

UNIVERSIDADE FEDERAL DO RIO GRANDE DO SUL  
INSTITUTO DE FÍSICA

# Depinning do Fluxo de Josephson em Compósitos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ †

*Job Paim da Silva Filho*

*Dissertação realizada sob a orientação dos  
Drs. Jacob Schaf e Paulo Pureur Neto, apresen-  
tada ao Instituto de Física da UFRGS em pre-  
enchimento final dos requisitos para a obtenção  
do grau de Mestre em Física.*

*Porto Alegre, novembro de 1997.*

---

† Trabalho parcialmente financiado pelo Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq.

*Aos meus pais,  
À Maria e ao Matheus.*

## Agradecimentos

- ao Prof. Jacob Schaf pela orientação deste trabalho.
- ao Luiz Antonio F. Castello, pelos milagres feitos nestes tempos onde o hélio é escasso.
- ao Prof. Dílson por ter me apresentado o caminho da ciência.
- aos camaradas do tempo de graduação, em especial ao tchê Fábio, tchê Glênio e tchê Mario.
- aos camaradas de meditação, onde aprendi mais física do que em sala de aula....
- ao Alcione pelos bate-papos durante as medidas nos fins de semana.
- as normas da ABNT para o capítulo de referências bibliográficas, utilizadas por livre e espancada vontade, resultando num tempo inutilmente perdido.
- a CEEE pelas faltas de energia elétrica durante as medidas.
- a micro\$oft pelo mais vendido e mais repugnante sistema operacional já produzido, que pelo menos vez por dia apresenta um Fatal Error .... estragando todo o trabalho de um dia inteiro.

# Índice

<b>Relação de Figuras</b> . . . . .	vi
<b>Resumo</b> . . . . .	viii
<b>Abstract</b> . . . . .	ix
<b>0. Introdução</b> . . . . .	1
<b>1. Dinâmica de Vórtices</b> . . . . .	5
1.1 Introdução . . . . .	5
1.2 Conceitos Básicos . . . . .	7
1.2.1 Introdução . . . . .	7
1.2.2 Modelo de Estado Crítico . . . . .	10
1.2.3 Flux Creep ativado termicamente . . . . .	11
1.3 Modelos Relacionados com a Linha de Irreversibilidade . . . . .	14
1.3.1 Introdução . . . . .	14
1.3.2 Depinning Termicamente Ativado . . . . .	14
1.3.3 Fusão da Rede de Vórtices . . . . .	15
1.3.4 Vidro de Vórtices . . . . .	18
1.4 A Supercondutividade Intergranular: Vórtices de Josephson . . . . .	21
1.4.1 Introdução . . . . .	21
1.4.2 Vórtices Intergranulares (Josephson) . . . . .	21
1.4.3 Origem do “Pico” Meissner . . . . .	24
1.4.4 Percolação dos Grãos e a Condutividade Elétrica . . . . .	27
1.4.5 O Modelo do Vidro Supercondutor para a Linha de Irreversibilidade . . . . .	29
<b>2. A Cerâmica <math>YBa_2Cu_3O_{7-\delta}</math></b> . . . . .	32
2.1 O Sistema $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . . . . .	32
2.1.1 Introdução . . . . .	32
2.1.2 A Estrutura Cristalina . . . . .	32
2.1.3 Os Defeitos . . . . .	34
2.1.4 Comprimentos Característicos . . . . .	34
2.1.5 Transporte Elétrico . . . . .	34
2.1.6 A Magnetização DC . . . . .	36
2.1.7 Relaxação Temporal . . . . .	40
2.2 Compósitos Não-Randômicos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ . . . . .	42

<b>3. A Técnica de Medida</b> . . . . .	44
3.1 Magnetômetro: Medidas de Magnetização DC . . . . .	44
3.1.1 A Estrutura do Magnetômetro . . . . .	44
3.1.2 A Técnica de Medida . . . . .	46
3.2 Equipamento para Medidas de Magnetoresistividade . . . . .	48
<b>4. Resultados Experimentais</b> . . . . .	49
4.1 Introdução . . . . .	49
4.2 Medidas de Magnetização DC . . . . .	49
4.3 Medidas de Magnetoresistividade . . . . .	59
4.4 A linha de Depinning Inicial . . . . .	61
4.5 A Linha de Irreversibilidades Magnéticas . . . . .	64
4.6 Discussão dos Resultados . . . . .	67
<b>5. Conclusões</b> . . . . .	72
<b>Referências</b> . . . . .	74

# Relação de Figuras

1.1	Linha de irreversibilidade para monocristal de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ em $H \parallel \hat{c}$ . . . . .	15
1.2	Representação das fases do modelo de fusão da rede de vórtices. . . . .	17
1.3	Diagrama de fases da fusão da rede de vórtices. . . . .	17
1.4	Diagrama de fases proposto por Fisher [5] para o modelo do vidro de vórtices. . . . .	19
1.5	Esquema da localização dos vórtices inter e intragranulares. . . . .	23
1.6	(a) Representação do aprisionamento do excesso de fluxo magnético (b) Representação do perfil do gradiente de fluxo magnético. . . . .	25
1.7	Representação esquemática das linhas críticas de campos magnéticos e temperaturas intra e intergranulares. . . . .	27
1.8	(I) Ilustração das fases coerente e paracoerente. (II) Representação dos caminhos possíveis para a corrente atravessar o bulk. . . . .	29
1.9	Linha de irreversibilidade magnética obtida experimentalmente por Müller <i>e col.</i> [1] em amostras de $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-\delta}$ policristalino . . . . .	31
2.1	Estrutura ortorrômbica do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [32]. . . . .	33
2.2	Resistividade: $\rho_{a,b,c} \times T$ em monocristal de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [36]. . . . .	35
2.3	Resistividade: $\rho \times T$ e $d\rho/dT \times T$ em policristal de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [38]. . . . .	36
2.4	Susceptibilidade: $\chi_{ZFC}$ e $\chi_{FC}$ em policristal de $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [40]. . . . .	37
2.5	Susceptibilidade: $\chi_{FC} \times T$ em compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ com 6% de Ag [3]. . . . .	38
2.6	Magnetização: $M_{FC} \times T$ no $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [2]. . . . .	39
2.7	Relaxação magnética temporal do $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ [43]. . . . .	41
2.8	Esquema dos processos de preparação das amostras de compósitos supercondutores não randômicos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ [44]. . . . .	43
3.1	Magnetômetro Foner para medidas de magnetização-DC . . . . .	47
4.1	Magnetização ZFC e FCW para (a) o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e para o compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ com 8.6% Ag. . . . .	53
4.2	Magnetização ZFC no $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ com 16.1% Ag. . . . .	54
4.3	Magnetização FCW para $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ 20.7% de Ag. . . . .	55
4.4	Magnetização FCW em $H \approx 20 Oe$ para todas as amostras. . . . .	56
4.5	Diferenças ZFC-FCW para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . . . . .	57
4.6	Curvas FCW indicando a temperatura do início do depinning $T_{dep}(H)$ . . . . .	58
4.7	Resistividade para o compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ com 8.6% Ag. . . . .	60
4.8	Linha $T_{c0}(H)$ para o compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ com 8.6% Ag. . . . .	60
4.9	O diagrama de fases $H vs. T$ com as linhas de depinning inicial para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e para os compósitos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ . . . . .	62

4.10	Linha de depinning inicial para o compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ 20% Ag. . . . .	63
4.11	Ajustes das linhas de Depinning para todas as amostras. . . . .	63
4.12	O diagrama de fases $H$ vs. $T$ com as linhas de irreversibilidades para o $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ e para os compósitos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ . . . . .	65
4.13	Linha de irreversibilidade para o compósito $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ 20% Ag. . . . .	66
4.14	Linhas de Irreversibilidades ajustadas para todas as amostras. . . . .	66
4.15	O diagrama de fases $H$ vs. $T$ com as linhas críticas para o compósito com 8.6% de prata. . . . .	71

# Resumo

Apresenta-se neste trabalho um estudo experimental da dinâmica do fluxo magnético intergranular no cuprato supercondutor  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e nos compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  para várias concentrações de prata. Verificou-se que sob certas condições é possível separar os efeitos da dinâmica do fluxo de Josephson daqueles resultantes da dinâmica do fluxo de Abrikosov. Através da técnica de medidas de magnetização DC foram obtidas as linhas de depinning inicial e de irreversibilidade magnética em campo magnético aplicado até  $120 Oe$ . O revestimento dos grãos supercondutores aparentemente não afeta a energia de acoplamento dos elos fracos entre os grãos e o potencial de pinning até 16.1% em peso de prata. A vantagem da mistura da prata é que esta melhora as propriedades mecânicas dos óxidos supercondutores além de melhorar as correntes críticas do sistema. Observamos que o depinning do fluxo de Josephson começa numa temperatura bem definida, dependendo do campo magnético aplicado e gradualmente aumenta com a temperatura até ou muito próximo do limite de irreversibilidade, acima do qual todo o fluxo intergranular (e intragranular) está livre. As linhas de irreversibilidade das nossas amostras podem ser entendidas dentro do modelo do Vidro supercondutor.

# Abstract

In this work an experimental study is presented on the dynamics of the intergranular magnetic flux in the  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  superconducting cuprate and in the  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  non-random composites for several silver concentrations. It is verified that under certain conditions it is possible to separate the effects of the Josephson-flux dynamics from that of the Abrikosov-flux dynamics. By using DC magnetization measurements the initial depinning and magnetic irreversibility lines were obtained in applied magnetic fields up to  $120 Oe$ . The silver coating of the superconducting grains apparently does not affect the coupling energy of the weak links between the grains and the pinning potential up to  $16.1 wt\% Ag$ . The advantage of silver mixing is that it improves the mechanical properties of the oxide superconductors and has been observed to enhance the critical currents of the system. We observe that the depinning of the Josephson-flux begins at a well defined temperature, depending on the applied magnetic field and increases gradually with rising temperature until or very close to the irreversibility limit, above which the whole intergranular and intragranular flux is free. The irreversibility lines of our samples can be understood within the Superconducting glass model.

## Capítulo 0

# Introdução

A característica principal, que permite definir um supercondutor como sendo do tipo II é a penetração do campo magnético em seu interior, acima de um determinado valor de campo  $H$ , chamado de campo crítico inferior  $H_{c1}(T)$ . Para  $H > H_{c1}(T)$ , o campo magnético penetra em seu interior na forma de linhas de fluxo magnético quantizadas chamadas fluxóides. Conseqüentemente o aumento da intensidade do campo magnético aplicado causa um aumento na quantidade de fluxóides no interior do supercondutor, até o campo magnético limite  $H_{c2}(T)$ , no qual a penetração do campo é total e o material supercondutor passa para o estado normal mediante uma transição de fase de segunda ordem. Num diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ , a região delimitada por  $H_{c1}(T)$  e  $H_{c2}(T)$  é chamada estado misto. Os fluxóides interagem entre si e formam então uma rede bidimensional chamada rede de vórtices de Abrikosov.

A supercondutividade é um fenômeno quântico em escala macroscópica. A prova disto são os vórtices formados no estado misto de um supercondutor do tipo II. A idéia básica deste estado quântico macroscópico é a representação de um grande número de superpartículas por somente uma função de onda  $\Psi(\vec{r}, t)$ , definida em uma região macroscópica da amostra. Estas superpartículas são condensadas em um único estado quântico, resultando em uma densidade macroscópica de superpartículas, as quais possuem a mesma fase quântica. O fato da fase ser comum a um grande número de superpartículas faz com que seus efeitos não sejam mediados em escalas microscópicas.

Os supercondutores do tipo II no limite limpo (supercondutor do tipo II convencional) a rede de vórtices é caracterizada por uma ordem de longo alcance. Este estado misto não apresenta resistência elétrica nula devido aos efeitos dissipativos provocados pelo movimento dos vórtices que estão sob a ação de forças de Lorentz, exceto quando a corrente for estritamente paralela

às linhas de vórtices. Assim um supercondutor convencional no estado misto apresenta  $J_c$  nula (máxima densidade de corrente elétrica que ele pode transportar sem dissipar energia). Porém no limite sujo (supercondutores convencionais dopados com impurezas e os óxidos de alta  $T_c$ ), as linhas de vórtices podem ser aprisionadas por defeitos da rede cristalina e, devido a interação entre os mesmos, basta que alguns estejam aprisionados para que toda a rede de vórtices fique estabilizada. Conseqüentemente, a intensidade da força de aprisionamento está diretamente relacionada ao valor da densidade de corrente crítica  $J_c$ .

A descoberta dos novos supercondutores do tipo II, chamados de supercondutores óxidos de alta  $T_c$  ou cupratos supercondutores, tem desde então revolucionado a pesquisa na física da matéria condensada e apesar de sua fragilidade mecânica estão abrindo um sem número de novas aplicações tecnológicas. Assim, um esforço considerável tem sido realizado para que estes supercondutores cerâmicos apresentem também melhores características mecânicas. Propriedades, tais como maleabilidade entre outras que podem ser melhoradas consideravelmente pela preparação de um material composto de um supercondutor cerâmico com um metal.

Os compósitos supercondutores não-randômicos exibem algumas propriedades transporte que não só podem ser úteis em aplicações, como também são um bom modelo para o estudo das junções supercondutor-metal-supercondutor.

Note-se que na maior parte das aplicações tecnológicas, utiliza-se os supercondutores no estado misto, devido ao pequeno campo crítico  $H_{c1}(T)$  e um elevado  $H_{c2}(T)$  que estes materiais apresentam.

O aprisionamento (*pinning*) dos fluxóides no interior do supercondutor leva à formação de um gradiente de fluxo magnético durante a penetração do campo, e este gradiente de fluxo é responsável por um comportamento histerético do supercondutor. A reversibilidade magnética em um supercondutor, quando no estado misto, decorre da liberdade de movimentação dos fluxóides, o que implica em uma densidade de corrente crítica nula. Esta reversibilidade em geral ocorre devido ao depinning dos fluxóides.

