 50kOe para uma faixa de temperatura compreendida entre 1,9 K e 400K onde a taxa de variação da temperatura pode se dar entre 0,01K/min até 10K/min com precisão de até 0,01K.

A figura 4.7 ilustra o diagrama esquemático, o qual trata, com riqueza de detalhes dos componentes comuns ao segmento eletrônico e criogênico do SQUID, representados na figura anterior.



Figura 4.7 - A) 1-cana, 2-rotor, 3-transporte DC da amostra, 4-sonda, 5-Sensor de nível de He, 6-Solenoide supercondutor, 7-Impedância para fluxo de He, 8-cápsula do SQUID, 9 - bobina supercondutora "pick up" **B**) 10- Dewar do gabinete de isolamento, 11 – Dewar, **C)** 12 – impressora, 13 – fonte de alimentação do magneto, 14 – controlador de temperatura modelo 1802, 15 – gabinete do console, 16 – unidade de distribuição de força, 17 – controlador MPMS modelo 1822, 18 – unidade de controle de gás-19 e 20 - computador com periféricos [74].

O princípio básico de funcionamento deste aparelho consiste no fornecimento de corrente elétrica da fonte de corrente para as bobinas supercondutoras, que por sua vez, gerarão o campo magnético desejado, de acordo com a sua capacidade.

A amostra fica centrada entre as bobinas supercondutoras (item 9 da figura). Esta excursiona, ajudada pelo "inset" de medidas, (ítens 1, 2 e 3), através da região entre as bobinas. Esta ação, faz com que a amostra se magnetize, e a amplitude desta magnetização seja lida pelo sensor SQUID (ítem 8). Este sensor têm a capacidade de converter pequenas variações de fluxo magnético em uma diferença de potencial elétrico. As medidas de magnetização desse trabalho foram realizados com a utilização do "inset" DC ("Direct Current"). Neste sistema, a amostra excursiona para fora da região central das bobinas a cada ponto medido, sendo reconduzida ao centro destas bobinas supercondutoras ao término da medida. Durante a realização das medidas de momento magnético, foi adotado uma amplitude de excursão para as amostras de \pm 1cm em relação a posição central das bobinas supercondutoras. A adoção deste valor torna desprezível possíveis efeitos de imonogeneidade provenientes do campo magnético aplicado.

4.3.2 Montagem Experimental para as Medidas de Magnetização DC

Este item irá tratar dos procedimentos experimentais empregados durante a preparação das amostras a serem inseridas no "inset" DC, localizado no lado esquerdo da figura 4.7, do magnetômetro de SQUID. A figura 4.8 ilustra um monocristal (amostra) adequadamente preparado para ser inserido no interior do referido "inset" de medidas.



Figura 4.8 - Conjunto disco de teflon com amostra e tubo cilíndrico de plástico [73].

De acordo com o ilustrado na figura anterior, a amostra monocristalina foi fixada, com o auxílio de graxa de vácuo, à superfície de um disco de teflon. Após fixada, o conjunto teflon-amostra foi colocado no interior do tubo cilindríco de plástico. O conjunto tubo-teflon-amostra foi preso à haste de transporte (item 1 da figura 4.7) e

inserido no "inset" de medida localizado no interior do "dewar". É importante ressaltar que a montagem anterior permite que o campo magnético seja aplicado paralelamente ao eixo cristalográfico *c*. Por outro lado, as medidas de magnetização com o campo magnético aplicado paralelamente ao plano *ab* dos monocristais foram realizadas com a adoção de uma configuração diferente . Neste cenário, a superfície dos monocristais foi fixada, com auxílio da graxa de vácuo, a uma superfície de teflon planar. O conjunto amostra – teflon então foi inserido no interior do tubo plástico rotacionado 90° em relação a posição ilustrada na figura 4.8.

4.3.3 Procedimentos Experimentais Empregados nas Medidas de Magnetização DC

Antes da realização das medidas de magnetização, em função da temperatura e do campo magnético aplicado, M(T,H), alguns procedimentos foram realizados com o objetivo de garantir a confiabilidade dos resultados experimentais a serem obtidos com utilização desta técnica.

O primeiro deles foi verificar a possível existência de campo magnético residual entre as bobinas supercondutoras. A determinação da contribuição desse campo residual é obtida a partir da análise da resposta magnética de uma amostra de paladium após essa ter sido submetida a um procedimento específico de ciclagem em campo magnético.

Após verificada a contribuição proveniente do campo residual, a amostra é submetida a um processo de centragem no qual é verificada a posição ocupada pela amostra em relação a posição central das bobinas supercondutoras. Este procedimento é adotado com o objetivo de garantir que o sinal magnético produzido pela amostra seja determinado com a máxima precisão pelo sensor SQUID (item 8 da figura 4.7).

Aferidos a contribuição do campo residual e a centragem da amostra em relação as bobinas de campo magnético dá-se início as medidas de M(T,H) propriamente ditas. Os procedimentos experimentais adotados nas medidas de M(T), obtidas sobre a aplicação de um campo magnético contínuo, foram a ZFC (resfriamento em campo magnético nulo) e o FCC (resfriamento em campo magnético aplicado) [18]. No procedimento ZFC a amostra é resfriada na ausência de campo

magnético aplicado, partindo de uma temperatura acima de T_c , até atingir uma determinada temperatura $T < T_c$. Logo em seguida, um campo magnético DC é aplicado e durante o processo lento de aquecimento da amostra (0,02k/min, a 0,4k/min). A magnetização $M_{ZFC}(T)$ é registrada sobre ação do campo magnético aplicado, até que uma temperatura $T > T_c$ seja atingida. Imediatamente ao encerramento do procedimento ZFC dá-se início ao procedimento FCC. Desta maneira, sem que se precise fazer qualquer ajuste no valor do campo magnético aplicado, a amostra é resfriada lentamente até que uma temperatura $T < T_c$ seja atingida. De preferência, esta temperatura, bem como a sua taxa de variação, empregados durante o procedimento FCC, devem coincidir com os adotados na execução do procedimento ZFC para estes comportamentos. Durante este resfriamento a magnetização $M_{FCC}(T)$ é registrada.

As magnetizações $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ foram determinadas para campos magnéticos aplicados ao longo do eixo c (H // c) e ao longo do plano ab(H // ab) dos monocristais. As intensidades dos campos magnéticos aplicados variavam entre 0,01kOe e 50kOe.

4.3.4 O Tratamento dos Dados de Magnetização

O conjunto formado pela graxa de vácuo, disco de teflon e pelo tubo de plástico recebe a denominação de porta amostra (PAMST). A intensidade de M(T,H) determinado para a composição, amostra+PAMST é fortemente influenciada pela contribuição magnética do PAMST. Desta forma, medidas de M(T,H) foram realizadas individualmente para o PAMST empregando cada valor de campo magnético utilizado nas medidas de M(T,H) para o conjunto amostra+PAMST. Este procedimento doi realizado com a finalidade de subtrair a contribuição magnética do PAMST do comportamento das curvas de M(T,H) obtido para conjunto. A figura 4.9 ilustra, em sequência, esta operação.



Figura 4.9 - A) Comportamento de $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ junto com PAMST, comportamento M(T) do PAMST,C) Comportamento de $M_{ZFC}(T)$ após o desconto do PAMST quando H = 50kOe // c foi aplicado a amostra McSr037.

A figura 4.9A ilustra o comportamento de $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ para o conjunto PAMST+amostra, para o monocristal McSr037, quando H = 50kOe foi aplicado paralelamente ao eixo *c* deste. A figura 4.9B) apresenta o comportamento de M(T)para o PAMST sujeito ao mesmo valor de *H* aplicado na figura 4.9A. Por outro lado, a figura 4.9C mostra o comportamento de $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$ após subtraído a contribuição magnética do PAMST.

O campo magnético desmagnetizante associado ao fator geométrico das amostras, η teve a sua contribuição estimada frente a intensidade de campo magnético \vec{B} por meio da aplicação da equação (4.3): [36].

$$B = \mu_0 H + \mu_0 (1+\eta) M \tag{4.3}$$

A apuração da contribuição do fator $[(1 + \eta)M]$ sobre o comportamento de M(T,H) mostrou-se desprezível. Além disso, nas proximidades de T_c . A intensidade de M(T) é bastante reduzida frente a aplicação de $H \ge 10$ kOe. Desta forma foi possível considerar $H = \frac{B}{\mu_0}$.

5 RESULTADOS EXPERIMENTAIS E DISCUSSÃO

Neste capítulo serão apresentados, discutidos e quando possível, interpretados os resultados obtidos com o emprego das técnicas experimentais descritas no capítulo 4. Em particular, será dada ênfase para os resultados determinados a partir do comportamento reversível das curvas de magnetização ZFC, $M_{ZFC}(T,H)$ quando submetidas aos formalismo de "scaling" 2D-LLL e 3D-LLL. Esta análise se dará, principalmente, em termos dos efeitos da pressão química proporcionados pela substituição de até 18% do Ba por Sr, sobre estas propriedades. É importante ressaltar que os resultados experimentais relativos a configuração $H \parallel ab$ somente foram registrados para três dos cinco monocristais utilizados na configuração $H \parallel c$. Contratempos operacionais relacionados a execução das medidas de magnetização DC impediram a totalização dessa ação. Por fim, no final deste capítulo, serão destacadas as principais conclusões obtidas com a realização deste trabalho.

5.1 Caracterização Estrutural

Neste item, serão abordados os resultados obtidos através das técnicas de difração de raio-X (XRD) e microscopia de luz polarizada (MLP). Os monocristais de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ} com x = 0; 0,02; 0,10; 0,25, e 0,37 são identificados por: McY, McSr002, McSr010, McSr025 e McSr037, respectivamente.

5.1.1 Difração de Raio-X

A figura 5.1 ilustra os difratogramas de raio–X para as amostras McY, McSr002, McSr010, McSr025 e McSr037.



Figura 5.1 - Difratogramas de raio-X para as amostras McY, McSr002, McSr010, McSr025 e McSr037. O feixe de raio-X foi orientado para ângulos de incidência ao longo do plano *ab* desses monocristais.

Observa-se na figura anterior que para a incidência do feixe ao longo do plano ab dos monocristais é verificado a ocorrência de máximos na intensidade para os índices de Müller [0,0,1], onde I = 1, 2, 3, ... o que evidencia a ótima orientação cristalográfica dos monocristais ao longo da direção cristalográfica *c*.

Por outro lado, ao comparar-se o resultado do difratograma de McY, com os resultados obtidos para as demais amostras, é possível afirmar, levando em consideração a precisão experimental proporcionada pela técnica de XRD, que a substituição parcial de aproximadamente 18% do Ba por Sr, na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ} [12-13], não proporciona a formação de fases espúrias a fase YBCO-123. Este resultado vai de encontro a afirmação efetuada na seção 3.1, de que até

50% do Ba é substituído diretamente por Sr sem ocasionar o surgimento de fases espúrias a fase Y-123 no YBa₂Cu₃O_{7-δ} [12-13].

De acordo com a discussão realizada no item 4.2.1, a posição angular dos máximos dos difratogramas da figura anterior, permite a determinação dos parâmetros cristalográficos de rede, através do uso das equações (4.1) e (4.2).

Na tabela 5.1 encontra-se listados os valores médios obtidos para o parâmetro de rede \bar{c} para as amostras pesquisadas.

| Amostras | Parâmetro de rede c(Å) |
|----------|---------------------------|
| McY | 11,68 ± 0,01 |
| McSr002 | 11,67 ± 0,01 |
| McSr010 | 11,65 ± 0,01 |
| McSr025 | 11,61 ± 0,03 |
| McSr037 | 11,59 ± 0,03 |

Tabela 5.1 – Os valores médios para $\bar{c}(x)$ listados em função da concentração do Sr para as amostras desse trabalho.

Cabe ressaltar que os valores de $\overline{c}(x)$, onde x representa o montante de Sr adicionado a estrutura, na tabela, acima listados, estão de acordo com os valores reportados na literatura para este parâmetro em amostras de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ} [20].

A figura 5.2, ilustra o comportamento de $\overline{c}(x)$ para as amostras pesquisadas.



Figura 5.2 – O comportamento de $\bar{c}(x)$ para as amostras pesquisadas, a linha contínua representa um ajuste linear.

Desta forma, pode – se verificar que o eixo cristalográfico $\overline{c}(x)$, decresce a uma taxa constante à medida em que o montante de Ba substituído por Sr se eleva de 0 até 18%, da mesma forma que o comportamento $\overline{c}(x)$, ilustrado na figura 3.2. Portanto, pode se concluir, que as amostras pesquisadas neste trabalho, apresentam os desejados efeitos de pressão química na estrutura e nas propriedades supercondutoras do YBa₂Cu₃O_{7-δ}.

5.1.2 Microscopia de Luz Polarizada (MLP)

A figura 5.3 ilustra imagens da superfície da amostra McSr025 obtidas através da técnica MLP, mencionada na seção 4.2.2. Cabe ressaltar, que as amostras monocristalinas tiveram as suas dimensões caracterizadas através desta técnica, conforme descrita na seção acima referida.



Figura 5.3 – Imagens da superfície da amostra McSr025 obtidas por MLP.

Ao apreciar-se as figuras 5.3A e 5.3B, constata-se que a superfície desse monocristal é constituída por uma alta densidade de mosaicos, característica comum apresentada pelas demais amostras dopadas com Sr pesquisadas neste trabalho. Essa estrutura configura a existência de planos de maclas ortogonais a superfície da amostra. A ocorrência desta particularidade, de acordo com alguns autores da referência [6], estaria ligada a substituição parcial do Ba por Sr na estrutura do YBa₂Cu₃O₇₋₈.

Conforme havíamos abordado no início desta seção, a determinação das dimensões dos monocristais pesquisados neste trabalho ocorreu da forma ressaltada na seção 4.2.2.

As dimensões das amostras monocristalinas, obtidas a partir da análise das imagens de MLP, encontram-se discriminadas na tabela 5.2.

| Amostras | Superfície 10 ⁻³ (cm ²) | Espessura 10 ⁻³ (cm) | Volume 10 ⁻⁵ (cm ³) |
|----------|---------------------------------------------------|------------------------------------|-----------------------------------------------|
| McY | 5,8 | 2,4 | 1,4 |
| McSr002 | 7,4 | 1,5 | 1,1 |
| McSr010 | 3,6 | 7,2 | 2,5 |
| McSr025 | 12,5 | 9,0 | 11,2 |
| McSr037 | 12,5 | 3,2 | 4,0 |

Tabela 5.2 – As dimensões dos monocristais de $YBa_{2-x}Sr_xCu_3O_{7-\delta}$, obtidas a partir da análise das imagens de MLP

5.2 O Comportamento de $T_c(x)$

As amostras monocristalinas McY, McSr002, McSr010, McSr025 e McSr037 tiveram sua transição supercondutora e os valores T_c , caracterizados através de medidas de magnetização DC em função da temperatura, para campos magnéticos de 10Oe aplicados paralelamente ao eixo cristalográfico *c* das amostras. Os resultados obtidos para a determinação do valor de T_c , para cada uma das amostras pesquisadas, encontram-se ilustrados na figura 5.4 (A-E) e especificados na tabela 5.3. O critério adotado para a determinação de T_c na figura 5.4, consiste em identificar o valor da temperatura da curva de $M_{ZFC}(T)$ o qual, segundo precisão experimental adotada, corresponde ao dado o qual abandona a reta de base nula de $M_{ZFC}(T) = 0$



Figura 5.4 – A identificação de T_c das amostras: A) McY, B) McSr002, C) McSr010, D) McSr025 e McSr037 respectivamente.

Os valores de T_c obtidos para cada amostra pesquisada a partir da análise do comportamento de M_{ZFC} (H = 10Oe // c) na figura 5.4 (A-E), acrescidos de sua precisão experimental, encontram-se expressos na tabela 5.3.

| Amostras | T _c (K) |
|----------|--------------------|
| McY | 93,66 ± 0,60 |
| McSr002 | 92,35 ± 0,10 |
| McSr010 | 90,35 ± 0,10 |
| McSr025 | 87,89 ± 0,15 |
| McSr037 | 86,11 ± 0,15 |

Tabela 5.3 - Os valores de T_c para as amostras monocristalinas pesquisadas.

A figura 5.5A ilustra o comportamento de $T_c(x)$ para os monocristais pesquisados. Em sequência, uma comparação como comportamento de $\overline{c}(x)$ pode ser estabelecido quando a figura 5.5A é contrastada com a figura 5.5B.



Figura 5.5 - A) O Comportamento de $T_c(X)$ B) O comportamento $\overline{c}(X)$.

Ao analisar-se a figura 5.5A, percebe-se uma nítida diminuição no valor de $T_c(x)$ à uma taxa constante, de aproximadamente 19K/x, muito próximo aos 20K/x apresentados na seção 3.2. Esse fenômeno ocorre, em grande parte, devido aos efeitos discutidos no capítulo 3, ou seja, em virtude da pressão química que a cela unitária do YBa₂Cu₃O₇₋₈ sofre ao ter o átomo de Ba parcialmente substituído por Sr. De fato, se comparar-se o comportamento de $T_c(x)$, figura 5.5A, com o comportamento de c(x), figura 5.5B, pode-se verificar a proximidade das taxas de variação experimentados por T_c e *c* em função do conteúdo de Sr(x).

A maioria das discussões, apresentadas na seção 3.2, à respeito do comportamento de $T_c(x)$, no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}, elegem os efeitos provenientes da pressão química como o principal responsável pelo acionamento do mecanismo de transferência de cargas das cadeias lineares para os planos supercondutores e consequentemente pela redução do valor de $T_c(x)$ no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}

Por outro lado, os valores de $T_c(x)$ representados na tabela 5.3, estão de acordo com valores de T_c reportados na literatura para amostras de YBa_{2-x}Sr_xCu₃O₇₋₅ [20-21].

5.3 A Determinação de $T_{irr}(H)$ e $T_c(H)$

Na seção 1.5 foi abordado que a determinação de $T_{irr}(H)$ ocorreu a partir da visualização direta da separação entre as curvas de $M_{ZFC}(T)$ e $M_{FCC}(T)$. Este procedimento pode inserir imprecisões siginficativas ao valor de $T_{irr}(H)$. Desta forma, optou-se por outro método tido como mais preciso que o anterior, para a determinação de $T_{irr}(H)$ das amostras pesquisadas neste trabalho. O método fundamenta-se em determinar $T_{irr}(H)$ a partir da análise das curvas de $\Delta M(T)$, onde $\Delta M = M_{ZFC}(T) - M_{FCC}(T)$. O resultado da aplicação deste método encontra-se ilustrado na figura 5.6. Desta forma, $T_{irr}(H)$ será definido como o valor de temperatura a qual corresponde ao primeiro ponto do gráfico de $\Delta M(T)$ que abandona a linha de base do eixo das temperaturas que tratando-se da figura 5.6 B, correspondente a $T_{irr}(H) \approx (69,30 \pm 0,60)$ K.

Por outro lado, é importante destacar o método empregado na determinação de $T_c(H)$ o qual aparece destacado na figura 5.5A. Este método será empregado ao longo da análise dos dados experimentais de M(T,H) deste trabalho. Ele foi discutido

na seção 2.1, quando foi caracterizado experimentalmente a contribuição proveniente das FT nas curvas de magnetização DC. Especificamente, na figura 5.5A, obtêm-se $T_c(H = 50kOe) = (81,83 \text{ K})$ para a amostra McSr037.



Figura 5.6 – Determinação e $T_c(H)$ figura (A) e $T_{irr}(H)$ figura (B) para a amostra McSr037, quando H = 50kOe foi aplicado paralelamente ao eixo *c*.

5.4 Magnetização DC

As figuras 5.7 e 5.8 ilustram os resultados obtidos para o comportamento de $M_{ZFC}(T)$ quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe foram aplicados paralelamente ao eixo *c*, figura 5.7 e ao plano *ab*, figura 5.8, dos monocristais pesquisados.

Os dados de $M_{ZFC}(T)$ para a configuração H //ab correspondem apenas as amostras McSr010, McSr025 e McSr037 em virtude dos motivos apresentados no início deste capítulo.

É importante destacar que a preferência pelo intervalo de campos magnéticos específico selecionado está diretamente conectado a efetivação do nível mais baixo de Landau (LLL) nos HTSC, conforme discutido na seção, 2.3.

Nas figuras 5.7 e 5.8, em conjunto com os dados de $M_{ZFC}(T)$, estão dispostos os valores de $T_{irr}(H)$ (símbolos fechados) e os valores de T_c quando $H \approx 0$, veja tabela 5.3. Conforme discutido nas seções 1.3 e 5.3, a temperatura $T_{irr}(H)$ separa o comportamento reversível do irreversível no que refere-se a magnetização, sendo que a aplicabilidade da teoria de "scaling" GL-LLL está limitada ao comportamento reversível do amagnetização.

Em relação as curvas de $M_{ZFC}(T)$, obtidas em função de H, pode-se verificar, especialmente para H // c, uma notável mudança para a disposição de seu comportamento na faixa de temperatura próxima à $T_{irr}(H)$. Esta mudança está claramente conectada a ativação dos mecanismos de "pinning" para $T < T_{irr}(H)$. Por outro lado, em $T_{irr}(H) \le T \le T_c$ (H) os efeitos dos mecanismos de "pinning" tornam-se inativos, e a medida que $T \approx T_C(H)$ é possível notar uma forte curvatura na disposição dos dados de $M_{ZFC}(T)$ especialmente para $H \ge 20$ kOe, o que pode ser considerado um forte indício (veja seção 2.1) da manifestação das FT sobre o comportamento da magnetização, nas proximidades de $T_c(H)$, das amostras monocristalinas pesquisadas neste trabalho.

Ainda no que se refere aos dados de $M_{ZFC}(T)$ obtidos para H //ab é importante ressaltar que o desalinhamento dos monocristais em relação a posição geométrica H // ab é muito pequeno, estimamos que seja menor que 2º.