Müller *e col.* [1] encontraram um extenso trecho reversível nas curvas de magnetização em função da temperatura no  $La_2BaCuO_{4-y}$ . O ponto que separa o trecho reversível do irreversível é denominado ponto de irreversibilidade. Os pontos de irreversibilidade para diferentes valores de campo magnéticos dão origem a chamada linha de irreversibilidade no diagrama de fases

*H vs. T.* O aparecimento da reversibilidade magnética, com o conseqüente desaparecimento da corrente crítica, acima de uma determinada temperatura e campo magnético, mostra que os fluxóides tornam-se livres para o movimento. O estudo sistemático da linha de irreversibilidade em supercondutores teve início com os novos cupratos de alta temperatura crítica.

Vários modelos surgiram para explicar a linha de irreversibilidades magnéticas, contudo sua origem ainda é uma questão que gera muitas controvérsias.

Os supercondutores óxidos de alta temperatura crítica apresentam em suas estruturas cristalinas defeitos intrínsecos (em escala microscópica, tais como vacâncias de oxigênio). Conseqüentemente a rede de vórtices de Abrikosov nestes materiais é deformada e instável e não pode apresentar ordem translacional de longo alcance.

Algumas propriedades magnéticas dos óxidos supercondutores de alta  $T_c$ , observadas em baixos campos, podem ser interpretadas em termos do modelo de vidro supercondutor que é adequado para os sistemas granulares.

Nos sistemas supercondutores granulares existem também defeitos que ocorrem em escalas maiores (a nível mesoscópico e macroscópico), que são conhecidos como fronteiras de grão, precipitados de fases não supercondutoras, maclas, poros, etc. Defeitos deste nível dão origem a junções Josephson, entre as quais campo magnético também é aprisionado na forma de fluxóides. Estes fluxóides estão associados a vórtices de Josephson que envolvem a superfície dos grãos e as junções.

As junções Josephson formam então uma rede através do sistema granular (*bulk*), e esta rede de junções possui também campos críticos análogos aos supercondutores convencionais. Até um certo campo limite  $H_{c1J}(T)$  o sistema granular (*bulk*) é blindado e não há formação de qualquer vórtice. Com o aumento do campo, começa a ocorrer penetração do mesmo nos espaços intergranulares na forma de fluxóides de Josephson, até um limite  $H_{c2J}(T)$ , no qual a supercondutividade intergranular nas junções Josephson é completamente extinta. Entre os campos críticos limites  $H_{c1J}(T)$  e  $H_{c2J}(T)$  acima de uma certa temperatura ocorre o depinning dos fluxóides de Josephson. Apesar da analogia com os vórtices de Abrikosov, a energia envolvida no pinning dos fluxóides de Josephson é menor do que a energia do pinning intragranular e por isso a dinâmica do fluxo de Josephson começa em valores de campos magnéticos e temperaturas menores do que a dinâmica dos fluxóides de Abrikosov.

A investigação da dinâmica do fluxo magnético nos supercondutores de alta temperatura crítica é muito complexa, mas em baixos campos, especialmente abaixo do campo crítico inferior intragranular  $H_{c1}(T)$ , é possível estudar a dinâmica do fluxo intergranular de Josephson separadamente da dinâmica do fluxo intragranular de Abrikosov.

A idéia básica deste trabalho é investigar a linha de irreversibilidade e a linha de depinning inicial no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ , obtidas por meio de magnetização DC, para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e alguns compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ .

Este estudo do depinning dos vórtices de Josephson foi motivado pelos trabalhos de Jung *e col.* [2] e Schaf *e col.* [3], nos quais verificou-se um aumento na resposta diamagnética em temperaturas próximas a  $T_c(H)$  no efeito Meissner (na forma de um pico), o qual representa a expulsão de um excesso de campo magnético aprisionado na amostra (na forma de fluxóides de Josephson) durante seu resfriamento rápido.

Esta dissertação está esquematizada do modo descrito a seguir.

No capítulo 1 apresentamos alguns conceitos básicos que envolvem a dinâmica de fluxóides, alguns modelos para a origem da linha de irreversibilidade e uma breve introdução as Junções Josephson. No capítulo 2 descrevemos o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e suas características principais, uma breve descrição da obtenção dos compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ . O capítulo 3 descreve a técnica de medida utilizada para obtenção dos resultados. No capítulo 4 apresentamos resultados experimentais das medidas de magnetização, a linha de irreversibilidades magnéticas, a linha de depinning inicial e a discussão destes resultados em termos de um modelo teórico. Finalizando o trabalho apresentamos uma conclusão geral dos resultados obtidos.

## Capítulo 1

# Dinâmica de Vórtices

### 1.1 Introdução

Dentre as propriedades magnéticas dos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica, uma muito estudada e que desperta muitas controvérsias é a chamada linha de irreversibilidades magnéticas. Em um diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ , campo magnético contra temperatura, a linha de irreversibilidade separa uma fase magneticamente irreversível, situada em uma região de baixa temperatura, de uma fase de alta temperatura na qual o comportamento magnético do sistema é inteiramente reversível.

O estudo sistemático da linha de irreversibilidade em supercondutores teve início com os novos cupratos de alta temperatura crítica. Müller, Takashige e Bednorz [1] observaram que o  $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-\delta}$  policristalino apresentava um trecho reversível considerável nas curvas de magnetização versus temperatura. Mostraram também que a linha de irreversibilidade obtida para o  $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-\delta}$  policristalino obedece uma lei de potências com expoente  $3/2$ , que será descrita mais adiante. Esta lei de potências representa um comportamento análogo ao da linha de ‘*de Almeida-Thouless*’, derivada da teoria de campo médio para vidros de spin. Müller e col. por analogia com a teoria dos vidros de spin consideraram que a linha de irreversibilidade separa o diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  do supercondutor em regiões de regime termodinâmico metaestável e estável. A região metaestável corresponderia a um estado de vidro supercondutor análogo ao estado de vidro de spin, que ocorre em materiais magnéticos, e o regime estável seria o estado termodinâmico de equilíbrio.

Yeshurun e Malozemoff [4] observaram que monocristais de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  também apresentam uma linha de irreversibilidade e que esta linha, quando obtida com o campo aplicado paralelo ao eixo  $\hat{c}$  também segue uma lei de potências com expoente  $3/2$ . Porém, eles inter-

pretaram esta linha como sendo devida ao depinning termicamente ativado dos fluxóides. O depinning termicamente ativado acontece quando a energia térmica é suficiente para que os fluxóides vençam as barreiras de aprisionamento, ou seja, o pinning, e se movimentem quando sujeitos a uma força motriz. Esta força motriz é uma força de Lorentz, que pode ser originada de um gradiente de fluxo magnético ou uma corrente de transporte.

Também com base em uma analogia com os vidros de spin, Fisher [5] propôs a existência de uma fase de vidro de vórtices abaixo da linha de irreversibilidade. O vidro de vórtices diferiria da rede de Abrikosov por não possuir uma simetria translacional de longo alcance devido ao pinning aleatório, mas apenas coerência de longo alcance na fase do parâmetro de ordem.

Nelson [6] sugeriu que nos novos cupratos supercondutores, novos estados dos fluxóides se tornariam acessíveis, devido à sua alta temperatura crítica e pequeno comprimento de coerência. Estes novos estados seriam os líquidos de vórtices, que poderiam ser formados por vórtices, emaranhados (*entangled*) e não emaranhados (*disentangled*). Estes líquidos de vórtices possivelmente ocupariam boa parte do diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  dos novos cupratos supercondutores, e estariam acessíveis em regiões do diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  ligeiramente acima do campo crítico inferior  $H_{c1}(T)$ .

Muitas propriedades eletromagnéticas do bulk de um supercondutor cerâmico de alta temperatura crítica podem ser compreendidas pelo modelo granular do material como sendo uma matriz de grãos anisotrópicos fortemente supercondutores que estão fracamente acoplados.

Os sistemas granulares apresentam junções (ligações) fracas entre os grãos, as quais podem ser tratadas como junções Josephson, que formam uma rede através do bulk. Nas regiões intergranulares entre estas junções pode haver penetração do campo magnético na forma de fluxóides. Para a rede de junções Josephson também são definidos campos críticos superior e inferior. O campo magnético começa a penetrar na forma de fluxóides de Josephson para  $H \geq H_{c1J}(T)$ , até um campo limite  $H_{c2J}(T)$  no qual a supercondutividade intergranular é destruída, ou seja, as junções são quebradas e o sistema de grãos torna-se desacoplado.

## 1.2 Conceitos Básicos

### 1.2.1 Introdução

As duas características necessárias para que um material seja chamado supercondutor são a **resistividade nula** e o **diamagnetismo perfeito** (*efeito Meissner*), as quais ocorrem sempre abaixo da temperatura de transição normal-supercondutor  $T_c(H)$  chamada *temperatura crítica*. Abaixo de  $T_c$  a análise da resposta diamagnética em função do campo magnético aplicado permite que os supercondutores sejam classificados em duas categorias distintas: supercondutores do *tipo I* e *tipo II*.

Nos supercondutores do tipo I, quando  $T < T_c$  e na presença de um campo magnético externo, ocorre expulsão completa do fluxo magnético de seu interior até um certo valor de campo  $H_c(T)$ , chamado *campo crítico*, no qual ocorre uma transição de fase de primeira ordem para o estado normal. Em sua superfície ocorre penetração do campo magnético numa fina camada, onde o campo magnético decai, em termos das funções de Bessel hiperbólicas, da superfície para o interior, esta quantidade é chamada de *comprimento de penetração de London*  $\lambda$ .

A teoria macroscópica de Ginzburg-Landau<sup>1</sup> descreve o supercondutor por uma função de onda efetiva,  $\Psi(\vec{r})$ , que é nula para  $T > T_c$  e cuja magnitude mede o grau de ordem supercondutora num ponto  $\vec{r}$  do supercondutor. Conseqüentemente surge um novo parâmetro chamado *comprimento de coerência*  $\xi$ , o qual mede a escala típica de variação espacial do parâmetro de ordem supercondutor  $\Psi$ . Um parâmetro importante é a chamada *constante de Ginzburg-Landau* definida como a razão  $\kappa = \lambda/\xi$ . Os supercondutores do tipo II possuem  $\kappa > \frac{1}{\sqrt{2}}$ , ou seja um comprimento de coerência pequeno em relação ao comprimento de penetração.

London introduziu o conceito de energia de superfície, que corresponde a energia extra existente na interface entre uma região normal e uma região supercondutora da amostra.

Supercondutores do tipo I possuem  $\kappa < \frac{1}{\sqrt{2}}$ , ou seja  $\lambda$  pequeno permitindo que o campo penetre numa camada superficial e  $\xi$  grande fazendo com que o parâmetro de ordem aumente lentamente (espacialmente) para seu valor de bulk  $\Psi_\infty$ . Em termos de energia temos que a energia de condensação (proporcional a  $\Psi$ ) é elevada no estado normal e tende a diminuir len-

<sup>1</sup> Uma extensão da teoria de London, em que a densidade de superpartículas varia no espaço.

tamente com a posição no lado supercondutor devido ao grande comprimento de coerência  $\xi$ , e a energia magnética que é nula no estado normal aumenta de forma rápida (especialmente) no estado supercondutor devido a expulsão do fluxo e ao fato de  $\lambda$  ser pequeno. Consequentemente a energia total próximo à superfície do supercondutor tipo I aumenta. Assim num supercondutor do tipo I a energia de superfície é positiva e o estado Meissner se mantém estável.

Num supercondutor do tipo II, para campos maiores que  $H_{c1}(T)$  a energia de superfície é negativa o que favorece a penetração do campo, como  $\xi \ll \lambda$  a energia do estado normal decai rapidamente com a posição, ao passo que a energia magnética aumenta lentamente devido ao  $\lambda$  grande.

Desta maneira, os supercondutores do tipo II apresentam diamagnetismo perfeito apenas para campos menores que um determinado campo crítico chamado  $H_{c1}(T)$ . Para campos magnéticos aplicados maiores que  $H_{c1}(T)$  a resposta diamagnética é reduzida devido a presença de fluxo magnético no interior do mesmo<sup>2</sup>. A quantidade de fluxo magnético no interior do supercondutor aumenta até um certo limite chamado de campo crítico superior  $H_{c2}(T)$ .

Em  $H_{c2}(T)$  o supercondutor, sofrendo uma transição de fase de segunda ordem, se torna um material normal<sup>3</sup>. A região do diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  delimitada pelos campos críticos  $H_{c1}(T)$  e  $H_{c2}(T)$  é chamada de estado misto.

## Os Fluxóides

No estado misto a penetração do campo magnético no interior do supercondutor ocorre na forma de linhas de fluxo magnético quantizadas chamadas fluxóides, onde cada uma destas linhas de fluxo contém um quantum de fluxo magnético  $\phi_0 = h/2e$ .

O fluxóide, que possui forma cilíndrica, consiste de um núcleo no estado normal com um raio  $\xi$  (*comprimento de coerência de Ginzburg-Landau*) que está circundado por um vórtice de supercorrente e que decai<sup>4</sup>, juntamente com o campo magnético local, até uma distância da ordem de  $\lambda$  (*comprimento de penetração de London*)<sup>5</sup>. O parâmetro de ordem supercondutor  $\Psi$  varia com a posição, desde um valor zero (no centro do vórtice) até um certo valor limite

<sup>2</sup> Em geral  $H_{c1}(T)$  não passa de algumas centenas de Gauss.

<sup>3</sup> Note-se que  $H_{c2}(T) \gg H_{c1}(T)$ , podendo atingir dezenas de Teslas.

<sup>4</sup> O decaimento se dá em termos das funções de Bessel hiperbólicas.