Figura 5.7 - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ quando $10kOe \le H \le 50kOe$ foram aplicados paralelamente ao eixo c das amostras: A) McY; B) McSr002; C) McSr010; D) McSr025 e E) McSr037. Os símbolos fechados correspondem aos valores de $T_{irr}(H)$, ao passo que $T_c(0)$ indica o valor da temperatura de transição para H = 0.



Figura 5.8 - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ quando 10kOe $\leq H \leq$ 50kOe foram aplicados paralelamente ao plano *ab* das amostras: A) McSr010; B) McSr025 e C) McSr037. Os símbolos fechados correspondem aos valores de $T_{irr}(H)$, ao passo que $T_c(0)$ indica o valor da temperatura de transição para H = 0.

Em particular, a substituição parcial do Ba por Sr produz um aumento significativo no intervalo no qual a magnetização se comporta reversivelmente (ΔT) nas amostras dopadas em relação ao intervalo correspondente a esta grandeza no monocristal McY, para maiores detalhes, confira a tabela 5.4.

| | Tc(H) | | <i>T_{irr(}H)</i> (K) | | $\Delta \mathbf{T} = \mathbf{T}_{c}(\mathbf{H}) - \mathbf{T}_{irr(\mathbf{H})}(\mathbf{K})$ | |
|----------|-------|-------|-------------------------------|-------|---------------------------------------------------------------------------------------------|-------|
| Amostras | Н//с | H//ab | Н//с | H//ab | Н//с | H//ab |
| McY | 90,5 | | 78,8 | - | 11,8 | - |
| McSr002 | 89,4 | | 75,2 | - | 14,2 | - |
| McSr010 | 87,0 | 89,6 | 73,0 | 83,8 | 14 | 5,8 |
| McSr025 | 89,6 | 86,9 | 75,2 | 82,6 | 13,4 | 4,3 |
| McSr037 | 82,4 | 85,0 | 69,4 | 81,0 | 13,0 | 4,0 |

Tabela 5.4 - Valores de $\Delta T = T_c(H) - T_{irr}(H)$ obtidos através de $T_c(H)$ e $T_{irr}(H)$ para 50kOe aplicado nas configurações H//c e H//ab das amostras pesquisadas.

A partir dos resultados expressos na tabela 5.4, para H = 50kOe, é possível verificar que a elevação de 1% até 18% do Ba substituído por Sr não provoca o aumento de ΔT , pelo contrário, mostra claramente, que ΔT atinge rapidamente seu máximo na amostra McSr002 passando, suavemente, a diminuir a medida em que o conteúdo de Ba subtituído por Sr aumenta.

Por outro lado, pode-se verificar também a manifestação da propriedade da anisotropia planar (veja seção 1.7) caracterizada na disposição dos valores das temperaturas expressas na tabela 5.4, quando H = 50kOe foi aplicado paralelamente ou ortogonalmente em relação a disposição dos planos supercondutores, conforme discutido na seção 1.7.

5.5 A Anisotropia de *T_c(H)* em Função da Dopagem de Sr

Conforme discutido na seção 1.7, equações (1.35) e (1.36), os HTSC apresentam propriedades supercondutoras fortemente anisotrópicas, ou seja, que dependem da configuração adotada entre o campo magnético aplicado e a sua estrutura planar. Em particular, no que tange as funções de "scaling" 2D e 3D previstas

pela teoria G-L-LLL, ambas apresentam como variável $T_c(H)$, equação (2.23). Desta forma, estão igualmente sujeitas aos efeitos de anisotropia provenientes de dH_{c2}/dT . Desta maneira, as figuras 5.9, 5.10 e a tabela 5.5 tratam da caracterização do comportamento anisotrópico de dH_{c2}/dT apresetando pelas amostras pesquisadas.

O método empregado na obtenção dos valores de $T_c(H)$, a partir das curvas de magnetização DC, aparece ilustrado na figura 5.6A.



Figura 5.9 – Os Comportamento de $T_c(H)$ e dH_{c2}/dT obtidos em função de H e T para as amostras pesquisadas para H // c (símbolos abertos) e H // ab (símbolos fechados).

É importante destacar que as respectivas curvas de M(T) obtidos para H< 10kOe não foram apresenatadas nesta dissertação por não integrarem o intervalo de aplicabilidade do formalismo LLL, entretanto, as mesmas foram utilizadas para a determinação do comportamento de $T_c(H)$ apresentadas na figura 5.9.

| Amostras | <i>T</i> c(0) |) (K) | $\frac{\mu_0 dH_{c2}}{dT}$ (T/K) | | |
|----------|---------------|---------------------|----------------------------------|---------------|--|
| | μ_0 H//ab | μ ₀ Η//c | μ₀ <i>Η</i> //c | μ_0 Hl/ab | |
| МсҮ | - | 93,24 | -1,82 | - | |
| McSr002 | - | 92,14 | -1,76 | - | |
| McSr010 | 90,37 | 90,12 | -1,66 | -6,36 | |
| McSr025 | 87,84 | 87,86 | -1,54 | -5,38 | |
| McSr037 | 85,98 | 86,07 | -1,33 | -4,71 | |

Tabela 5.5 – Valores de $T_c(0)$ e $d\mu_0 H_{c2}/dT$ obtidos a apartir do ajuste linear empregado na disposição dos dados de $T_c(H)$ representados na figura 5.9

É importante destacar que $\mu_0 dH_{c2}/dT$ diminui praticamente a uma taxa constante, veja figura 5.10, tanto para H // c quanto para H // ab, a medida em que o montante de Ba vai sendo substituído por Sr na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ} de nossas amostras. Esse comportamento, de certa forma, reproduz o que foi observado para o comportamento de $\bar{c}(x)$ e $T_c(x)$, ambos ilustrados na figura 5.5.

Conforme discutido na seção 1.7, o parâmetro de anisotropia, γ pode ser expresso em termos da razão $H_{c2}^{ab}(0) / H_{c2}^{c}(0)$, equação (1.37). O comportamento de $\gamma(x)$, onde x representa a concentração de Sr, verificado para as nossas amostras é muito semelhante ao apresenatdo por monocristais de Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₄O₈ [76 -77]. Algumas variáveis do estado supercondutor do composto Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₄O₈, apresentam comportamento semelhante as variáveis discutidas no capítulo 3 para o composto Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₃O_{7- δ}, [76 -77]. Neste contexto, foi verificado que o valor de $\gamma(x)$, no de Y(Ba_{1-x}Sr_x)₂Cu₄O₈, foi reduzido de 12 (x = 0%) para 9 (x = 32%). Os autores das referências [76 -77] argumentam que esta redução está diretamente relacionada a diminuição da distância entre os planos supercondutores e as cadeias lineares na estrutura cristalográfica do sistema YBa₂Cu₄O₈, quando x aumenta de 0 até 32%. Comportamento semelhante apresentado por esta distância foi observado para o YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7- δ}, para maiores detalhes, veja a seção 3.1. Desta forma, segundo os autores das referências [76-77], o aumento da quantidade de Ba substituído por Sr torna o bloco supercondutor (planos supercondutores e cadeias lineares) mais próximos, e portanto, mais acoplados entre sí, o que justificaria a redução apresentada pelo parâmetro $\gamma(x)$.



Figura 5.10 – O comportamento da taxa de variação de H_{c2} em função da concentração de Sr para as amostras pesquisadas tanto para H//ab quanto para H//c.

5.6 As Funções de Escala 2D e 3D-LLL Aplicadas ao Comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das Amostras Pesquisadas

As figuras 5.11 e 5.14 ilustram, em sequência, o comportamento apresentado pelos dados de $M_{ZFC}(T,H)$, apresentados nas figuras 5.7 e 5.8, quando estes foram submetidos as funções de escala 2D e 3D-LLL. As figuras 5.11 e 5.12 dão ênfase aos resultados obtidos com a aplicação da função de escala 2D-LLL para H // c e H // ab, respectivamente, ao passo que as figuras 5.13 e 5.14 ao escalonamento 3D-LLL para H // c e H // ab.

È importante ressaltar que as figuras 5.11 à 5.14, quando aplicável, serão apresentadas em escalas idênticas. Este critério é empregado com o propósito de tornar mais evidente os prováveis efeitos da substituiçao parcial do Ba por Sr no composto YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ}.



Figura 5.11 – O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 2D-LLL quando $10kOe \le H \le 50kOe$ são aplicado paralelamente ao eixo *c*. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que $T_c(0)$ (seta tracejada) indica o valor da temperatura de transição em H = 0



Figura 5.12 – O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 2D-LLL quando $10kOe \le H \le 50kOe$ são aplicado paralelamente ao plano *ab*. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que $T_c(0)$ (seta tracejada) indica o valor da temperatura de transição em H = 0.



Figura 5.13 – O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 3D-LLL quando $10kOe \le H \le 50kOe$ são aplicado paralelamente ao eixo *c*. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que $T_c(0)$ (seta tracejada) indica o valor da temperatura de transição em H = 0



Figura 5.14 - O comportamento de $M_{ZFC}(T)$ das amostras monocristalinas, descritas através da função de escala 3D-LLL quando $10kOe \le H \le 50kOe$ são aplicado paralelamente ao plano *ab*. A temperatura T_{LLL}^i (seta contínua) representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante ao passo que Tc(0) (seta tracejada) indica o valor da temperatura de transição em H = 0.

No que tange as funções de escala 2D e 3D-LLL, ambas são obtidas a partir da equação (2.23) reproduzida a seguir:

$$\frac{M}{(HT)^{(n-1)/n}} \propto \frac{T - Tc(H)}{(HT)^{(n-1)/n}}$$

Na expressão anterior, n = 2 remete a função de escala 2D-LLL e n = 3 a função de escala 3D-LLL. Por outro lado, conforme discutido na seção 2.3, verificouse que o comportamento da magnetização, tanto para aplicação de H // c quanto para H // ab, pode ser expresso em termos de uma função de escala, para maiores detalhes, veja a seção 2.3, equações 2.19 e 2.20. Desta forma, pode-se estender os formalismo 2D e 3D-LLL levando em consideração os efeitos da anisotropia planar provenientes da estrutura intrínseca dos HTSC.

Nas figuras 5.11 à 5.14 também encontram-se destacados o comportamento de três temperaturas características cujos siginificados serão discutidos nos próximos parágrafos.

A temperatura de transição, $T_c(0)$, recebe a denominação de temperatura de transição de campo médio. Ela é determinada a partir da extrapolação linear, em relação ao eixo das temperaturas, do comportamento de dH_{c2}/dT ilustrado pela figura 5.9, cujos valores, a ela atribuídos, encontram-se listados na tabela 5.5.

A temperatura de irreversibilidade magnética, $T_{irr}(H)$ apresenta a sua definição e relevância, para a caracterização do comportamento da magnetização reversível, discriminados nas seções 1.5 e 5.3, respectivamente.