<sup>5</sup> Os comprimentos característicos  $\lambda$  e  $\xi$  são funções da temperatura, obtidos da teoria de Ginsburg-Landau, ambos divergindo  $T_c$ .

$\Psi_\infty$  (característico do supercondutor) numa distância de raio  $\xi$ .

Os fluxóides interagem entre si por forças de Lorentz que atuam entre as supercorrentes e o campo magnético contido no vórtice, conseqüentemente os vórtices se repelem ao aproximarem-se. Se sobre os vórtices não está atuando uma força externa, eles formam uma rede com simetria hexagonal no plano perpendicular ao campo magnético aplicado denominada rede de vórtices de Abrikosov, estabilizada pelas forças repulsivas de Lorentz entre os mesmos.

Com o aumento da intensidade do campo magnético externo aplicado, aumentamos o número de fluxóides no interior do supercondutor, até o limite  $H_{c2}(T)$  no qual os vórtices se sobrepõem e o volume supercondutor tende a zero de forma contínua.

## O Pinning

O aprisionamento de fluxóides por defeitos existentes na rede cristalina do supercondutor é chamado de *pinning*.

A existência de pinning pode ser atribuída às variações locais de  $\xi$  e  $\lambda$  devido aos defeitos. No centro de um vórtice o parâmetro de ordem deve ser localmente anulado, assim, regiões nas quais o parâmetro de ordem é naturalmente deprimido, são energeticamente mais favoráveis para a formação dos vórtices, ocasionando uma maior tendência de formar vórtices nas pequenas regiões normais dentro do supercondutor.

Quando a rede de fluxóides existe, o pinning de apenas alguns fluxóides é suficiente para que a rede seja aprisionada como um todo. A presença de tais centros de pinning causam defeitos na rede de fluxóides, ou seja, deformações semelhantes às que ocorrem devido a defeitos na rede cristalina (tais como por exemplo deslocamentos, vacâncias e etc). Dependendo da concentração destes defeitos, pode ocorrer até mesmo a amorfização da rede de vórtices, ou seja, a perda de ordem translacional de longo alcance. O tipo e a dimensão dos defeitos na rede de fluxóides depende da distribuição dos centros de pinning e sua interação com os fluxóides.

## O Flux-Flow

Quando passamos uma corrente de transporte  $J_t$  através do supercondutor esta interage com os fluxóides através da força de Lorentz. Esta interação que ocorre entre a corrente de transporte e os vórtices de supercorrente pode ser descrita como uma interação entre a corrente

de transporte e o quantum de fluxo magnético existente no interior do vórtice.

Quando não há pinning (*inexistência de centros de aprisionamento de fluxóides, ou seja, um supercondutor tipo II ideal*), a força exercida pela corrente de transporte move a rede de fluxóides perpendicularmente à direção da corrente  $J_t$  e do campo aplicado, o que induz um campo elétrico longitudinal e antiparalelo a direção da corrente  $J_t$ , gerando um estado dissipativo, ou seja, uma resistência elétrica. Esta dinâmica de deriva do fluxo magnético é conhecida como *flux flow*.

No caso em que há forças de aprisionamento e a força de Lorentz for da mesma ordem, haverá um estado estacionário de movimentação dos fluxóides e conseqüentemente uma resistividade não nula. O limite no qual a força de Lorentz é igual a força de pinning, permite definir a *densidade de corrente crítica*  $J_c$  acima da qual o sistema apresenta dissipação, porém não há destruição da supercondutividade.

### 1.2.2 Modelo de Estado Crítico

O fenômeno de aprisionamento de fluxóides por inhomogeneidades nos supercondutores do tipo II é responsável pelo aparecimento de propriedades magnéticas irreversíveis, tais como histerese nas curvas de magnetização, remanência e a relaxação temporal da magnetização.

O modelo de estado crítico foi desenvolvido originalmente por Bean [7], para explicar o comportamento histerético da magnetização dos supercondutores do tipo II com fortes centros de aprisionamentos, também chamados de supercondutores duros.

Quando o campo magnético aplicado for superior ao campo crítico inferior  $H_{c1}(T)$ , os fluxóides começam a penetrar no supercondutor, porém os centros de aprisionamento impedem que estes penetrem livremente, gerando assim um gradiente de fluxo magnético, no qual a sua intensidade depende da força de aprisionamento (*força de pinning*) média exercida pelos centros de pinning

No modelo de estado crítico adota-se uma descrição macroscópica do supercondutor representando-se o gradiente de fluxo magnético por uma densidade de corrente,

$$\vec{J}_c = \frac{c}{4\pi} \nabla \times \vec{H} \quad (1.1)$$

Onde  $\vec{H}$  representa o campo magnético local e  $\vec{J}_c$  a densidade de corrente crítica, que equivale ao gradiente de fluxo magnético máximo que pode ser suportado pela configuração de centros

de pinning do supercondutor.  $\vec{J}_c$  pode depender do campo magnético e da temperatura e é equivalente a densidade de corrente crítica obtida a partir de medidas de transporte na configuração de campo magnético perpendicular à corrente de transporte.

O balanço entre a força de pinning média  $\vec{P}_V(\vec{B})$  (*exercida pela configuração de centros de pinning*) e a força motriz exercida pelo gradiente de fluxo magnético é a base do modelo de estado crítico. Este balanço é descrito pela “*equação de estado crítico*”

$$\vec{P}_V(\vec{B}) = -\frac{1}{c}\vec{J}_c \times \vec{B} = -\frac{1}{4\pi}(\nabla \times \vec{H}) \times \vec{B} \quad (1.2)$$

Quando a pressão exercida pelo gradiente de fluxo magnético excede o limite da força de pinning o fluxo penetra mais no supercondutor, diminuindo o gradiente e levando o sistema a um novo estado de equilíbrio. Este estado de equilíbrio é crítico, pois qualquer perturbação induzida no sistema o levará a se reorganizar em um novo estado de equilíbrio.

Quando  $\vec{J}_c$  é perpendicular a  $\vec{B}$  a equação (1.2) pode ser escrita na forma [8]:

$$\vec{J}_c = c \frac{\vec{P}_V(\vec{B})}{\vec{B}} = \frac{c}{4\pi} \left| \nabla \times \vec{H} \right| \quad (1.3)$$

A resolução da equação de estado crítico (1.2) ou (1.3) utilizando as condições de contorno apropriadas, dadas pela geometria da amostra, nos permite conhecer a distribuição do fluxo magnético no interior do supercondutor, mas é necessário conhecer a distribuição dos centros de pinning do material, o que torna impossível a sua resolução. A aproximação de Bean [7, 9], que considera  $\vec{J}_c$  constante e perpendicular a  $\vec{B}$ , nos permite calcular a distribuição aproximada do fluxo magnético no interior do supercondutor para a maioria das geometrias. Esta aproximação é bastante útil quando  $\vec{J}_c$  ou  $\vec{B}$  não variam muito no interior do supercondutor.

A magnetização  $M$  sempre pode ser calculada quando a distribuição de fluxo magnético no interior da amostra é conhecida, uma vez que  $M = (B - H)/4\pi$  e  $B$  é a média do campo magnético local por unidade de volume. Porém o cálculo de  $J_c$  a partir de  $M$  é mais complexo exceto quando a aproximação de Bean pode ser utilizada.

### 1.2.3 Flux Creep ativado termicamente

Em temperaturas finitas a energia de ativação térmica permite que as linhas de fluxo vençam suas barreiras de potencial de pinning, movendo-se entre os centros de pinning de maneira

aleatória. Na presença de uma força motriz, como uma corrente de transporte ou um gradiente de densidade de fluxo magnético, estes saltos passam a ocorrer preferencialmente no sentido da força motriz, levando a um arraste dos fluxóides em um processo conhecido como *flux creep ativado termicamente*.

O flux creep ativado termicamente leva a um rearranjo dos fluxóides no estado crítico com o decorrer do tempo e a diminuição na corrente crítica de transporte em temperaturas elevadas. Este processo causa dissipação, gerando um campo elétrico longitudinal e antiparalelo a  $J_t$  e conseqüentemente uma resistividade não nula, a qual é similar à resistividade de flux flow

O modelo básico para o estudo do flux creep ativado termicamente é o de Anderson-Kim [10, 11], que considera o arraste de fluxo ocorrendo em pacotes de fluxóides (*flux bundles*), cujo volume de correlação está relacionado com as constantes elásticas da rede de fluxóides. Estas por sua vez dependem da temperatura, do campo magnético e da distribuição espacial dos centros de pinning na amostra.

A altura efetiva da barreira ou a energia de ativação efetiva  $U$  necessária para que o fluxóide vença a barreira é dada por:

$$U = U_0 - \Delta W \quad (1.4)$$

onde  $U_0$  é a altura da barreira na ausência de flutuações térmicas,  $\Delta W = |\vec{F}|VX$  onde  $\vec{F}$  é a força motriz,  $V$  o volume do flux bundle e  $X$  a largura geométrica efetiva da barreira de energia (*pinning length*).

Na ausência de uma força motriz os flux bundles saltam por sobre a barreira de potencial com igual probabilidade em todas as direções possíveis. Quando introduzimos uma força motriz  $\vec{F}$ , o salto torna-se mais favorável na direção desta força. No caso de supercondutores convencionais, normalmente a energia de ativação térmica é pequena e a barreira de potencial elevada, fazendo com que o flux creep seja observável somente quando a força motriz é elevada.

Na ausência de ativação térmica teremos flux flow quando a força motriz for suficiente para anular o potencial de aprisionamento efetivo.  $J_{c0} = U_0/BVX$ , é chamada a corrente crítica na ausência de ativação térmica, portanto podemos reescrever a equação (1.4) como:

$$U = U_0 \left( 1 - \frac{J}{J_{c0}} \right) \quad (1.5)$$

No caso da energia de ativação térmica ser comparável a altura da barreira de energia do

---

pinning, o escoamento de fluxo passa a ser significativo mesmo quando a força motriz é pequena e a possibilidade de ocorrência de saltos no sentido oposto ao da força motriz deve ser considerado. A este processo Kes *e col.* deram o nome de *flux flow assistido termicamente (TAFF)* [12]

## 1.3 Modelos Relacionados com a Linha de Irreversibilidade

### 1.3.1 Introdução

Duas linhas de pesquisa tentam explicar os efeitos magnéticos irreversíveis observados nos novos cupratos de alta temperatura crítica. A primeira é baseada nos efeitos de ativação térmica na rede de vórtices de Abrikosov e considera a linha de irreversibilidade como uma linha crítica do flux creep convencional.

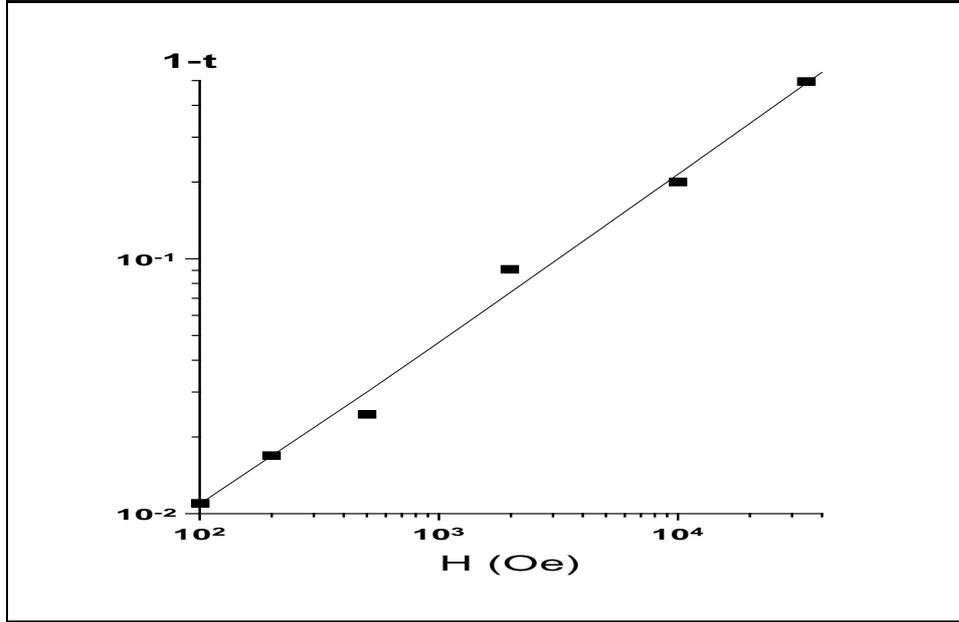
A outra linha de pesquisa é baseada nos fenômenos de transição de fase, na qual a linha de irreversibilidade representa a temperatura de depinning dos vórtices em função do campo magnético. Acima da linha de irreversibilidade, os vórtices se encontram num estado fluído e, abaixo, eles estão congelados numa rede. As interpretações desta linha apresentam similaridades com a teoria de vidros de spin, que ocorre em materiais magnéticos, e sugere que a linha de irreversibilidade é uma transição de fase com quebra de ergodicidade.