A temperatura T_{LLL}^{i} , introduzida na seção 2.5, representa uma estimativa para a temperatura a partir da qual o formalismo LLL torna-se preponderante para justificar o comportamento das FT da magnetização diamagnética de nossas amostras. O valor de T_{LLL}^{i} é obtido a partir da relação 2.35, descrita a seguir:

$$T_{LLL}^{i}(H) \geq T_{c}(0) - 3H \left| \frac{dH_{c2}}{dT} \right|^{-1}$$

Particularmente, nas figuras 5.11 à 5.14 encontra-se indicado o valor de $T_{LLL}^i(H)$ estimado quando H = 50kOe foi aplicado para as configurações H // ab e H // c.

Por outro lado, chama a atenção na figura 5.11 a linha pontilhada traçada sobre os dados de magnetização, obtidos para 20kOe $\leq H \leq$ 50kOe escalados a partir da aplicação da função 2D-LLL. Esta linha pontilhada, identificada na legenda por "Fit" 2D-LLL, representa, um ajuste analítico obtido com o emprego da equação (2.26) arranjada da seguinte forma:

$$\frac{M}{(HT)^{1/2}} = P[x - (x^2 + 2)^{1/2}]$$

Na equação anterior, *P* é um parâmetro de ajuste, definido como: *P* = $\frac{A}{s\phi_0} \left| \frac{dH_{c2}}{dT} \right|^{-1}$ sendo *A* uma variável dependente do parâmetro G-L, *k* e de dH_{c2}/dT , ao passo que *s* corresponde a distância ineterplanar e ϕ_0 é o "quantum" de fluxo. Por outro lado, $x = A \left[T - T_c(H) \right] / (TH)^{1/2}$.

Os valores médios determinados para P, os quais melhor constroem os ajustes, identificados como "Fit" 2D-LLL, na figura 5.11, não reproduziram os valores de dH_{c2}/dT apresentados na tabela 5.5 para a configuração H // c.

É possível verificar, especialmente para H //c, que tanto para o comportamento 2D-LLL quanto para o 3D-LLL o escalonamento dos dados de $M_{ZFC}(T)$ torna-se efetivo para $H \ge 20$ kOe e para temperaturas iguais ou superiores a $T_{irr}(H)$, conforme é identificado em outros trabalhos, neste tema, citados na literatura [40 - 43].

Por outro lado, a disposição de T_{LLL}^i , ao longo dos gráficos das figuras 5.11 à 5.14, indica que a efetivação dos comportamentos 2D e 3D-LLL, encontra-se situada no intervalo de temperaturas no qual os efeitos das FT podem ser descritos através da aplicação da equação 2.23.

De uma maneira geral, ao avaliar-se o comportamento dos "scalings" 2D-LLL e 3D-LLL, destacados nas figuras 5.11 a 5.14, constata-se que ambas as funções de escala podem serem consideradas para descrever o comportamento das FT nas proximidades de $T_c(H)$ das nossas amostras sendo que os resultados apresentados pelos "scalings" 3D-LLL, de acordo com a nossa concepção, exibem, aparentemente, uma menor flutuação estatística.

Desta forma, buscando uma solução para este impasse, passamos agora a empregar a proposta apresentada por Salem-Sugui e colaboradores [43], discutida no final da seção 2.4, para caracterizar a dimensionalidade de um supercondutor planar sobre aplicação de campo magnético na direção perpendicular aos seus planos. Portanto, nos próximos parágrafos iremos nos dedicar ao cálculo do parâmetro *r*, o qual é dado pela equação (2.32), reproduzida a seguir:

$$r = 8\frac{m}{M} \left[\frac{\delta_{GL}(0)}{\pi s}\right]^2$$

Na equação anterior, *s* é a distância interplanar a qual, aproximadamente, coincide com o valor do parâmetro de rede *c*, cujos valores para as amostras monocristalinas pesquisadas, encontram-se listados na tabela 5.5, $\delta_{GL}(0)$ é interpretado como o comprimento de coerência do plano *ab* quando H = 0 [$\xi_{ab}(0)$], e a razão m/M corresponde a γ^{-2} que é dada pela sua equação (5.1) e também pela equiparação entre as equações (1.30) e (1.37) reproduzida a seguir:

$$\gamma = \frac{\xi_{ab}}{\xi_c} = \frac{H_{c2}^{ab}}{H_{c2}^c} = \left(\frac{m_c^*}{m_{ab}^*}\right)^{1/2}$$
(5.1)

A determinação de $\xi_{ab}(0)$ e $\xi_c(0)$ pode se dar a partir de $|dHc_2/dT|_{T=T_c}$ onde o emprego das equações (1.35) e (2.33), em conjunto, fornece as seguintes expressões para $\xi_{ab}(0)$ e $\xi_c(0)$:

$$\xi_{ab}(0) = \left(\frac{\phi_0}{2\pi T_c(0) \left|\frac{dH_{c2}^c}{dT}\right|_{T=T_c}}\right)^{1/2}$$
(5.2)

е

$$\xi_{c}(0) = \frac{\phi_{0}}{2\pi T_{c}(0)\xi_{ab}(0) \left|\frac{dH_{c2}^{ab}}{dT}\right|_{T=T_{c}}}$$
(5.3)

Por outro lado, uma vez conhecido o valor de dH_{c2}/dT , veja tabela 5.5, quando tratar-se dos resultados obtidos nos monocristais, pode-se determinar o valor de

 $H_{c2}(T = 0)$ através da aplicação da equação (5.4), proveniente da teoria de Werthamer, Helfand e Hohonberg [78].

$$H_{c2}(0) = 0.69T_c \left| \frac{dHc_2}{dT} \right|_{T=T_c}$$
(5.4)

onde T_c pode ser interpretado como $T_c(0)$, cujos os valores, referentes as nossas amostras encontram-se expressos na tabela 5.5.

A tabela 5.6 apresenta os valores obtidos para *r*, determinados em função da concentração de Sr, apresentados pelas nossas amostras, da mesma forma, para as demais grandezas: γ , $\mu_0 H_{c2}^c(0) \in \mu_0 H_{c2}^{ab}(0)$, $H/H_{c2}(0)$, $\xi_c(0) \in \xi_{ab}(0)$.

Tabela 5.6 - Valores obtidos em função da concentração de Sr para os parâmetros γ , $\mu_0 H_{c2}^c(0)$ e $\mu_0 H_{c2}^{ab}(0)$, $H/H_{c2}(0)$, $\xi_c(0)$ e $\xi_{ab}(0)$.

| Amostras | r | γ | $\mu_0 H_{c_2}^c(0)$ | $\mu_0 H_{c_2}^{ab}(0)$ | $H/H_{c2}(0)$ | $\xi_c(0)$ | $\xi_{ab}(0)$ |
|----------|-------|------|----------------------|-------------------------|---------------|------------|---------------|
| | | | (1) | (T) | | (A) | (A) |
| McY | 0,054 | 4,63 | 116,4 | 553,3 | 0,043 | 3,0 | 13,9 |
| McSr002 | 0,081 | 3,86 | 111,9 | 432,3 | 0,045 | 3,7 | 14,3 |
| McSr010 | 0,091 | 3,79 | 103,2 | 396,6 | 0,048 | 3,9 | 14,8 |
| | | | | | , | , | |
| McSr025 | 0,120 | 3,49 | 93,4 | 326,1 | 0,054 | 4,5 | 15,6 |
| McSr037 | 0,140 | 3,54 | 78,9 | 279,4 | 0,063 | 4,8 | 17,0 |
| | | | | | | | |

O valor de $\mu_0 |dH_{c2}^{ab}/dT|$ para a amostra McSr002 foi estimado a partir da extrapolação do ajuste linear em relação ao eixo $\mu_0 dHc_2/dT$ da figura 5.10. O valor fornecido pela extrapolação foi de aproximadamente de -6,8T/K. Por outro lado, o valor de $\mu_0 |dH_{c2}^c/dT|$ para a amostra McY foi obtido das referências [79, 27] sendo - 8,6T/K o valor adotado.

Os resultados obtidos para $\mu_0 H_{c2}^c(0) \in \mu_0 H_{c2}^{ab}(0)$ para o monocristal McY são semelhantes aos apresentados na tabela 1.1, ao passo que os valores obtidos em função da concentração de Sr para os demais monocristais, encontram-se dentro do intervalo 85T $\leq \mu_0 H_{c2}(0) \leq$ 140T relatado na literatura para amostras policristalinas YBa_{2-x}Sr_xCu₃O_{7-δ} (0,10 $\leq x \leq$ 1,00) [19]. Por outro lado, os valores de $\xi_c(0) \in \xi_{ab}(0)$ obtidos para o McY são bastante próximos dos listados na tabela 1.1. No que tange as amostras dopadas, verifica-se que tanto $\xi_c(0)$ como $\xi_{ab}(0)$ aumentam em função da concentração de Sr. Resultados semelhantes são apontados na literatura para o comportamento destas grandezas em monocristais de YBa(Cu_{1-x}M_x)₃O_y onde M = Zn, Ni e Fe e $x \le 4,3\%$. [80-81]. Os autores destes trabalhos sugerem que o aumento de $\xi_c(0)$, observado em função da ação destas impurezas, provavelmente está conectado a intensificação do mecanismo de quebra dos pares de Cooper, e a uma provável modificação do acoplamento interplanar do parâmetro de ordem supercondutor, no caso do aumento observado para $\xi_{ab}(0)$.

Em relação ao comportamento de $\gamma(x)$, apresentado na tabela 5.6, ele reproduz o comportamento observado em monocristais de YBa_{2-x}Sr_xCu₄O₈, consulte a seção 5.5, entretanto, demostrando uma tendência a ter, provavelmente, alcançando um valor de saturação em função de *x* quando comparamos os valores para ele determinados nas amostras McSr025 e McSr037.

A partir dos comportamentos discriminados para $r \ e \ H/H_{c2}(0)$, listados na tabela 5.6, levando em consideração que o valor máximo empregado para $\mu_0 H$ foi 5T, é possível construir o diagrama $H/H_{c2}(0)$ versus r, conforme ilustrado na figura 2.9, com o objetivo de verificar a dimensionalidade dos supercondutores em questão. De fato, isto foi realizado e uma versão semelhante para este diagrama é apresentado na figura 5.15.



Figura 5.15 - Diagrama $H/H_{c2}(0)$ versus *r* empegado para classificar a dimensionalidade das FT das amostras pesquisadas.

De acordo com o comportamento apresentado por r(x) na figura 5.15, é possível observar que a dimensionalidade de nossas amostras é tridimensional, fato que elege, conforme discutido na seção 2.4, o formalismo 3D-LLL como sendo o mais adequado para tratar os efeitos das FT na magnetização diamagnética de nossas amostras na configuração H//c. Por outro lado, é visível que o ajuste universal 2D-LLL, fornecido pela equação 2.26, empregado na descrição do comportamento dos dados de $M_{ZFC}(T,H)$, da figura 5.11 não reproduz este comportamento na totalidade do intervalo de temperatura situado entre $T_{irr}(H)$ e $T_c(0)$, especialmente nas proximidades de $T_c(H)$.