### 1.3.2 Depinning Termicamente Ativado

Yeshurun e Malosemoff [4, 13] explicam a região magneticamente reversível dos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica em termos da dinâmica de vórtices por ativação térmica, o flux creep. Nos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica, o processo de ativação térmica é observado numa ampla faixa de temperatura abaixo de  $T_c$  (ver seção 1.2.3). Este flux creep gigante tem sua origem no pequeno comprimento de coerência  $\xi$  que segundo Yeshurun e Malosemoff [4] está relacionado com a baixa energia de aprisionamento dos fluxóides e com a alta  $T_c$  destes materiais. Nesta descrição a linha de irreversibilidade está associada ao depinning termicamente ativado das linhas de fluxo que ocorre quando a corrente crítica torna-se nula (ver seção 1.2.1), ou seja  $J_c(\vec{B}, T) = 0$ . Yeshurun e Malosemoff utilizam a fórmula de Anderson-Kim [11] para a energia de ativação:

$$U_0 = \frac{H_c^2 V}{8\pi} \quad (1.6)$$

onde  $H_c$  é o campo crítico termodinâmico e  $\frac{H_c^2}{8\pi}$  é a energia de condensação por unidade de volume,  $V$  o volume de correlação dos fluxóides. Eles consideram que, para os novos cupratos supercondutores, que são materiais de  $\kappa \gg 1$  e parâmetro de rede da rede de fluxóides  $a_0 \ll \lambda$ , o



**Fig. 1.1:** Linha de irreversibilidades magnéticas obtida experimentalmente por Yeshurun e Malozemoff [4] num monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  para  $H \parallel \hat{c}$ .

aprisionamento de fluxóides passa a ser devido a efeitos coletivos. A teoria de Ginzburg-Landau prevê relações de escala do tipo  $H_c \sim (1-t)$  e  $\xi \sim (1-t)^{-\frac{1}{2}}$ , onde  $t = T_{irr}/T_c$  é a temperatura reduzida. No limite de  $T \approx T_c$ , Yeshurun e Malosemoff consideram que podemos escrever a seguinte lei de potência:

$$H^{\frac{2}{3}} \sim (1-t) \quad (1.7)$$

Esta funcionalidade foi originalmente observada por Müller *e col.* [1] no  $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-\delta}$  policristalino, mas com uma interpretação diferente que será descrita na seção 1.4.5, e posteriormente por Yeshurun e Malosemoff [4] no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  monocristalino como mostrado na figura 1.1.

### 1.3.3 Fusão da Rede de Vórtices

A estabilidade da rede de vórtices pode ser destruída por flutuações térmicas e fundir do mesmo modo que uma rede cristalina. Esta estabilidade depende de suas constantes elásticas e, dependendo das características do material supercondutor, as constantes elásticas podem ser tais que a temperatura de fusão da rede de vórtices esteja muito próxima da temperatura de transição para o estado normal e portanto fora do alcance experimental.

A fusão da rede de vórtices de Abrikosov dando lugar a um líquido de vórtices é provocada por efeitos de flutuações térmicas. Em supercondutores bidimensionais (filmes finos), a fusão da rede de vórtices se dá devido a flutuações 2D, sendo uma transição do tipo Kosterlitz-Thouless [14], na qual a rede bidimensional de vórtices se torna instável frente a deslocamentos acima da temperatura de fusão da rede  $T_M$  (*Temperatura de Melting*). Em filmes supercondutores do tipo II há modelos que descrevem a fusão da rede vórtices [15], os quais podem ser estendidos aos supercondutores óxidos de alta temperatura crítica [16, 17].

A alta temperatura crítica implica em grandes energias térmicas e pequenas constantes elásticas<sup>6</sup> da rede de vórtices que justificam a ocorrência da fusão da rede de vórtices de Abrikosov. Em razão destes fatores, as flutuações térmicas produzem deslocamentos randômicos de grande amplitude a partir das posições de equilíbrio dos vórtices da rede de Abrikosov, provocando a perda de correlação entre os mesmos.

Um critério semi-quantitativo e muito utilizado [17] neste modelo é o critério de Lindemann, onde a temperatura de fusão da rede de vórtices se dá quando o deslocamento quadrático médio  $\langle u^2 \rangle$  dos vórtices devido a flutuações térmicas atinge uma determinada fração  $c_L$  do parâmetro de rede  $a_0$  ou seja:

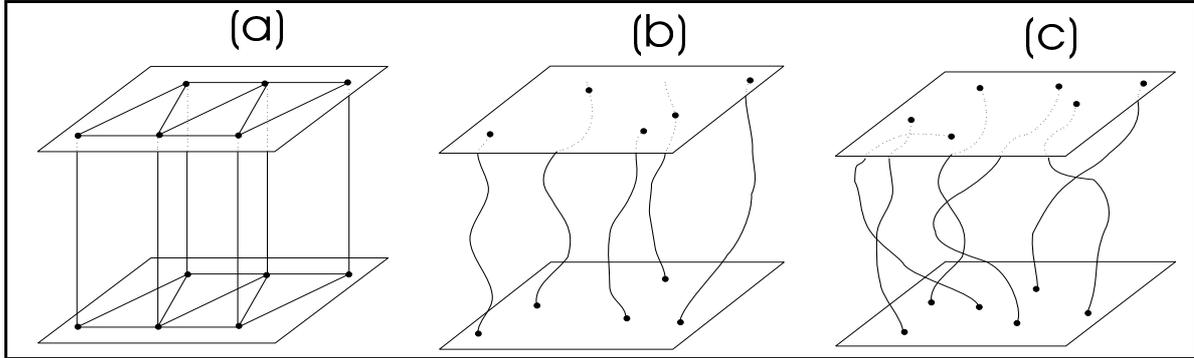
$$\langle u^2 \rangle \approx c_L^2 a_0^2 \quad (1.8)$$

onde  $c_L$  é uma constante chamada número de Lindemann que usualmente varia entre 0.1 e 0.3, para a rede de vórtices.

No  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  os deslocamentos provocados pelas flutuações térmicas podem ocasionar colisões entre as linhas de vórtices. Estas colisões passam a ser relevantes sempre que  $\langle u^2 \rangle^{\frac{1}{2}}$  for comparável ao espaçamento entre as linhas de vórtices  $d \cong (\phi_0/B)^{\frac{1}{2}} = n^{-\frac{1}{2}}$ .

Em altas temperaturas e baixas densidades de linhas de fluxóides  $\langle u^2 \rangle^{\frac{1}{2}} \ll n^{-\frac{1}{2}}$  temos um regime denominado líquido de vórtices não emaranhado (*disentangled*) (ver figura 1.2). Na situação em que a densidade de linhas de fluxo é tal que  $\langle u^2 \rangle^{\frac{1}{2}} \geq n^{-\frac{1}{2}}$  o regime é denominado líquido de vórtices emaranhado (*entangled*). Este regime é caracterizado por grandes amplitudes de deslocamentos, provocando uma configuração entrelaçada das linhas de vórtices. A abordagem mais detalhada da fusão da rede vórtices devida a flutuações térmicas, usando o critério de Lindemann é a de Houghton *e col.* [17]. Eles descobriram que a temperatura de fusão

<sup>6</sup> As quais são consequência de uma elevada constante de Ginzburg-Landau.

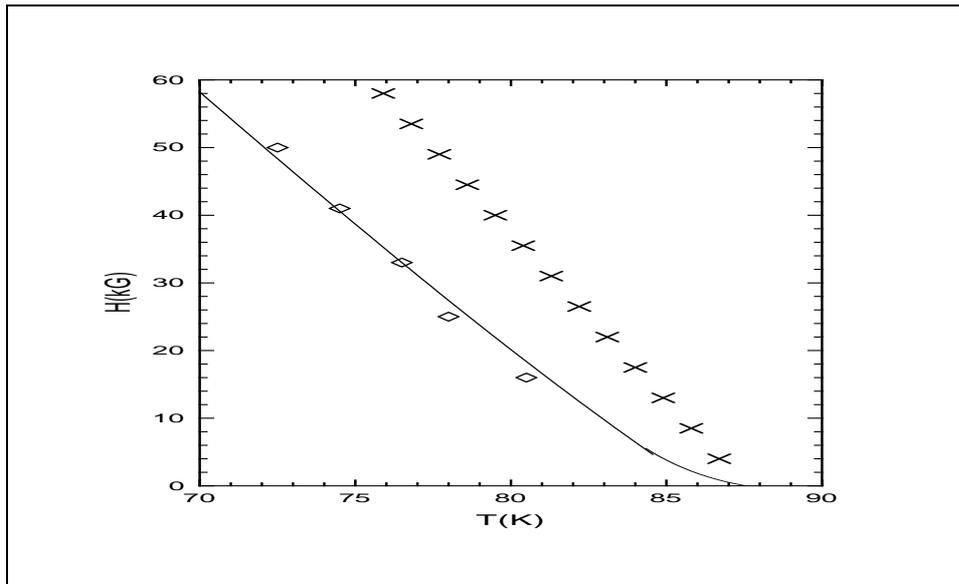


**Fig. 1.2:** Representação das fases do modelo de fusão da rede de vórtices [16] : (a) Rede de Vórtices de Abrikosov. (b) Líquido de Vórtices não emaranhado. (c) Líquido de Vórtices emaranhado.

da rede vórtices  $T_M(H)$  é menor que a temperatura crítica do material  $T_c(H)$ , ou seja, a curva de fusão está abaixo da curva  $H_{c2}(T)$ . Segundo Houghton *e col.* a curva de fusão é linear para uma ampla faixa de valores de campos. Porém, quando  $H \rightarrow 0$  e  $T \rightarrow T_c(0)$ , é previsto um comportamento do tipo:

$$(1 - t) \sim H^{\frac{1}{2}} \quad (1.9)$$

onde  $t = \frac{T}{T_c}$  é a temperatura reduzida. A figura 1.3 mostra comparativamente a eq. (1.9) com resultados experimentais e com a curva  $H_{c2}(T)$  calculada na aproximação de campo médio.



**Fig. 1.3:** Diagrama de fases da fusão da rede de vórtices [17]. Dados experimentais para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  monocristalino, representados por “ $\diamond$ ” sobre a curva da eq. 1.9 e a curva  $H_{c2}(T)$  representada por “ $\times$ ”.

### 1.3.4 Vidro de Vórtices

Conforme descrito na seção 1.2.1 os supercondutores do tipo II apresentam uma rede de vórtices de Abrikosov, que no caso dos supercondutores convencionais, a rede de vórtices apresenta uma simetria translacional de longo alcance. Já nos cupratos de alta  $T_c$  a rede de vórtices apresenta defeitos, devidos aos centros de pinning, como uma rede cristalina.

Assim, supercondutores com uma quantidade elevada de centros de pinning, aleatoriamente distribuídos, possuem um elevado grau de desordem congelada (*quenched disorder*) da rede de fluxóides, fato este que implica em uma destruição da ordem translacional de longo alcance desta rede.

Pequenos comprimentos de coerência  $\xi$  e longos comprimentos de penetração  $\lambda$  são características dos supercondutores óxidos como descrito na seção (1.2.1). Tais características são devidos à grande quantidade de defeitos, que são peculiares a estes sistemas como será discutido mais adiante na seção 2.1.3 .

Assim, qualquer estado ordenado da rede de Abrikosov nestes novos materiais é instável e não há qualquer ordem de longo alcance da rede de fluxóides. Conseqüentemente as flutuações térmicas tem um papel relevante nestes sistemas de fluxóides, tornando a sua configuração metaestável no tempo.

Fisher [5] chama esta fase do estado de fluxóides de *vidro de vórtices*<sup>7</sup>, que mesmo assim possui coerência de longo alcance na fase do parâmetro de ordem supercondutor<sup>8</sup>. Esta fase não forma uma rede de vórtices regular para distâncias maiores que um certo comprimento típico.

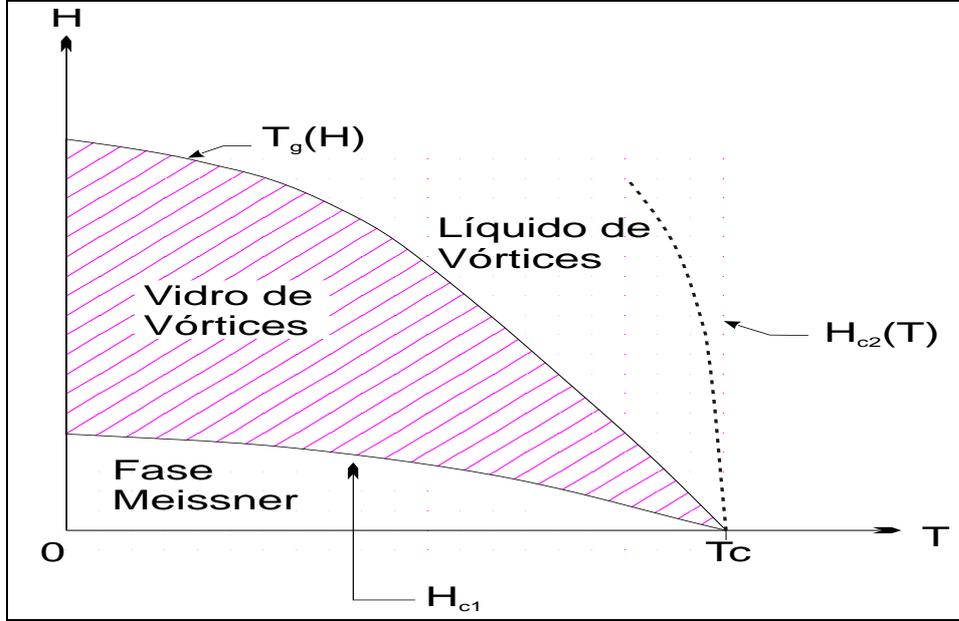
Com o aumento da temperatura a fase do vidro de vórtices se torna instável frente as flutuações térmicas e pode vir a fundir tal como a rede de Abrikosov [18]. Fisher propôs um diagrama de fases para a dinâmica de vórtices o qual divide o estado misto em duas regiões como mostra a figura 1.4 .

Na região de mais baixa temperatura, predominam as interações intervórtices e de pinning as quais determinam a fase do *vidro de vórtices*, onde o sistema é magneticamente irreversível, e na região de temperaturas mais altas as flutuações térmicas dos vórtices predominam resultando

<sup>7</sup> Baseado na similaridade de uma fase existente nos sistemas de vidros de spin que ocorre em materiais magnéticos.

<sup>8</sup> Esta fase não possui simetria translacional de longo alcance.

numa fase fluída chamada *líquido de vórtices*. Nesta fase o sistema apresenta propriedades magnéticas reversíveis até o campo magnético limite  $H_{c2}(T)$ . Neste modelo, a linha de fusão



**Fig. 1.4:** Diagrama de fases proposto por Fisher [5] para o modelo do vidro de vórtices.

do vidro de vórtices é essencialmente a linha de irreversibilidade, que separa estas duas regiões do diagrama de fases, como uma transição de fase análoga à dos vidros de spin. Os vórtices estão congelados espacial e temporalmente em um estado fundamental altamente degenerado, constituído por diferentes configurações, todas com aproximadamente a mesma energia [18].

Sendo uma transição de fase contínua temos um comportamento de escala crítico. Este comportamento pode ser atribuído à existência de um comprimento característico que é comprimento de correlação do vidro de vórtices,  $\xi_{vg}$ , o qual diverge na transição seguindo uma lei de potências com um expoente crítico  $\nu$ :

$$\xi_{vg} \approx |T - T_{vg}|^{-\nu} \quad (1.10)$$

onde  $T_{vg}$  é a temperatura de fusão do vidro de vórtices [18] e  $\nu$  é um expoente crítico. Ocorre também uma redução crítica da dinâmica do sistema, com um tempo de relaxação  $\tau$  divergindo com uma potência  $z$  do comprimento de correlação, onde  $z$  é o expoente crítico dinâmico [18]:

$$\tau \approx \xi_{vg}^z \approx |T - T_{vg}|^{-z\nu} \quad (1.11)$$

Também é previsto o desaparecimento da resistividade ôhmica (linear) em temperaturas próximas a  $T_{\nu g}$ , em contraste com a teoria de ativação térmica que prevê um rápido decaimento exponencial da resistividade em  $T_{\nu g}$ , mas atingindo um valor nulo somente em  $T = 0$ . Predizem também que a linha de fusão da fase de vidro de vórtices, na região próxima a  $T_c$ , é dada por

$$T_c - T_{\nu g}(H) \propto H^{\frac{1}{2\nu_0}} \quad (1.12)$$

onde o valor esperado do expoente crítico tem valor  $\nu_0 \approx \frac{2}{3}$  [18] levando a seguinte forma para a linha de irreversibilidade

$$H = \alpha \left(1 - \frac{T_{\nu g}}{T_c}\right)^{\frac{4}{3}} \quad (1.13)$$

onde  $\alpha$  é um coeficiente de proporcionalidade e  $T_{\nu g}$  é a temperatura de transição  $T_{irr}$ .

Evidências experimentais desta transição de fase foram observadas nas características  $I$ - $V$  de amostras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , nas quais verificou-se um comportamento em leis de escala com expoentes que são consistentes com o modelo vidro de vórtices [19].

## 1.4 A Supercondutividade Intergranular: Vórtices de Josephson

### 1.4.1 Introdução

O efeito Josephson, o qual é consequência do estado quântico macroscópico, ocorre quando há tunelamento de superpartículas entre dois supercondutores separados por uma fina barreira isolante (Supercondutor-Isolante-Supercondutor, *SIS*). Este tunelamento se dá devido à transmissão do parâmetro de ordem através da junção, com acoplamento de fase  $\Theta$ , nos dois lados da junção<sup>9</sup> [20, 21, 22] .

Interfaces supercondutor-normal se correlacionam de tal modo que as propriedades de ambos os materiais sejam modificadas. O metal normal causa uma diminuição do parâmetro de ordem numa camada superficial do supercondutor até uma profundidade característica, da mesma forma que o parâmetro de ordem invade o metal normal até uma certa distância. Estes efeitos são chamados de efeitos de proximidade.

Um parâmetro importante é a máxima densidade de corrente  $J_{0J}$ , que a junção pode transportar sem que ocorra dissipação de energia. Se uma corrente  $J > J_{0J}$  passa pela junção, então uma certa diferença de voltagem aparece na junção, e há dissipação. Junções *SNS* apresentam correntes críticas  $J_{0J}$  muito maiores do que as junções *SIS*.

### 1.4.2 Vórtices Intergranulares (Josephson)

As propriedades eletromagnéticas dos supercondutores cerâmicos de alta temperatura crítica são fortemente afetadas pela granularidade do estado supercondutor. Os elos fracos entre os grãos limitam as correntes de blindagem e, para campos suficientemente intensos, permitem a penetração de fluxo magnético na amostra.

Clem [23] apresenta um modelo teórico no qual considera o material como uma matriz de grãos anisotrópicos fortemente supercondutores e assume que os grãos vizinhos próximos são acoplados por junções Josephson idênticas de corrente crítica de Josephson  $J_{0J}$ . Usando a teoria Ginzburg-Landau e levando em conta somente a energia de condensação intragranular e a energia de acoplamento Josephson intergranular, ele encontra expressões para  $\xi_J$ ,  $\lambda_J$ ,  $H_{c1J}$  e

<sup>9</sup> Os efeitos de acoplamento fraco não ocorrem somente por junções Josephson, mas em qualquer ligação fraca entre dois supercondutores.

$H_{c2J}$ , onde o sub-índice  $J$  serve para denotar uma quantidade intergranular.

Devido ao fato dos acoplamentos intergranulares serem fracos, o  $H$  penetra mais fácil e profundamente entre os grãos até um certo comprimento de penetração  $\lambda_J$  ao longo das fronteiras de grão, do que nas regiões intragranulares (com comprimento de penetração  $\lambda_g$ ), pois  $\lambda_J \gg \lambda_g$ . Assim, quando  $H > H_{c1J}(T)$  é energeticamente mais favorável que o campo penetre na forma de vórtices intergranulares. A forma como estes vórtices de Josephson penetram depende das forças de pinning intergranulares e do gradiente de campo local na amostra.

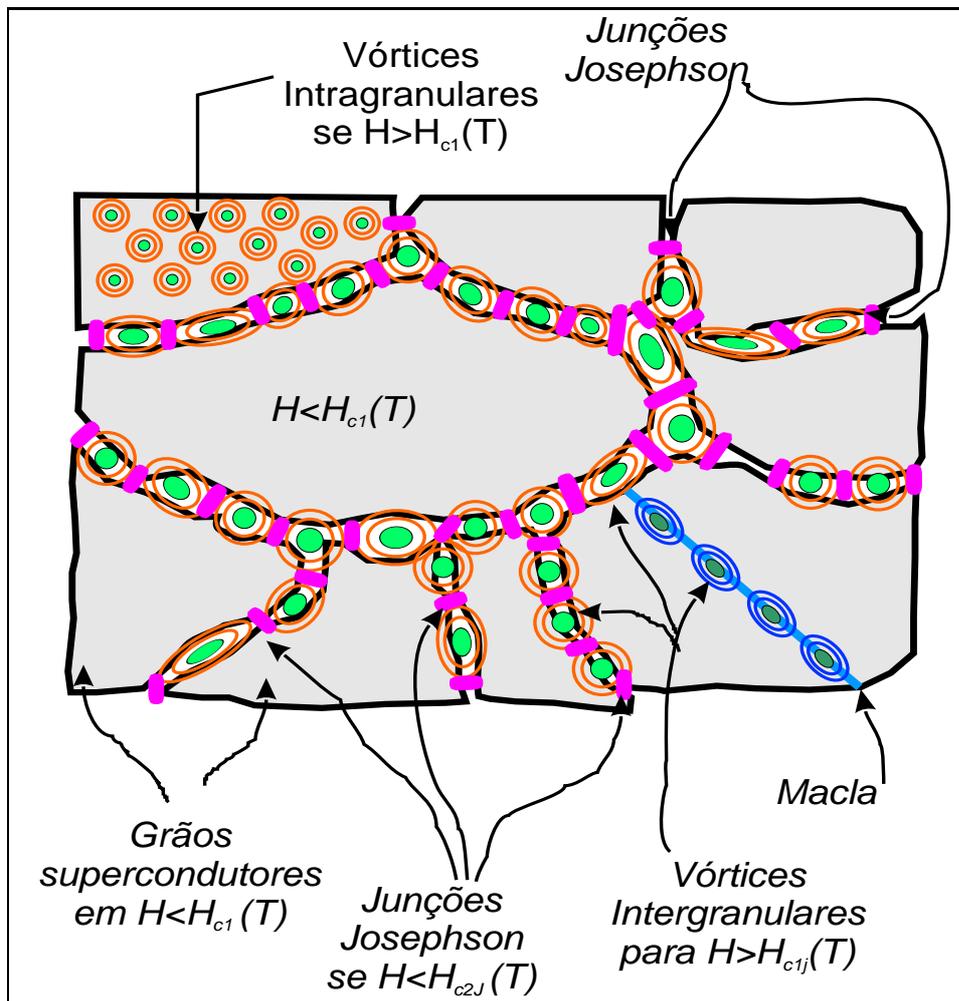
Estudos da resposta diamagnética *ZFC* em cerâmicas supercondutoras [24] revelam que, em baixos campos  $H < H_{c1J}(T)$ , o volume da amostra (*bulk*) é blindado, ou seja, a aplicação de um pequeno campo magnético na amostra ( $H < H_{c1J}(T)$ ) induzirá uma corrente de blindagem que flue em sua camada superficial. Porém para  $H_{c1J}(T) < H < H_{c1}(T)$  o campo penetra na amostra em forma de fluxóides, que se alojam nas regiões entre os grãos dentro de vórtices de Josephson. A figura 1.5 ilustra a distribuição de uma rede destes vórtices nas regiões entre os grãos supercondutores, bem como uma amostragem de vórtices intragranulares de Abrikosov caso as condições termodinâmicas permitam sua existência. Analogamente como ocorre para o vórtice intragranular, o vórtice intergranular de Josephson também possui um quantum de fluxo magnético que, aproximadamente falando, é confinado a um cilindro<sup>10</sup> de área seccional  $\pi\lambda_J^2$ . A diferença é que o núcleo do vórtice de Josephson passa através de regiões intergranulares, onde o parâmetro de ordem é fraco ou nulo, e não através do grão como o vórtice de Abrikosov.

O pinning destes vórtices tem origem no caráter discreto e inhomogêneo das forças de acoplamento das junções intergranulares.  $J_{cJ}(H, T)$  é a densidade de corrente crítica de transporte intergranular e, embora possa parecer claro que  $J_{cJ}$  seja a máxima densidade de corrente Josephson  $J_{0J}$ , é possível que  $J_{cJ}$  seja muito menor que  $J_{0J}$ <sup>11</sup>. Com o aumento do campo mais vórtices irão penetrar nas regiões intergranulares e  $J_{cJ}$  será gradativamente suprimida pois este campo magnético irá enfraquecer e quebrar as junções suprimindo as  $J_{0J}$ .

Em campos mais altos ( $H > H_{c1}(T)$ ), dois processos ocorrem: o fluxo magnético penetra

<sup>10</sup> Hipoteticamente falando seria um cilindro, mas sua forma deve se ajustar ao espaço geométrico delimitado pelos grãos e as junções Josephson, o que limitaria os vórtices de supercorrentes a circularem (percorerem) o caminho fechado entre o contorno do grão e as junções.

<sup>11</sup> O fato dos vórtices de supercorrentes estarem limitados a regiões das junções limita a máxima densidade de corrente de transporte à valores menores do que o máximo de corrente permitida pela junção  $J_{0J}$ . Pois a junção além de transportar as supercorrentes dos vórtices, tem de suportar uma corrente de transporte.



**Fig. 1.5:** Representação esquemática da localização dos vórtices intergranulares e intragranulares, para uma melhor comparação de seus centros de aprisionamento.

no grão na forma de vórtices de Abrikosov deprimindo o parâmetro de ordem, além disto o acoplamento efetivo dos grãos é enfraquecido pelo campo magnético.

Cada junção Josephson possui um campo crítico  $H_J(T)$  e para  $H > H_J(T)$  a mesma é destruída. Podemos definir um campo crítico  $H_{c2j}(T)$  para o qual a supercondutividade intergranular como um todo sofre uma transição de fase. Analogamente existe uma temperatura crítica  $T_{cJ}(H)$ , que é determinada a partir do regime crítico da transição magnetoresistiva, e que se situa numa temperatura ligeiramente superior ao ponto de magnetoresistividade zero.

Na situação ideal, quando  $T \rightarrow T_{cJ}(H)^-$  vórtices intergranulares não podem mais permanecer aprisionados, pois a energia térmica pode facilmente excitar vórtices de um centro de pinning por sobre a barreira de potencial da junção Josephson para outro centro de pinning

adjacente. Consequentemente  $J_{0J} \rightarrow 0$  efetivamente quando  $T \rightarrow T_{cJ}(H)$ .

Numa situação real a energia de acoplamento dos elos fracos é distribuída sobre uma larga faixa de valores. Isto significa que muitos elos fracos persistem até regiões bem acima de  $H_{c2J}(T)$ .

Segundo Mohamed e Jung [25], estes valores de campos críticos,  $H_{c1J}(T)$  e  $H_{c2J}(T)$ , dependem da geometria da amostra devido aos campos demagnetizantes e também da distribuição das energias de acoplamentos Josephson ao longo das fronteiras dos grãos.

### 1.4.3 Origem do “Pico” Meissner

Para compreender as propriedades magnéticas e de transporte básicas da rede de junções Josephson em um supercondutor granular, é necessário relacionar as propriedades supercondutoras macroscópicas<sup>12</sup> do bulk observadas, com as propriedades intrínsecas das fronteiras de grão<sup>13</sup>.

A dinâmica dos vórtices de Josephson não pode ser obtida por métodos convencionais de medida de transporte ou magnetização, devido à superposição dos efeitos causados pela dinâmica dos vórtices intergranulares com os vórtices intragranulares. A principal razão desta superposição se deve ao valor de  $H_{c2J}(T)$  que geralmente está entre os campos críticos intragranulares<sup>14</sup>  $H_{c1}(T)$  e  $H_{c2}(T)$ .

Experimentos convencionais, em geral, consistem em resfriar o sistema de modo a evitar gradientes de temperatura na amostra.

A existência do pinning para os fluxóides intergranulares tem origem nas junções entre os grãos, pois seus vórtices de supercorrentes devem percorrer regiões fechadas entre o contorno do grão e as junções.