Os "scalings" 2D-LLL, figura 5.12 e 3D-LLL, figura 5.14, apresentados pelos dados de $M_{ZFC}(T,H)$ para H // ab pelas amostras McSr010, McSr025 e McSr037 não tiveram seus comportamentos contrastados com r(x), em virtude, do cálculo deste parâmetro não ser concebido para a configuração H // ab, para maiores detalhes consulte a seção 2.4. Por outro lado, de acordo com o nosso conhecimento, a função universal 2D-LLL, representada pela equação (2.26), também não se aplica para H // ab, ao passo que a função universal 3D-LLL pode ser empregada nesta configuração, veja figura 2.6 e a referência [43], entretanto ela está sujeita as mesmas condições da equação (2.28) as quais inviabilizam a sua aplicação a partir dos recursos computacionais que dispomos, para maiores detalhes, veja seção 2.4.

Desta forma, como não temos condições de aplicar os critérios empregados para os dados obtidos para a configuração H//c, figuras 5.11 e 5.13, na identificação de qual dos formalismos, 2D ou 3D-LLL, melhor justificaria os efeitos das FT sobre a magnetização diamagnética das amostras listadas nas figuras 5.12 e 5.14, para a configuração H//ab, passamos então a optar pela seguinte linha de raciocínio, a qual será descrita no próximo parágrafo.

O aumento da concentração de Sr nas amostras McSr010, McSr025 e McSr037 não resulta em aumento proporcional no intervalo de temperatura no qual o formalismo LLL se aplica, confinando-o as proximidades de $T_c(H)$, onde os efeitos das FT em 3D são proeminentes. Desta forma, este comportamento nos faz acreditar que o caráter dos efeitos das FT sobre o comportamento da magnetização diamagnética das amostras McSr010, McSr025 e McSr037, seja tridimensional, o que corrobora para que o scaling" 3D-LLL seja o mais indicado para interpretá-lo, assim como foi observado ocorrer na literatura para outros resultados na configuração H // ab, [23, 79, 82]. Por outro lado, acreditamos que uma possível interferência sobre o comportamento do regime 3D-LLL das amostras McSr010, McSr025 e McSr037 em virtude do desalinhamento dos planos de maclas em relação a direção do campo magnético aplicado ao longo do plano *ab* seja irrelevante uma vez que esta questão foi pesquisada na literatura [82] e os resultados obtidos, em monocristais de YBa₂Cu₃O_{7-δ}, mostraram que o comportamento apresentado pelas flutuações termodinâmicas dos vórtices mostrou-se inalterado frente esta possibilidade.

Na literatura, encontram-se listados poucos trabalhos, os quais exploram o papel da adição de impurezas, e até mesmo da pressão hidrostática, sobre o comportamento das FT na magnetização diamagnética de supercondutores sobre o ponto de vista do formalismo LLL, entre eles podemos citar trabalhos identificados pelas referências [43, 81 - 86]. Por outro lado, a maioria dos trabalhos neste tema, referem-se a monocristais de YBa₂Cu₃O_{7-δ}, otimamente oxigenados, os quais, além dos que já foram citados para H// *ab*, aparecem listados nas referências [22, 83-84].

Na figura 5.16 encontra-se ilustrado o comportamento do regime 3D-LLL apresentado para cada uma das amostras pesquisadas neste trabalho quando H = 50kOe foi aplicado paralelamente ao eixo *c* destas.



Figura 5.16 – O comportamento 3D-LLL de $M_{ZFC}(T)$ quando H = 50kOe foi aplicado ao longo do eixo c dos monocristais pesquisados neste trabalho.

É importante verificar que o comportamento 3D-LLL, ilustrado na figura anterior, apresenta uma dependência em função da concentração de Sr diferente daquela exibida por outros parâmetros, como $\xi(0)$ $H_{c2}(0)$, e $T_c(0)$. Considerando que todas as amostras pesquisadas neste trabalho apresentem uma dopagem em oxigênio próxima da óptima, então, pode-se verificar que para $T > T_{irr}(H)$ as diferentes pressões químicas exercidas provocam uma resposta não uniforme por parte dos comportamentos dos "scalings" 3D-LLL ilustrados na figura 5.16.

Por outro lado, na figura 5.17 encontra-se ilustrado o efeito da anisotropia planar sobre os comportamentos dos "scalings" 3D-LLL das amostras indicadas, onde a dinâmica deste efeito, se dá em função da elevação da concentração de Sr de 5% para 18%.



Figura 5.17 – O efeito da anisotropia planar no comportamento dos scaling 3D-LLL das amostras McSr010, McSr025 e McSr037, onde $T_c(0)$ indica o valor da temperatura de transição em H = 0

Ao encerrarmos esta seção, gostaríamos de ressaltar que de acordo com nosso conhecimento, a realização de um estudo experimental, dedicado a pesquisa dos efeitos da pressão química sobre o comportamento das FT na magnetização diamagnética do supercondutor YBa₂Cu₃O_{7-δ}, constitui-se num estudo original, onde o comportamento destes efeitos foi descrito por meio do formalismo 3D-LLL, tanto para H// *ab* quanto para H// *c*, a medida em que a concentração de Sr foi elevada de zero até 18%. O estudo deste efeito não foi ampliado para maiores concentrações de Sr em virtude do fato de não termos conseguido êxito no crescimento de monocristais com concentrações superiores a 18%.

Por outro lado, foi possível verificar que a aplicação de diferentes pressões químicas, até o limite de 18% do Ba substituído por Sr, proporcionou que a dinâmica dos efeitos das FT na magnetização diamagnética de nossas amostras fosse descrita em termos do "scaling" 3D-LLL. Por outro lado, não foi verificado o indício de "crossover" 2D-3D, nas proximidades de $T_c(H)$, em função da pressão química aplicada sobre magnetização reversível de nossas amostras, como foi observado ocorrer em monocristais de YBa₂Cu₃O₇₋₈, sub-dopados em oxigênio [32, 43, 85].

A descrição dos efeitos das FT na magnetização reversível de nossas amostras dopadas com Sr em termos do formalismo 3D-LL é justificado pelo fato de que o aumento em até 18% do Ba substituído por Sr na estrutura de nossos monocristais promoveu a diminuição do parâmetro de anisotropia, γ tornando o acoplamento entre o bloco supercondutor (planos supercondutores e cadeias lineares) mais compacto, o que favoreceu ao fortalecimento das FT em 3D. Por outro lado, a pressão química exercida pela dopagem com Sr produziu um amento significativo no intervalo de temperaturas, onde os efeitos das FT sobre a magnetização diamagnética são relevantes quando comparado a este mesmo parâmetro no material puro.

CONSIDERAÇÕES FINAIS

Realizamos um estudo experimental por meio de medidas de magnetização DC, em função da temperatura e do campo magnético, sobre o papel desempenhado pela pressão química sobre os efeitos das FT na magnetização diamagnética reversível de monocristais de YBa₂Cu₃O_{7-δ}. O nível de pressão química aplicado foi correspondente a substituição nominal de até 18% do Ba por Sr, na estrutura cristalina do YBa₂Cu₃O_{7δ}. A contribuição destes efeitos foram determinados por meio da análise do comportamento da magnetização reversível, M(T,H) das amostras pesquisadas através do formalismo LLL. A seguir, listamos, de maneira simplificada, porém consistente, os principais resultados obtidos com a realização deste estudo.

A) Caracterização Estrutural

A análise dos difratogramas de RX das amostras pesquisadas revelam que a substituição parcial de aproximadamente 18% do Ba por Sr, na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ} [12-13], resultou na compressão da cela unitária deste sistema, caracterizando assim o efeito de pressão química na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ}.

Por outro lado, a MLP, mostrou que a superfície dos monocristais dopados é caracterizada pela existência de planos de maclas.

B) <u>O Comportamento de $T_c(x)$ </u>

O comportamento de $T_c(x)$ das amostras dopadas quimicamente com Sr, apresentou uma diminuição nominal à uma taxa constante, de aproxidamente 20K/x Acredita-se que esse fenômeno ocorre, em virtude da pressão química acionar a transferência de cargas das cadeias lineares para os planos supercondutores no YBa₂Cu₃O_{7-δ}.

C) O Comportamento de Magnetização DC Reversível

Os dados de $M_{ZFC}(T)$ das amostras pesquisadas, especialmente para a configuração H//c, tiveram o seu comportamento afetado pelas FT as quais manifestam os seus efeitos sobre este comportamento no intervalo de temperatura contido entre *Tirr*(*H*) e *T_c*(*H*) em campos magnéticos aplicados superiores a 10kOe.

D) <u>O Comportamento do parâmetro de anisotropia, γ e demais parâmetros do estado supercondutor</u>

O parâmetro de anisotropia γ diminui praticamente a uma taxa constante em relação da concentração de Sr empregada nas amostras pesquisadas. O comportamento por ele apresentado, de certa forma, reproduz os efeitos da pressão química observados no comportamento do eixo cristalográfico *c* e de *T_c* em função da concentração de Sr. Por outro lado, os comprimentos $\xi_c(0)$ e $\xi_{ab}(0)$ exibem uma elevação substancial de seus valores a medida em que a concentração de Sr na estrutura do YBa₂Cu₃O_{7-δ} é elevada de 0 até 18%. Comportamento oposto observado para $H_{c2}^c(0)$ e $H_{c2}^{ab}(0)$ em função da concentração de Sr.

E) As Funções de Escala 2D e 3D-LLL Aplicadas ao Comportamento de M_{ZFC}(T)

É possível verificar, especialmente para H//c, que tanto para o comportamento 2D-LLL quanto para o 3D-LLL o escalonamento dos dados de $M_{ZFC}(T)$ tornou-se efetivo para $H \ge 20$ kOe e para temperaturas iguais ou superiores a $T_{irr}(H)$, entretanto, a aplicação da função universal 2D-LLL mostrou-se insatisfatório no objetivo de reproduzir este comportamento para os dados de $M_{ZFC}(T)$ na configuração H//c das amostras pesquisadas, tornando improvável a aplicação do formalismo 2D-LLL para interpretar os efeitos das FT sobre a magnetização reversível das nossas amostras. Entretanto o resultado fornecido pelo cálculo do parâmetro r indicou que a dimensionalidade das FT na magnetização diamagnética das amostras pesquisadas é a 3D, o que permitiu afirmar que o formalismo 3D-LLL é o mais indicado para interpretar os efeitos das FT sobre a magnetização diamagnética reversível.

<u>O Papel da pressão química sobre os efeitos das FT na magnetização</u> reversível

A pressão química exercida pela substituição parcial de 18% do Ba por Sr na estrutura cristalina do YBa₂Cu₃O_{7-δ}, torna o bloco supercondutor (estrutura constituída dos planos supercondutores e cadeias lineares) mais compacta. Esta peculiaridade, não apenas colaboraria para a manutenção do caráter 3D para as FT na magnetização diamagética reversível do YBa₂Cu₃O_{7-δ}, como também colaboraria para a intensificação deste comportamento.

APÊNDICE A

Neste apêndice o formalismo "lowest Landau level" (LLL) aplicado a densidade de energia livre G-L será discutido em termos da aproximação Gaussiana (teoria de campo médio) [40]. A fundamentação da aproximação Gaussiana se dá a partir da desconsideração do termo quártico da função de partição representada na equação (1.41). Esta aproximação é justificada em virtude que nas proximidades da transição supercondutora o valor do parâmetro de ordem $|\psi|^2$ é muito pequeno. Sendo assim, a equação (1.41) pode ser escrita da seguinte forma:

$$Z = \int D\psi \exp\left\{-\int \frac{1}{k_B T} \left[\alpha |\psi|^2 + \frac{1}{2m^*} \left| \left(\frac{\hbar \nabla}{i} - \frac{e^* \vec{A}}{c}\right) \psi \right|^2 \right] d^3 r \right\}$$
(A.1)

Agora, utilizando a solução da equação (1.23), a seguir reproduzida:

$$H = \frac{\phi_0}{2\pi(2n+1)} \left(\frac{1}{\xi^2} - k_z^2\right)$$

na equação (A.1), obtém-se:

$$Z = \int D \,\psi exp\left\{-\frac{1}{k_B T} \left[\alpha + \xi^2(0)k_z^2 2h\left(n + \frac{1}{2}\right)\right] \int |\psi|^2 d_r^3\right\}$$
(A.2)

Na expressão (A.2) a variável h é definida como:

$$h = \xi^2(0) \left(\frac{e^*H}{\hbar c}\right) \tag{A.3}$$

A aplicação do campo magnético *H* se dará ao longo da direção *z* (*H*//*z*) sendo esta configuração adotada ao longo do desenvolvimento do formalismo a ser discutido neste apêndice. Conforme observado na equação (A.2) as flutuações estão contidas dentro da integral, sendo que o termo ψ está sendo integrado em torno de todos os seus valores possíveis os quais podem serem assumidos na transição supercondutora, sendo cada um deles considerado com seu respectivo peso estatístico.

$$Z = \prod_{k_z k_y n} \left[\frac{\pi k_B T}{\alpha + \xi^2(0) k_z^2 + 2h\left(n + \frac{1}{2}\right)} \right]^{1/2}$$
(A.4)

Agora, introduzindo a expressão (A.4), a equação (1.42), a qual relaciona a energia livre a função partição [$F = -K_B T ln(Z)$], obtém-se:

$$F = -k_B T ln \left\{ \prod_{k_Z k_Y n} \left[\frac{\pi k_B T}{\alpha + \xi^2(0) k_Z^2 + 2h\left(n + \frac{1}{2}\right)} \right]^{1/2} \right\}$$
(A.5)

Na equação (A.5) observa-se que *F* depende dos diferentes níveis de Landau (n), do vetor de onda, na direção do eixo $z (k_z)$ e também do vetor de onda k_{y} , o qual está associado com a localização do centro das órbitas dos níveis de Landau, as quais estão degeneradas. Desta forma, a energia livre de Helmholtz, equação (A.5), pode ser escrita como:

$$F = -\frac{k_B V e^* H T}{4\pi^2 c \hbar} \int \sum_{n=0}^{\infty} ln \left(\frac{\pi k_B T}{\alpha_H + \xi^2(0) k_z^2 + 2hn} \right) dk_z$$
(A.6)

onde $\alpha_H = \alpha + h$, sendo $\alpha(T)$ dado pela equação (1.4) e *h* o campo magnético microscópico. A variável α_H representa uma translação da variável α (que ao longo do diagrama *H*-*T*, situa-se na linha do eixo das temperaturas) para a linha de Hc_2 . Portanto, α_H indica a proximidade ao ponto da transição quando se está na presença de campo magnético aplicado.

A partir da aplicação da equação (A.6) na equação (2.11) $[M = -(\partial F / \partial H)_T]$, para a energia livre de Helmholtz, pode-se calcular a expressão para a magnetização, segundo a aproximação GL-LLL sobre o ponto de vista da teoria de campo médio.

$$M = -\frac{\sqrt{2} k_B V(e^*)^2 HT}{8\pi \sqrt{a_0} m^* \hbar c^2} \sum_{n=0}^{\infty} (\alpha_H + 2hn)^{-\frac{1}{2}}$$
(A.7)

Observa-se também que a expressão (A.7) depende do somatório dos níveis de Landau *n*, apresentando dois limites, um para altos campos magnéticos e o outro para baixos campos magnéticos.

No que tange ao limite de altos campos magnéticos, considerando-se o termo n = 0, veja a equação (2.15) e (2.16), sendo assim, a expressão (A.7) para a magnetização pode ser rescrita da seguinte maneira:

$$M = -\frac{\sqrt{2} k_B V(e^*)^2 HT}{8\pi \sqrt{a_0 m^* \hbar c^2}} \sum_{n=0}^{\infty} (\alpha_H)^{-\frac{1}{2}}$$
(A.8)

É possível verificar que na temperatura de transição a equação (A.8) diverge o que corrobora para que a aplicação do termo quártico seja considerado na equação da densidade de energia livre G-L.

APÊNDICE B

Neste apêndice será desenvolvido a solução da função de partição representada pela equação (A.2) [40]. A integral da expressão (A.2) é denominada de gaussiana e é obtida, considerando apenas a predominância do termo $|\psi|^2$ na expansão da energia livre de Landau. Esta integral tem como característica o fato de fornecer uma solução exata. A integral em questão é representada pela equação (B.1):

$$I = \int (D\phi) exp \int \left[-\frac{1}{2} |\nabla \phi(x)|^2 - \frac{1}{2} r_0 \phi^2(x) + \phi(x) \eta(x) \right] (dx)$$
(B.1)

A expressão acima pode ser reescrita da seguinte forma:

$$I = \int (D\phi) exp \int \left[-\frac{1}{2}(\phi, K\phi) + (\eta, \phi) \right]$$
(B.2)

A forma representada pela equação (B.2) expressa a integral (B.1) em termos de *x* como um produto interior onde $k \equiv r_0 - \nabla^2$. Considerando a integral complementar (completando com o termo ao quadrado), obtêm-se:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \frac{1}{\sqrt{2\pi}} exp\left(-\frac{1}{2}K\phi^2 + \eta\phi\right) d\phi = \frac{1}{\sqrt{K}} exp\left(\frac{\eta^2}{2K}\right)$$
(B.3)

De maneira geral, pode escrever a integral a integral (B.2) como:

$$I = \int (D\phi) exp\left[-\frac{1}{2}(\phi, K\phi) + (\eta, \phi)\right] = (det \ K)^{-1/2} exp\frac{1}{2}(\eta, K^{-1}\eta)$$
(B.4)

onde o det *K* é o produto dos autovalores do operador *K*. Esta expressão, é invariante mediante transformações unitárias do vetor ϕ , que geralmente transforma *K* em uma matriz diagonal.

APÊNDICE C

Neste apêndice será desenvolvido os procedimentos algébricos que levaram a expressão (2.14) a energia livre de Helmhotz [40]

Esta expressão (2.14) é obtida através da resolução da equação linearizada de Ginzburg-Landau (1.8), quando esta encontra-se dependente da anisotropia de massa da amostra e do ângulo do campo magnético aplicado.

$$\alpha\psi - \frac{\hbar^2}{2m_{ab}^*}\nabla_{\perp}\psi - \frac{\hbar^2}{2m_c^*}\nabla_{//}\psi + \frac{1}{2m_{ab}^*}\left(\frac{(e^*)^2A_y^2}{c^2} - \frac{2e^*\hbar A_y}{ic}\frac{\partial}{\partial y}\right)\psi = 0$$
(C.1)

onde ∇_{\perp} e $\nabla_{//}$ são os Laplacianos no plano *ab e* eixo *c* respectivamente, A_y representa direção de campo magnético aplicado adotada. Neste caso, A_y é dado pela escolha da equação (2.5). Introduzindo A_y em (C.1) e aplicando o termo $\psi = e^{ik_y y}\psi^*$ como uma provável solução, obtém-se:

$$\alpha\psi^{*} - \frac{\hbar^{2}}{2m_{ab}^{*}}\frac{d^{2}\psi^{*}}{dx^{2}} + \frac{\hbar^{2}k_{y}^{2}}{2m_{ab}^{*}}\psi^{*} - \frac{\hbar^{2}}{2m_{c}^{*}}\frac{d^{2}\psi^{*}}{dz^{2}} + \frac{1}{2m_{ab}^{*}}\left[\frac{2e^{*}\hbar Hk_{y}}{c} - (C.2)\right]$$
$$(zsen\theta - xcos\theta) + \frac{(e^{*})^{2}H^{2}}{c^{2}}xsen\theta - zcos\theta \psi^{*} = 0$$

A expressão (C.3) é empregada para promover a separação da equação (C.2).

$$\binom{x'}{z'} = \begin{pmatrix} \cos\theta & -\sin\theta \\ a \sin\theta & b \cos\theta \end{pmatrix} \binom{x}{y}$$
(C.3)

com qual obtém-se as seguintes relações para as derivadas segundas de x e

$$\frac{d^2}{dx^2} = \cos^2\theta \,\frac{d^2}{dx'^2} + 2a\,\sin\theta\,\cos\theta \,\frac{d^2}{dz'dx'} + a^2 \sin^2\theta \,\frac{d^2}{dz'^2} \tag{C.4}$$

Ζ.

$$\frac{d^2}{dz^2} = sen^2\theta \frac{d^2}{dx'^2} + 2a \, sen\theta \, cos\theta \frac{d^2}{dz'dx'} + b^2 cos^2\theta \frac{d^2}{dz'^2},\tag{C.5}$$

Agora, aplicando as equações (C.4) e (C.5) em (C.2), percebe-se que é necessário promover as seguintes substituições: a = 1 e $b = \frac{m_c^*}{m_{ab}^*}$ para eliminar as derivadas segundas correlacionadas. Após promovida estas implicações, propõem-se o termo $\psi^* = e^{ik'z^Z}\psi^*$ como sendo uma provável solução da equação (C.2), onde:

$$\begin{aligned} \alpha\psi' - \frac{\hbar^2 \cos^2}{2m_{ab}^*} \frac{d^2\psi'}{dx'^2} + \frac{\hbar^2 k_y^2}{2m_{ab}^*} \psi' + \frac{\hbar^2 a^2 \sin^2 \theta k_z' \psi'}{2m_{ab}^*} - \frac{\hbar^2 \sin^2 \theta d^2 \psi'}{2m_c^*} + \frac{\hbar^2 b^2 \cos^2 \theta k_z' \psi}{2m_c^*} \\ - \frac{1}{2m_{ab}^*} \left(\frac{2(e^*)^2 \hbar H k_y x'}{c} - \frac{(e^*)^2 H^2 x'^2}{c^2} \right) \psi^* = 0 \end{aligned}$$
(C.6)

A equação (C.6) pode ser escrita da seguinte forma:

$$-\left(\cos^{2}\theta + \frac{m_{ab}^{*}}{m_{c}^{*}}\sin^{2}\theta\right)\frac{d^{2}}{d{x'}^{2}} + \left(\frac{2\pi H}{\phi_{0}}\right)^{2}(x'-x_{0})^{2} = \frac{1}{\xi_{ab}^{2}} - k_{z}^{\prime 2}\left(\sin^{2}\theta + \frac{m_{c}^{*}}{m_{ab}^{*}}\cos^{2}\theta\right)$$
(C.7)