Quando o processo de resfriamento do sistema supercondutor, na presença de campo magnético, for extremamente lento ao limite de evitar gradientes de temperatura na amostra, pode se chegar a situação na qual os gradientes de fluxo magnético<sup>15</sup> sejam irrelevantes.

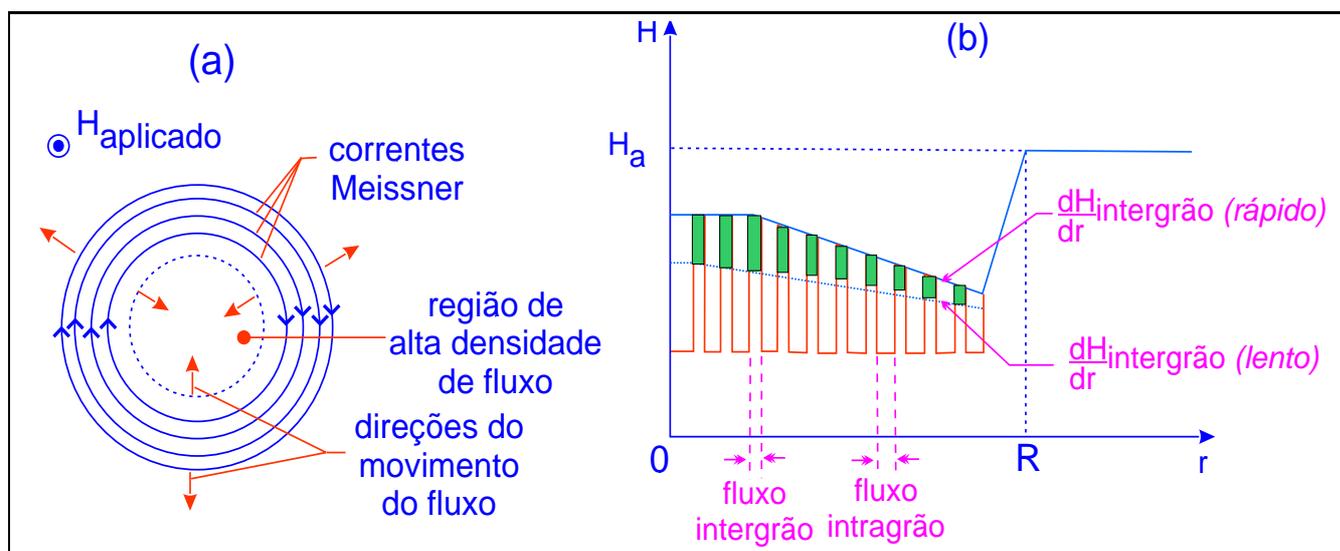
<sup>12</sup> Como corrente crítica de transporte e a magnetização da amostra.

<sup>13</sup> Incluindo formação e o pinning dos fluxóides intergranulares de Josephson.

<sup>14</sup>  $H_{c1}(T) < H_{c2J}(T) \ll H_{c2}(T)$ .

<sup>15</sup> Estes gradientes de fluxo são criados devido ao aprisionamento dos fluxóides, que é causado pelo pinning gerado pelas junções Josephson.

Caso o sistema seja forçado a um resfriamento rápido com gradientes térmicos<sup>16</sup>, que ocorrem da superfície para o interior do bulk, a amostra se torna supercondutora primeiramente na superfície, enquanto seu interior ainda se encontra no estado normal. Este aumento forçado no gradiente de fluxo magnético é mostrado na figura 1.6-b, que representa o perfil do excesso de campo magnético aprisionado na amostra numa situação de não equilíbrio. As correntes Meissner que em princípio circulam numa camada superficial da amostra tendem a expulsar o fluxo magnético que se encontrava na mesma e ao mesmo tempo tentam impedir que mais campo magnético penetre na amostra, como pode ser visto no esquema representativo da figura 1.6-a. Esta expulsão do fluxo ocorre das regiões supercondutoras para as regiões normais, seja para fora da amostra ou para o seu interior, que ainda se encontra no estado normal, bem como quando numa condição termodinâmica em que o pinning (na região interna da amostra) seja relativamente fraco em relação as energias térmicas.



**Fig. 1.6:** (a) Representação do aprisionamento do excesso de fluxo magnético (*flux-trapping*) supondo uma amostra com simetria cilíndrica, indicando como as correntes Meissner interagem com o campo magnético. (b) Representação esquemática do perfil dos gradientes de fluxo magnético, mostrando diferença entre um congelamento rápido e lento.

Consequentemente a amostra vai se tornando supercondutora por inteiro, e todo fluxo, que se encontrava em seu interior, se torna quantizado na forma de vórtices de Josephson, e

<sup>16</sup> Este procedimento se torna viável experimentalmente devido a baixa condutividade térmica das cerâmicas supercondutoras em geral.

que permanecem aprisionados (devido ao pinning causado pelas junções) enquanto não forem excedidos os valores críticos de campo e temperatura que ocasionem seu “depinning gradual”.

Devido a alta densidade de fluxo entre os grãos no centro da amostra o movimento de vórtices individuais é muito limitado e o flux-creep pode ocorrer via saltos coletivos de feixes de fluxo [2]. A energia de ativação para movimentar um feixe de fluxóides é muito maior do que seria para movimentar um único fluxóide e é por isto que se mantém o acentuado gradiente de fluxo intergranular através da amostra.

Cabe ressaltar que durante o resfriamento o sistema está acima da linha  $H_{c1}(T)$  (ver figura 1.7) e ocorre a penetração de fluxo dentro dos grãos, mas o sistema rapidamente atinge valores de campo menores que  $H_{c1}(T)$  e todo fluxo intragranular que não é expulso dos grãos devido ao efeito Meissner, fica fortemente aprisionado no supercondutor.

Enquanto este procedimento de resfriamento rápido for realizado em valores de campo e temperatura, que estejam abaixo da linha  $H_{c1}(T)$  a dinâmica dos vórtices de Josephson pode ser estudada separadamente da dinâmica dos vórtices de Abrikosov, sem que ocorra superposição de seus efeitos.

Com o eventual aumento da energia térmica do sistema supercondutor, as junções Josephson começam a ser quebradas gradualmente e inicia-se o processo do depinning destes vórtices intergranulares. Observe que este depinning é gradual e ocorre numa ampla faixa de temperatura, indicando uma larga faixa de energia para a ativação do fluxo intergranular. Esta ampla faixa pode ter origem na forma da distribuição das energias de acoplamento Josephson e no tamanho variável dos feixes de fluxo intergranulares.

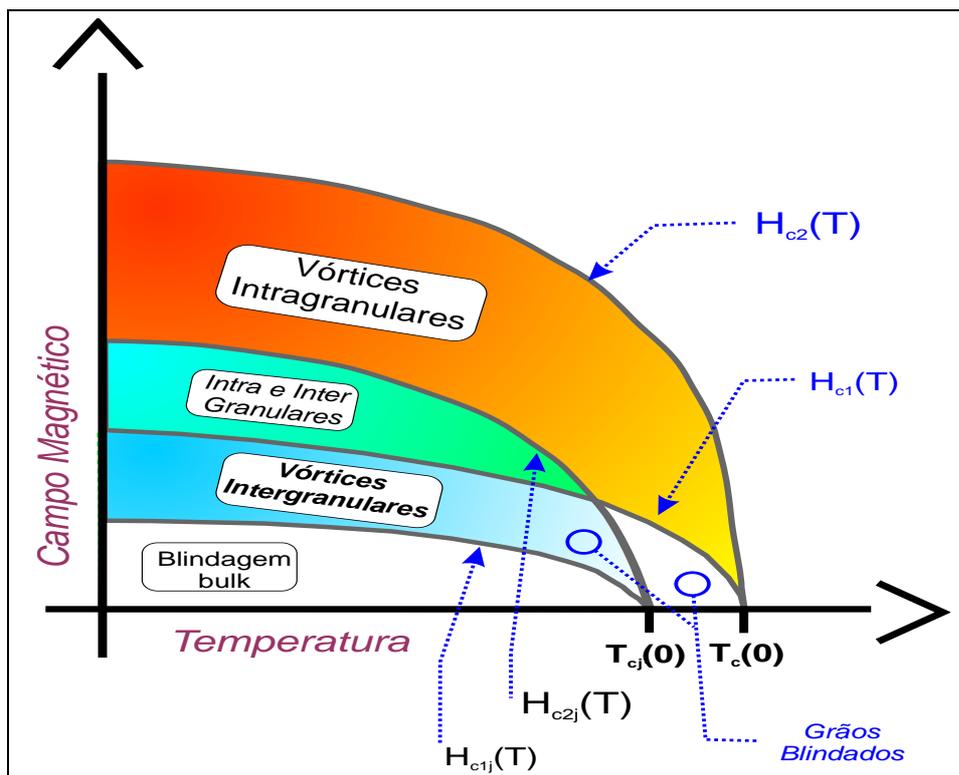
Os fluxóides que estão livres de seus centros de pinning e que não encontram outro centro de aprisionamento adjacente ao longo das regiões intergranulares são expulsos do bulk<sup>17</sup> contanto que o sistema ainda se encontre num estado termodinâmico (de temperatura e campo magnético) que esteja abaixo da linha  $H_{c1}(T)$ , como indicado na figura 1.7. Esta expulsão do fluxo é detectada como um aumento da magnetização do sistema na forma de um “pico” no efeito Meissner em função da temperatura. É importante notar que o pinning do fluxo de Abrikosov é muito mais forte do que o pinning do fluxo de Josephson. Conseqüentemente, o pico Meissner não é resultante e não tem contribuições do depinning do fluxo intragranular, se

---

<sup>17</sup> Estas regiões intergranulares em que não há mais junções Josephson são agora regiões normais onde o fluxo magnético é livre.

este existir, pois este depinning intragranular só ocorre em temperaturas bem mais elevadas. Este fato torna possível estudar separadamente a dinâmica do fluxo de Josephson da dinâmica do fluxo de Abrikosov.

Na figura 1.7 apresentamos um esquema ilustrativo das linhas de temperatura e campos críticos de uma forma geral para supercondutores granulares.



**Fig. 1.7:** Representação esquemática das linhas críticas de campos magnéticos e temperaturas intra e intergranulares.

Em campos magnéticos maiores que o campo de desacoplamento do grão  $H_{c2J}(T)$ , a resposta diamagnética é devida unicamente aos grãos e a dinâmica do fluxo é dominada pelo flux creep e flux flow intragranular.

#### 1.4.4 Percolação dos Grãos e a Condutividade Elétrica

Devido a granularidade dos supercondutores óxidos de alta  $T_c$  sua descrição é dada em termos de um modelo tridimensional de grãos acoplados por ligações fracas tais como as junções Josephson. Como consequência a transição normal-supercondutor ocorre em duas etapas: a transição intragranular em  $T_c(H)$ , e em temperaturas mais baixas a transição intergranular em

$T_{c0}(H)$ .

Em temperaturas baixas  $T \ll T_c(H)$  o sistema supercondutor não apresenta resistência à corrente elétrica de transporte até uma certa temperatura chamada  $T_{c0}$  onde  $J_c(T) = 0$ . Para  $T < T_{c0}(H)$  a quantidade de grãos acoplados através das junções Josephson é suficientemente grande ( $\approx 25\%$ ) para que a fase do parâmetro de ordem supercondutor seja a mesma ao longo de cadeias infinitas de grãos e o bulk não apresente resistência. Esta fase ( $T < T_{c0}(H)$ ) é denominada *coerente*, e o sistema está percolado apresentando condutividade infinita.

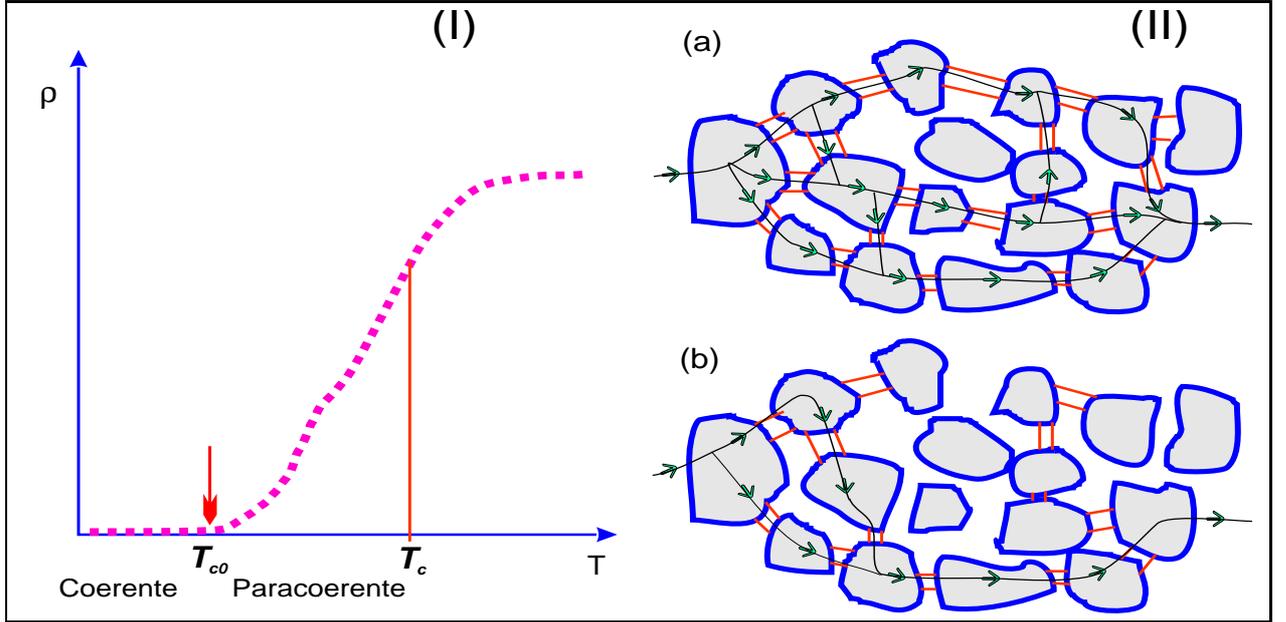
A região de temperatura  $T_{c0}(H) < T < T_c(H)$  é denominada *paracoerente*, na qual os grãos são supercondutores, mas o parâmetro de ordem não apresenta a mesma fase numa quantidade de grãos suficientemente grande para que ocorra condutividade infinita. Isto se deve ao fato de que nesta região uma quantidade muito grande de acoplamentos Josephson já foram quebrados devido ao fato das energias térmicas serem grandes comparadas às energias de acoplamento dos grãos<sup>18</sup>. Com o aparecimento de vórtices Abrikosov dentro dos grãos, as junções também enfraquecem, pois há uma redução local do parâmetro de ordem no grão.