Aplicando as considerações empregadas para a obtenção das equações (1.15) à (1.24) é possível expressar *H* como:

$$H = \frac{\phi_0}{2\pi} \frac{1}{(2n+1)} \frac{\left[\frac{1}{\xi_{ab}^2} - k_z'^2 \left(sen^2\theta + \frac{m_c^*}{m_{ab}^*}cos^2\theta\right)\right]}{\left(cos^2\theta + \frac{m_{ab}^*}{m_c^*}sen^2\theta\right)^{1/2}}$$
(C.8)

Para calcular neste caso o campo crítico Hc_2 , levando em consideração a dependência anisotrópica das massas e do ângulo de incidência do campo magnético em relação a anisotropia do sistema, adota-se $k'_z = 0$ e n = 0 em (C.8), o que fornece:

$$Hc_{2} = \frac{\phi_{0}}{2\pi} \frac{\left(\frac{1}{\xi_{ab}^{2}}\right)}{\left(\cos^{2}\theta + \frac{m_{ab}^{*}}{m_{c}^{*}} sen^{2}\theta\right)^{1/2}}$$
(C.9)

sendo que a equação anterior pode ser expressa como:

$$\left(\frac{H_{c2}\,sen\theta}{H_{c2}^{ab}}\right)^2 + \left(\frac{H_{c2}\,cos\theta}{H_{c2}^c}\right)^2 = 1 \tag{C.10}$$

onde H_{c2}^{ab} e H_{c2}^{c} são os campos críticos superiores nas direções *ab* e *c* respectivamente. A equação (C.10) define H_{c2} para qualquer direção de campo magnético aplicado.

A determinação da equação (2.6) ocorre a partir da aplicação da equação (A.2) em conjunto com a solução expressa pela equação (C.8) o que permite afirmar:

$$Z = \int D \psi e^{\left\{-\frac{1}{k_B T} \left[\alpha + \frac{\hbar^2}{2m_{ab}^*} \left[\left(n + \frac{1}{2}\right) \left(\frac{2e^*H}{\hbar c}\right) \left(\cos^2\theta + \frac{m_{ab}^*}{m_c^*} \sin^2\theta\right)^{\frac{1}{2}} + k^2 \left(\sin^2\theta + \frac{m_c^*}{m_{ab}^*} \cos^2\theta\right)\right]\right] \int |\psi|^2 dr^3\right\}}$$
(C.11)

A equação acima é denominada de função de partição, já mencionada no capítulo 2, para o caso anisotrópico e com a dependência angular. Usando a integral Gaussiana do apêndice B em (C.11), e utilizando também a relação estatística a qual relaciona a função de partição e a energia livre de Helmoltz (1.42), obtêm-se a equação (2.6):

$$F = -\frac{k_B T e^* H V g(\theta)}{4\pi^2 c\hbar} \int \sum_{n=0}^{\infty} ln \left(\frac{\pi k_B T}{\bar{\alpha}_{\theta} + 2nh_{\theta} + \xi_{ab}^2(0)g(\theta)k^2} \right) dk$$
(2.6)

.onde:

$$\xi_{ab}^2 = \frac{\hbar^2}{2am_{ab}^*}$$
(2.7)

$$\bar{\alpha}_{\theta} = \bar{\alpha} + h_{\theta} \tag{2.8}$$

$$h_{\theta} = \xi_{ab}^{2}(0) \left(\frac{e^{*}H}{\hbar c}\right) \left(\frac{m_{ab}^{*}}{m_{c}^{*}}\right)^{1/2} g(\theta)^{1/2}$$
(2.9)

$$g(\theta) = sen^2\theta + \frac{m_c^*}{m_{ab}^*}cos^2\theta$$
(2.10)

REFERÊNCIAS BIBLIOGRÁFICAS

[1] MOURACHKINE, Andrei. Room-temperature superconductivity. Cambridge: Cambridge International Science Publishing, 2004. 310 p.

[2] BARDEEN, J.; COOPER, L. N.; SCHRIEFFER, J. R. Theory of superconductivity. **Physical Review**, v. 108, n. 5, p. 1175–1204, 1957.

[3] KOBAYASHI, Norio et al. Fluctuation effects in specific heat and magnetization of c-axis aligned (Bi, Pb) 2Sr2Ca2Cu3Ox. **Physica C: Superconductivity**, v. 219, n. 3-4, p. 265-272, 1994.

[4] YESHURUN, Y.; MALOZEMOFF, A. P.; SHAULOV, A. Magnetic relaxation in high-temperature superconductors. **Reviews of Modern Physics**, Woodbury, v. 68, n. 3, p. 911-949, July 1996.

[5] INNES, R. A. C.; RHODERICK, E. H. Introduction to superconductivity. 2^a ed. Oxford:Pergamon Press, 1978.

[6] VIEIRA, Valdemar. Efeito das Substituições Químicas na Irreversibilidade Magnética e Magnetocondutividade do Supercondutor YBa2Cu3O7-δ. 2004. Tese (Doutorado em Ciências) – Instituto de Física, Universidade Federal do Rio Grande do Sul, Porto alegre.

[7] CYROT, Michel; PAVUNA, Davor (Ed.). Introduction to superconductivity and high-Tc materials. World Scientific Publishing Co Inc, 1992.

[8] GERALD Burns, High-Temperature Superconductivity, An Introduction, by Academic Press, Inc. (1992).

[9] 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**, v. 60, n. 21, p. 2202, 1988.

[10] VIEIRA, Valdemar das Neves; DA SILVA, J. P.; SCHAF, Jacob. Irreversibility limits of the Abrikosov and Josephson flux dynamics in homogeneous and granular high-T_c superconductors. **Physical Review B**, v. 64, n. 9, p. 094516, 2001.

[11] SUPELANO, G. I.; SANTOS, A. Sarmiento; VARGAS, CA Parra. Magnetic fluctuations on TR 3 Ba 5 Cu 8 O δ (TR= Ho, Y and Yb) superconducting system. **Physica B: Condensed Matter**, v. 455, p. 79-81, 2014.

[12] LANDAU, Lev Davidovich; GINZBURG, V. L. On the theory of superconductivity. **Zh. Eksp. Teor. Fiz.**, v. 20, p. 1064, 1950.

[13] ROULIN, Marlyse; JUNOD, Alain; WALKER, Eric. Scaling behavior of the derivatives of the specific heat of YBa 2 Cu 3 O 6.93 at the superconducting transition up to 16 tesla. **Physica C: Superconductivity**, v. 260, n. 3, p. 257-272, 1996.

[14] HUANG, Kerson. Statistical Mechanics, 2nd. Edition (New York: John Wiley & Sons), 1987.

[15] LI, Qiang; LI, Q. Effects of vortex and critical fluctuations on magnetization of high T c superconductors. **Physical Properties of High Temperature Superconductors V**, p. 209-264, 1996.

[16] PUREUR, P. Supercondutividade e Materiais Supercondutores, Parte I: Supercondutividade, IF/UFRGS, Porto Alegre, 2004.

[17] TINKHAM, Michael. Introduction to superconductivity. Courier Corporation, 1996

[18] JORGENSEN, James D. Defects and superconductivity in the copper oxides. **Physics Today**, v. 44, p. 34-40, 1991.

[19] JORGENSEN, J. D. et al. Structural properties of oxygen-deficient YBa 2 Cu 3 O 7-δ. **Physical Review B**, v. 41, n. 4, p. 1863, 1990.

[20] LAWRENCE, W. E.; DONIACH, A. Proc. of the 12th Int. Conf. on Low Temperature Physcis, Kyoto/Ed. by E. 1971.

[21] MATSUSHITA, Teruo. **Flux pinning in superconductors**. Springer Science & Business Media, 2014.

[22] JEANDUPEUX, O. et al. Scaling of the specific heat and magnetization of YBa 2 Cu 3 O 7 in magnetic fields up to 7 T. **Physical Review B**, v. 53, n. 18, p. 12475, 1996.

[23] UJEVIC, S.; DA SILVA, E. Z.; SALEM-SUGUI, S. 3D XY versus 3D LLL revisited in YBa2Cu3O7-δ. **Physica C: Superconductivity**, v. 452, n. 1-2, p. 1–5, 2007.

[24] SALEM-SUGUI, S. et al. Dimensional Crossover in the Fluctuation Magnetization in YBa 2 Cu 3 O 7-x and its Evolution with the Content of Oxygen. **Journal of low temperature physics**, v. 143, n. 3, p. 131-139, 2006.

[25] GINSBERG, Donald M. (Ed.). **Physical properties of high temperature superconductors v**. World Scientific, 1998.

[26] HUANG, Kerson. Statistical Mechanics, 2nd. Edition (New York: John Wiley & Sons), 1987.

[27] WELP, U. et al. Magnetic measurements of the upper critical field of YBa2Cu3O 7– δ single crystals. **Physical review letters**, v. 62, n. 16, p. 1908, 1989.

[28] Li, Qiang, et al. "Angular dependence of the fluctuation-induced magnetization of single-crystalline Bi2Sr2CaCu2O8 near Tc." **Physical Review B** 50.9 (1994): 6489.

[29] FRIEDMANN, T. A. et al. Direct measurement of the anisotropy of the resistivity in the a-b plane of twin-free, single-crystal, superconducting YBa 2 Cu 3 O 7– δ . **Physical Review B**, v. 42, n. 10, p. 6217, 1990.

[30] FARRELL, D. E. et al. Experimental Evidence of a Dimensional Crossover in Y 1 Ba2Cu3O7- δ. **Physical Review Letters**, v. 64, n. 13, p. 1573, 1990.

[31] MARTINEZ, J. C. et al. Magnetic anisotropy of a Bi2Sr2CaCu2Ox single crystal. **Physical review letters**, v. 69, n. 15, p. 2276, 1992.

[32] SALEM-SUGUI, S. et al. Study of vortices fluctuations in deoxygenated YBaCuO single crystals. **Journal of Magnetism and Magnetic Materials**, v. 226, p. 304-306, 2001.

[33] SALEM-SUGUI, S.; DA SILVA, E. Z.; ALVARENGA, A. D. Three-dimensional and two-dimensional high field vortex fluctuations in deoxygenated YBa2Cu3O7- x depending on the vicinity of Tc(H). **Physica C: Superconductivity**, v. 443, n. 1, p. 1-4, 2006.

[34] MOSQUEIRA, J. et al. The intrinsic crossing point of the magnetization vs. temperature curves in superconducting cuprates in the high-magnetic-field limit. **EPL** (Europhysics Letters), v. 42, n. 4, p. 461, 1998.

[35] KES, P. H. et al. Field-induced suppression of the phase transition in Bi2Sr2 CaCu2O8. **Physical Review Letters**, v. 67, n. 17, p. 2383, 1991.

[36] OSBORN, J. A. Demagnetizing factors of the general ellipsoid. **Physical Review**, v. 67, n. 11-12, p. 351, 1945.

[37] ROSENSTEIN, Baruch; LI, Dingping. Ginzburg-Landau theory of type II superconductors in magnetic field. **Reviews of modern physics**, v. 82, n. 1, p. 109, 2010.

[38] MIKHAILOV, S. A. A new approach to the ground state of quantum Hall systems. Basic principles. **Physica B: Condensed Matter**, v. 299, n. 1, p. 6-31, 2001.

[39] ULLAH, Salman; DORSEY, Alan T. Effect of fluctuations on the transport properties of type-II superconductors in a magnetic field. **Physical Review B**, v. 44, n. 1, p. 262, 1991.

[40] TONINO, Sebastian. Flutuações termodinamicas em supercondutores: confronto entre o modelo XY 3D e a descrição baseada nos niveis de Landau. 2000 Dissertação (Mestrado em Física) – Instituto de Física, Universidade Estadual de Campinas – São Paulo.

[41] TEŠANOVIĆ, Zlatko; ANDREEV, A. V. Thermodynamic scaling functions in the critical region of type-II superconductors. **Physical Review B**, v. 49, n. 6, p. 4064, 1994

[42] SALEM-SUGUI, S. et al. A Comparative Study of High-Field Diamagnetic Fluctuations in Deoxygenated YBa2Cu3O7-x and Polycrystalline (Bi–Pb)2Sr2Ca2Cu3O10. Journal of low temperature physics, v. 141, n. 1, p. 83-95, 2005.

[43] SALEM-SUGUI JR, S. et al. Superconducting fluctuations in the reversible magnetization of the iron-pnictide Ba1-xKxFe2As2. **Physical Review B**, v. 80, n. 1, p. 014518, 2009.

[44] TEŠANOVIĆ, Zlatko et al. Critical fluctuations in the thermodynamics of quasitwo-dimensional type-II supeconductors. **Physical Review Letters**, v. 69, n. 24, p. 3563, 1992.

[45] TEŠANOVIĆ, Zlatko; XING, Lei. Critical fluctuations in strongly type-II quasi-twodimensional superconductors. **Physical Review Letters**, v. 67, n. 19, p. 2729, 1991.

[46] PIERSON, Stephen W. et al. Three-dimensional lowest-Landau-level theory applied to YBa2Cu3O7– δ magnetization and specific heat data: Implications for the critical behavior in the H– T plane. **Physical Review B**, v. 57, n. 14, p. 8622, 1998.

[47] GERHARDTS, Rolf R. Precursor diamagnetism in layered and isotropic superconductors. **Physical Review B**, v. 9, n. 7, p. 2945, 1974.

[48] KLEMM, Richard A.; BEASLEY, M. R.; LUTHER, A. Fluctuation-induced diamagnetism in dirty three-dimensional, two-dimensional, and layered superconductors. **Physical Review B**, v. 8, n. 11, p. 5072, 1973

[49] YUAN, H. Q. et al. Nearly isotropic superconductivity in (Ba,K)Fe2As2. **Nature 457**, p. 565-568, 2008.

[50] LAWRIE, Ian D. Scaling in high-temperature superconductors. **Physical Review B**, v. 50, n. 13, p. 9456, 1994.

[51] CULLITY, B. D. *Elements of X-Ray Diffraction*. Notre Dame : AddisonWesley PublishingCompany, Inc., 1978.

[52] LI, Qiang et al. Critical fluctuations in the magnetization of Bi2Sr2CaCu2O8 near the Hc2(T) line. **Physical Review B**, v. 48, n. 13, p. 9877, 1993.

[53] SALAMON, M. B. et al. XY-like critical behavior of the thermodynamic and transport properties of YBa2Cu3O7-x in magnetic fields near Tc. **Physical Review B**, v. 47, n. 9, p. 5520, 1993.

[54] SALAMON, M. B. et al. Reaching the unreachable: critical scaling at the superconducting transition. **Physica A: Statistical Mechanics and its Applications**, v. 200, n. 1-4, p. 365-373, 1993.

[55] SALEM-SUGUI JR, S. et al. Experimental observation of two-dimensional fluctuation magnetization in the vicinity of Tc for low values of the magnetic field in deoxygenated YBa2Cu3O7- x. **Physical Review B**, v. 73, n. 1, p. 012509, 2006.

[56] SCHNEIDER, T. Evidence for three-dimensional XY critical properties in underdoped YBa2Cu3O7-δ. **Physical Review B**, v. 75, n. 17, p. 174517, 2007.

[57] KAKIHANA, M. et al. Charge-transfer and compression effects of isomorphous substitutions in YBa2Cu3O7. **Physical Review B**, v. 47, n. 9, p. 5359-5366. 1993

[58] LICCI, F. et al. Structural and electronic effects of Sr substitution for Ba in Y(Ba 1- x Sr x)2Cu3Ow at varying w. **Physical Review B**, v. 58, n. 22, p. 15208, 1998.

[59] BEYERS, R. et al. Crystallography and microstructure of Y1Ba2Cu3O9– x, a perovskite-based superconducting oxide. **Applied physics letters**, v. 50, n. 26, p. 1918-1920, 1987.

[60] VEAL, B. W. et al. Superconductivity in YBa2-xSrxCu3O7-δ. **Applied Physics** Letters, v. 51, n. 4, p. 279, 1987..

[61] JORGENSEN, J. D. et al. Pressure-induced charge transfer and dTc/dP in YBa2Cu3O7- x. **Physica C: Superconductivity**, v. 171, n. 1-2, p. 93-102, 1990.

[62] VIEIRA, V. N.; SCHAF, J. Anisotropic irreversibility of the Abrikosov and Josephson flux dynamics in YBa 2. v. 65, p. 1–9, 2002.

[63] MATSUDA, Yasushi; YOSHIDA, Masashi; HINOTANI, Shigeharu. Raman Studies of Orthorhombic YBa2-xSrxCu3O7-y. **Japanese journal of applied physics**, v. 28, n. 7A, p. L1128, 1989.

[64] ONO, A. et al. Superconductivity in (Ba1-xSrx)2YCu3O7-y. Japanese Journal of Applied Physics, Tokyo, v. 26, n. 10, p. L1687- L1689, Oct. 1987.

[65] JAYARAM, B. et al. High temperature superconductivity in Y-Ba-Cu-O and Y-Ba-Sr-Cu-O systems. **Solid state communications**, v. 63, n. 8, p. 713-716, 1987.

[66] RAO, C. N. R. et al. Structure and properties of oxyanion derivatives of 123 cuprate superconductors: Effect of substitution of carbonate and nitrate ions in the Cu (1) position of YBaSrCu3O7– δ . **Solid state communications**, v. 88, n. 10, p. 757-760, 1993.

[67] SCHIRBER, J. E. et al. Pressure dependence of the superconducting transition temperature in the 94-K superconductor YBa 2 Cu 3 O 7. **Physical Review B**, v. 35, n. 16, p. 8709, 1987.

[68] GINSBERG, Donald M. (Ed.). **Physical properties of high temperature superconductors I**. World Scientific, 1998.

[69] ONO, Akira et al. Superconductivity in Ba2 (1-x) Sr2xYCu3O7-y. **Japanese journal of applied physics**, v. 26, n. 10A, p. L1687, 1987

[70] PINHEIRO, L. B. L. G. Processamento, Caracterização e Estudo de Fenômenos Críticos do Sistema Supercondutor (Y- Er)Ba2Cu3O7-δ. 2010, 147f. Dissertação de Mestrado, UEPG, Ponta Grossa, 2010.

[71]<u>https://upload.wikimedia.org/wikipedia/commons/0/0a/Bragg_diffraction.png</u>: Acesso em 04 de julho de 2017.

[72] KITTEL, Charles. Introdução À Física Do Estado Sólido . Grupo Gen-LTC, 2000.

[73] MENDONÇA, A.P. AGUIAR. Os Efeitos da desordem Química na Energia Cinética de Condensação dos Pares de Cooper no Supercondutor YBa2Cu3O7δ. 2013. Dissertação (Mestrado em Física) – Instituto de Física e Matemática, Universidade Federal de Pelotas, Pelotas.

[74] **BASIC RESEARCH NEEDS FOR SUPERCONDUCTIVITY**, Report on the Basic Energy Sciences Workshop on Superconductivity. LOCAL, p. 43-59, 8 – 11 de Maio de 2006;

[75] ZHANG, K. et al. Local structure distortion in a Y Ba 2-Sr 0.52 0.52 Cu 3 O 7 superconductor. **Physical Review B**, v. 39, n. 4, p. 2788, 1989.

[76] KARPINSKI, J. et al. Influence of Sr substitution on the structure, charge distribution, and critical temperature of Y (Ba 1-x Sr x) 2 Cu 4 O 8 single crystals. **Physical Review B**, v. 64, n. 9, p. 094518, 2001.

[77] ANGST, M. et al. Critical currents and order-disorder phase transition in the vortex states of YBa 2 Cu 4 O 8 with chemically introduced disorder. **Physical Review B**, v. 65, n. 9, p. 094518, 2002.

[78] WERTHAMER, N. R. et.al. Temperature and purity dependence of the superconducting critical field, Hc2. III. Electron spin and spin-orbit effects. **Physical Review**, v. 147, n. 1, p. 295, 1966.

[79] SALEM-SUGUI, S.; DA SILVA, E. Z. Superconducting diamagnetic fluctuations for H \parallel ab planes in YBa 2 Cu 3 O 7– δ for fields up to 5 T. **Solid state communications**, v. 90, n. 10, p. 647-650, 1994.

[80] TOMIMOTO, K. et al. Impurity effects on the superconducting coherence length in Zn-or Ni-doped YBa2Cu3O69 single crystals. **Physical Review B**, v. 60, n. 1, p. 114, 1999.

[81] LAN, M. D. et al. Resistivity and upper critical field of YBa2Cu3- xFexO7- y single crystals. **Physical Review B**, v. 47, n. 1, p. 457, 1993.

[82] DA SILVA, E. Z.; SALEM-SUGUI, S. Superconducting vortex fluctuations in YBa2Cu3O7-δ. **Physica C: Superconductivity**, v. 257, n. 1-2, p. 173-178, 1996.
[83] PIERSON, Stephen W. et al. Three-dimensional lowest-Landau-level theory applied to YBa2Cu3O7– δ magnetization and specific heat data: Implications for the critical behavior in the H– T plane. **Physical Review B**, v. 57, n. 14, p. 8622, 1998.

[84] WELP, U. et al. High-field scaling behavior of thermodynamic and transport quantities of YBa 2 Cu 3 O 7– δ near the superconducting transition. **Physical review letters**, v. 67, n. 22, p. 3180, 1991.

[85] GAO, Hong et al. Reversible magnetization and critical fluctuations in systematically doped YBa2Cu3O7– δ single crystals. **Physical Review B**, v. 74, n. 2, p. 020505, 2006.

[86] CALERO, J. M.; GRANADA, J. C.; DA SILVA, E. Z. Superconducting fluctuations for three-dimensional anisotropic superconductors in the presence of a magnetic field with arbitrary direction. **Physical Review B**, v. 40, n. 10, p. 6114, 1997.