Cabe ressaltar que abaixo de  $T_c(H)$  tanto na fase coerente como na paracoerente a amplitude do parâmetro de ordem é constante.

Na região coerente não há resistência para a corrente de transporte, devido ao grande número de caminhos supercondutores existentes ocasionados pelos acoplamentos Josephson. Na região paracoerente há uma diminuição em número destes caminhos devido a quebra das junções Josephson. Esta diminuição no número de caminhos faz com que haja um aumento local considerável das densidades de corrente, tornando as junções resistivas sempre que a corrente local  $J > J_{0J}$ . Assim a corrente sempre tende a utilizar todos os caminhos possíveis restantes, minimizando a dissipação. A cada desacoplamento de grãos, com perda de um ou mais caminhos para a corrente de transporte, implica num rearranjo da distribuição de correntes, que segundo Rodrigues [26] pode ser interpretado em termos de instabilidades do tipo *flux-jump*, pois há um rearranjo da distribuição de muitos vórtices intergranulares.

A figura 1.8-I a seguir mostra uma curva de resistividade ilustrativa, indicando as regiões coerente e paracoerente e também na fig. 1.8-II temos uma ilustração dos caminhos utilizados pela corrente para percorrer o bulk com o aumento da energia térmica.

<sup>18</sup> Quanto menor a energia térmica do sistema, maior é o número de grãos acoplados e consequentemente a fase



**Fig. 1.8:** (I) Ilustração das fases coerente e paracoerente em uma transição resistiva. (II) Representação simbólica dos caminhos possíveis para correntes através do bulk, onde a cada alteração (por exemplo, II-a para II-b) o sistema sofre instabilidades do tipo *flux-jump* [26].

### 1.4.5 O Modelo do Vidro Supercondutor para a Linha de Irreversibilidade

Müller, Takashige e Bednorz [1] consideraram os novos cupratos supercondutores com uma natureza intrinsecamente granular e propuseram o uso do modelo de Shih, Ebner e Stroud [27, 28] desenvolvido para os supercondutores granulares convencionais, para explicar a resposta diamagnética dos novos supercondutores de alta temperatura crítica.

Neste modelo [27, 28], o supercondutor, quando na presença de um campo magnético  $\vec{B}$ , é considerado como um arranjo composto de  $n$ -grãos supercondutores fracamente acoplados e imersos em uma matriz não supercondutora, que interagem entre si através de acoplamento Josephson ou por efeito de proximidade.

O Hamiltoniano básico normalmente proposto para descrever o sistema é dado por:

$$\mathcal{H} = - \sum_{\langle ij \rangle} J_{ij}(r_{ij}, \vec{B}, T) \cos(\Theta_i - \Theta_j - A_{ij}) \quad (1.14)$$

onde,  $J_{ij}$  é a energia de acoplamento Josephson entre os grãos vizinhos  $i$  e  $j$ , e sua forma do parâmetro de ordem é coerente numa região maior do sistema.

explícita depende do material através do qual os grãos supercondutores estão acoplados [28],  $\Theta_i$  é a fase do parâmetro de ordem no grão  $i$  e

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\phi_0} \int_i^j \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad (1.15)$$

$\phi_0$  é o quantum de fluxo e  $\vec{A}$  é potencial vetor do campo magnético local. A integral de linha é tomada ao longo do caminho que liga diretamente o centro dos grãos  $i$  e  $j$ . A energia de acoplamento Josephson é considerada constante,  $J_{ij} = J$ , entre os primeiros vizinhos e nula entre os demais.

Este modelo prevê a ocorrência de uma fase de baixa temperatura denominada vidro supercondutor, onde a configuração do parâmetro de ordem consiste em uma distribuição randômica de fases congeladas localmente, de modo que o estado supercondutor se encontre frustrado.

A frustração no acoplamento da fase do parâmetro de ordem abre a possibilidade de que em um cluster grande de grãos supercondutores possa existir uma série de estados diferentes (diferentes fases) com aproximadamente a mesma energia. Shih, Ebner e Stroud [27] prevêem com este modelo a existência de uma fase supercondutora metaestável com comportamento análogo ao dos vidros de spin.

Müller, Takashige e Bednorz [1] sugeriram que esta fase de vidro supercondutor, com comportamento similar ao dos vidros de spin, seja a responsável pelo comportamento diamagnético irreversível dos novos supercondutores abaixo da linha de irreversibilidade. Por analogia com os sistemas de vidros de spin [29], eles consideram a linha de irreversibilidade no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  como uma linha de ‘*de Almeida-Thouless*’ :

$$H = H_0 \left( 1 - \frac{T_g(H)}{T_g(0)} \right)^\gamma \quad (1.16)$$

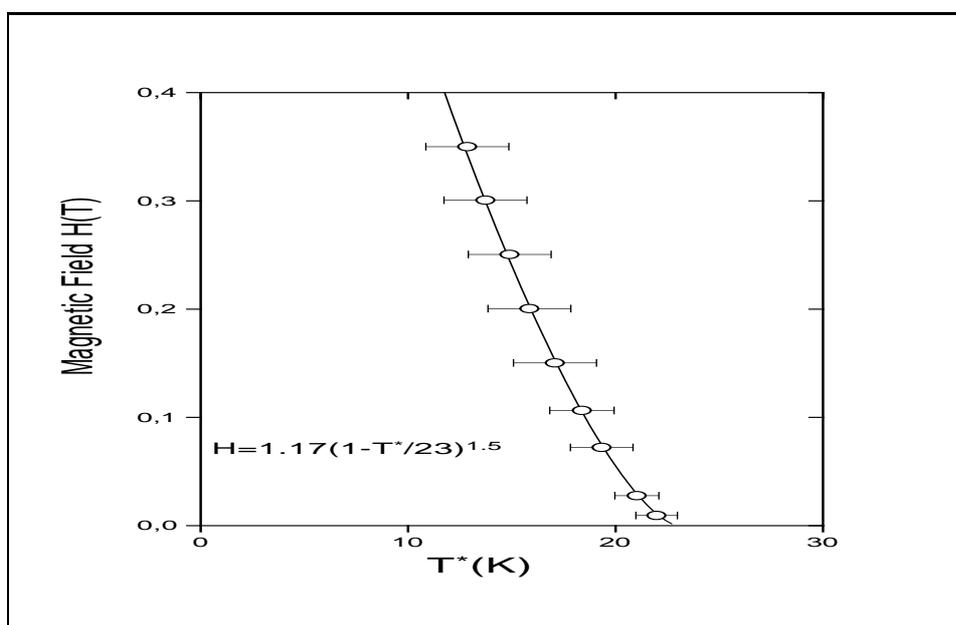
onde  $\gamma = 3/2$  e  $T_g(H)$  é a temperatura de congelamento, que por analogia seria a temperatura de irreversibilidade magnética.

Quando o supercondutor é resfriado com um campo aplicado ( $FC$ ), a configuração resultante é de quase equilíbrio. Porém, quando o sistema é resfriado em campo nulo ( $ZFC$ ), e o campo magnético é aplicado após o equilíbrio térmico, a magnetização resultante é metaestável até a temperatura de irreversibilidade  $T_{irr}(H)$ .

A irreversibilidade<sup>19</sup> magnética neste modelo é provocada pelos efeitos de frustração e de

---

<sup>19</sup> Diferenças entre os momentos  $FC$  e  $ZFC$ .



**Fig. 1.9:** Linha de irreversibilidade magnética obtida experimentalmente por Müller e col. [1] em amostras de  $La_{2-x}Ba_xCuO_{4-\delta}$  policristalino

sordem. Devido aos deslocamentos de fase dados pela eq. 1.15, o aumento do valor do campo magnético aplicado provoca um aumento dos efeitos de frustração e de desordem da fase, o que conseqüentemente fragiliza as junções Josephson, reduzindo a  $T_{irr}(H)$ , que é um comportamento análogo ao observado nos sistemas de vidros de spin que ocorre em materiais magnéticos.

## Capítulo 2

# A Cerâmica $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

## 2.1 O Sistema $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$

### 2.1.1 Introdução

O  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  foi o primeiro cuprato supercondutor com temperatura crítica próxima aos 100 K a ser sintetizado [30].

No decorrer das pesquisas sobre os materiais supercondutores de alta temperatura crítica, o sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é com certeza o material mais estudado de toda história da supercondutividade, mesmo assim muitas propriedades deste sistema ainda não foram explicadas.

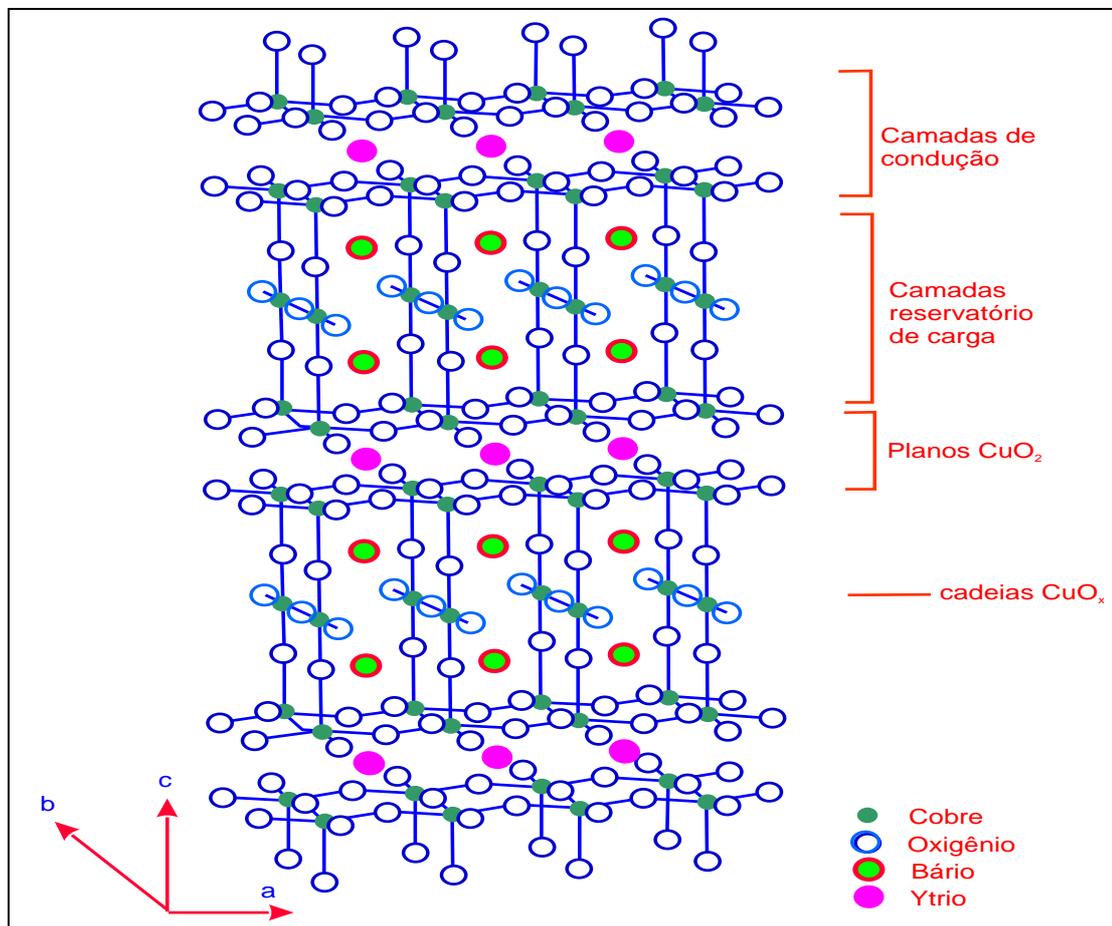
Uma característica interessante dos supercondutores óxidos é a sua complexa estrutura cristalina e esta complexidade dá origem a uma série de propriedades, dentre as quais sua alta temperatura crítica ( $T_c$ ).

### 2.1.2 A Estrutura Cristalina

Sua estrutura cristalina é constituída de planos de  $CuO_2$ , comuns a todos os cupratos supercondutores de alta  $T_c$ . No caso temos dois planos de  $CuO_2$  separados por átomos de Y, aqui cada átomo de Cu está ligado a quatro átomos de oxigênio, e uma camada contendo átomos de Cu, Ba, e O entre as camadas duplas de  $CuO_2$  separadas pelo Y, descrito na figura 2.1.

Devido a este tipo de estrutura, o material apresenta forte anisotropia em suas propriedades tanto na fase supercondutora quanto na fase normal. A estrutura cristalográfica do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é ortorrômbica com parâmetros de rede típicos,  $a = 3.82 \text{ \AA}$ ;  $b = 3.89 \text{ \AA}$  e  $c = 11.66 \text{ \AA}$  [31]. A anisotropia no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ocorre na direção dos 3 eixos cristalográficos, porém as propriedades supercondutoras variam fortemente apenas na direção do principal eixo de

anisotropia, o eixo  $\hat{c}$ .



**Fig. 2.1:** Estrutura ortorrômbica do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  mostrando as camadas de condução alternadas com camadas que funcionam como reservatórios de carga [32]. As camadas de condução consistem de 2 planos de  $CuO_2$  separados por átomos de Y. Os reservatórios de carga são formados pelas cadeias  $CuO_x$  (as cadeias  $Cu - O - Cu - O \dots$ ) estendidas ao longo da direção  $\hat{b}$ . O oxigênio contido nas cadeias de  $CuO_x$  pode variar entre 0 a 1.

Na cela unitária dois átomos de cobre estão no plano de condução ( $CuO_2$ ) e o terceiro átomo está nas camadas que separam os planos  $CuO_2$ . A distribuição dos átomos de oxigênio em torno deste terceiro átomo de cobre dá origem às cadeias lineares  $Cu - O - Cu - O \dots$ , ao longo do eixo  $\hat{b}$ .

A concentração de oxigênio por cela unitária pode variar no intervalo de  $\delta = [0..1]$ . Quando há 7 átomos de oxigênio por cela unitária ( $\delta = 0$ ) ocorre a formação das cadeias lineares  $Cu - O$  dando origem a uma estrutura ortorrômbica com propriedades supercondutoras. Com seis átomos de oxigênio por cela unitária ( $\delta = 1$ ), as cadeias lineares  $Cu - O$  não existem e a

estrutura é tetragonal com propriedades isolantes e antiferromagnéticas [33].

### 2.1.3 Os Defeitos

As propriedades supercondutoras do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  estão diretamente relacionadas com os defeitos em sua estrutura cristalina.

Devido a importância dos defeitos, podemos classifica-los em três níveis:

- *microscópico*: a origem desta escala de defeitos está principalmente nas vacâncias de oxigênio, existentes nas cadeias lineares  $Cu - O$ .
- *mesoscópico*: as maclas, as deslocções e os defeitos de empilhamento dão origem aos defeitos a nível mesoscópico.
- *macroscópico*: nesta escala, os defeitos característicos são as fronteiras de grãos, precipitados e poros.

São estes defeitos que introduzem nas propriedades físicas do sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  os efeitos de inhomogeneidades.

### 2.1.4 Comprimentos Característicos

O  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  é um supercondutor de parâmetro de Ginzburg Landau  $\kappa$  elevado,  $\kappa \approx 80$  [34] com um comprimento de coerência  $\xi$  pequeno,  $\xi_{ab} = 14 \pm 2 \text{ \AA}$  e  $\xi_c = 1.5 - 3 \text{ \AA}$  e um elevado comprimento de penetração de London  $\lambda_{ab} = 1400 \text{ \AA}$  e  $\lambda_c \approx 7000 \text{ \AA}$  [35] (valores experimentais no limite de baixas temperaturas).

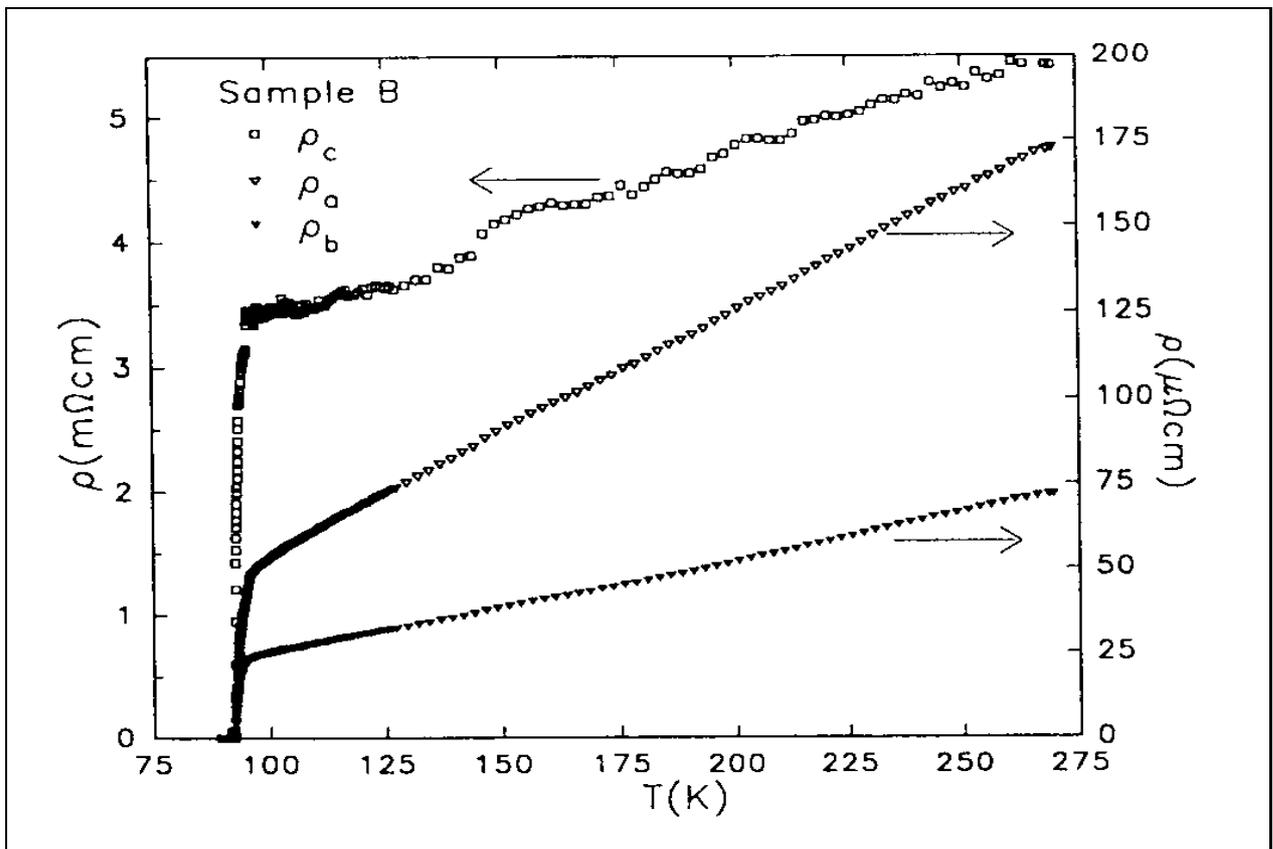
Estes resultados indicam supercondutividade de caráter quase bidimensional, note-se que  $\xi_c$  é menor que o parâmetro de rede na direção  $\hat{c}$  (ver seção 2.1.2).

Este curto comprimento de coerência permite a modulação espacial do parâmetro de ordem do estado supercondutor com baixo custo energético (ver seção 1.2.1).

### 2.1.5 Transporte Elétrico

A condutividade no sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , devido à sua estrutura cristalina, é bastante anisotrópica, os planos  $CuO_2$  que estão no plano  $\hat{a}-\hat{b}$ , são condutores, porém são intercalados ao longo do eixo  $\hat{c}$  por planos com baixa condutividade. Medidas de resistividade em monocristais

de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  sem maclas (ver seção 2.1.3)[36], revelam uma anisotropia na resistividade elétrica do estado normal entre as direções  $\hat{a}$  e  $\hat{b}$ , onde  $\rho_a/\rho_b \approx 2.2 \pm 0.2$  na faixa de temperatura entre 150 K e 275 K. Já entre o eixo  $\hat{c}$  e os eixos  $\hat{a}$  e  $\hat{b}$  a anisotropia é mais relevante  $\rho_c/\rho_a \approx 35$  e  $\rho_c/\rho_b \approx 75$  em temperaturas próximas à 275 K, valores estes são aproximadamente duas vezes maiores quando em temperaturas próximas aos 100 K. A figura 2.2 ilustra os comportamentos de  $\rho_a$ ,  $\rho_b$  e  $\rho_c$  em função da temperatura.



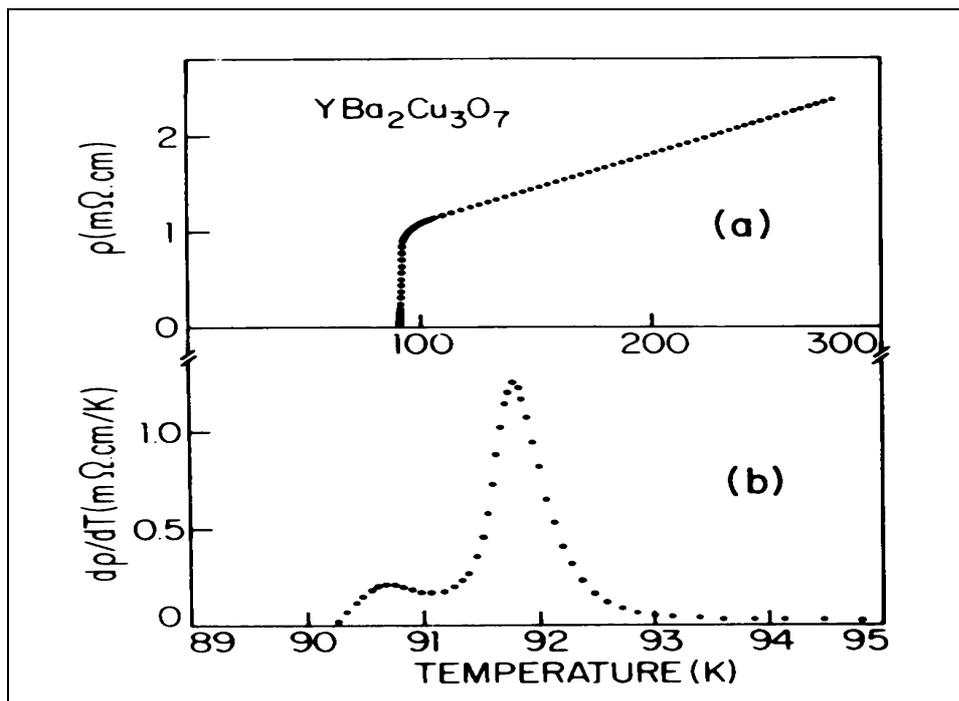
**Fig. 2.2:** Resistividade nas direções  $abc$  para um monocristal de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  sem maclas [36].

No caso de amostras policristalinas a resistividade no estado normal<sup>1</sup> varia linearmente com a temperatura até a região onde ocorre a transição estrutural ortorrômbica-tetragonal próximo a 600°C [37].

A transição de fase normal-supercondutor no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  em medidas de resistividade ocorrem em duas etapas [38] evidenciando o caráter inhomogêneo deste sistema. A derivada da resistividade com relação a temperatura  $d\rho/dT$ , na região da transição apresenta dois

<sup>1</sup> Em policristalinos a resistividade é uma média do tensor resistividade.

picos, como mostrado na figura 2.3. O pico de maior amplitude que ocorre em temperaturas mais elevadas, representa a transição supercondutora dentro dos grãos (*intragrão*), e o pico de menor amplitude refere-se à possível transição supercondutora nas junções fracas entre os grãos (*intergrão*) levando ao estabelecimento da coerência da fase de longo alcance do parâmetro de ordem supercondutor (ver seção 1.4.4).



**Fig. 2.3:** (a) Resistividade em função da temperatura no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  policristalino. (b) Respectiva derivada  $d\rho/dT$  na região próxima a transição [38].

Em amostras monocristalinas, este comportamento da curva de resistividade contra temperatura na região da transição também é observado [39], reafirmando o fato de que a inhomogeneidade é uma característica intrínseca do sistema.

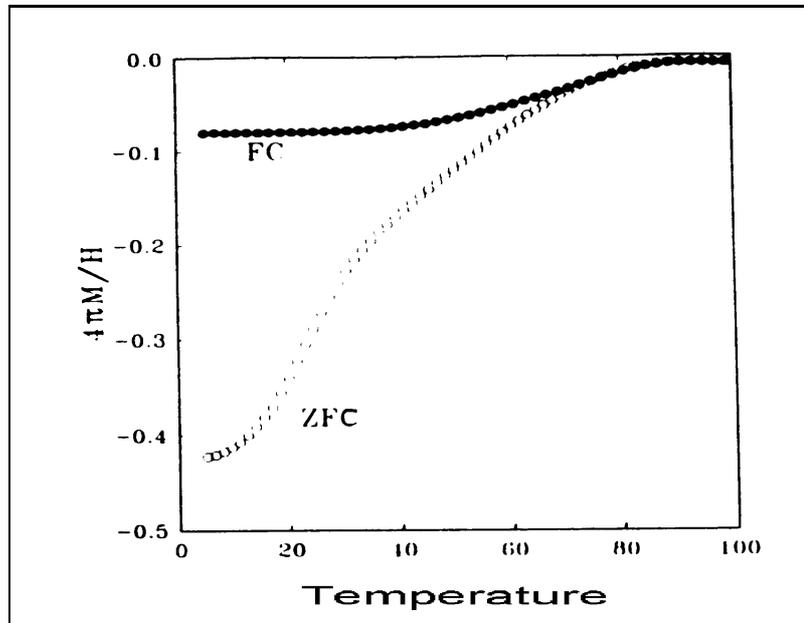
## 2.1.6 A Magnetização DC

### Susceptibilidade Diamagnética DC

As curvas de susceptibilidades  $\chi_{ZFC}$  (*Zero Field Cooled*) e  $\chi_{FC}$  (*Field Cooled*) quando sobrepostas, mostram claramente duas regiões: uma reversível onde as curvas  $\chi_{ZFC}$  e  $\chi_{FC}$  coincidem, e outra irreversível ( $\chi_{ZFC}$  e  $\chi_{FC}$  são distintas). Obtem-se assim os limites de irreversibilidade para vários campos permitindo traçar uma linha de irreversibilidades magnéticas no diagrama

de fases  $H$  vs.  $T$  como na fig. 1.9 .

A figura 2.4 mostra as curvas  $\chi_{ZFC}$  e  $\chi_{FC}$  para uma amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  policristalino.



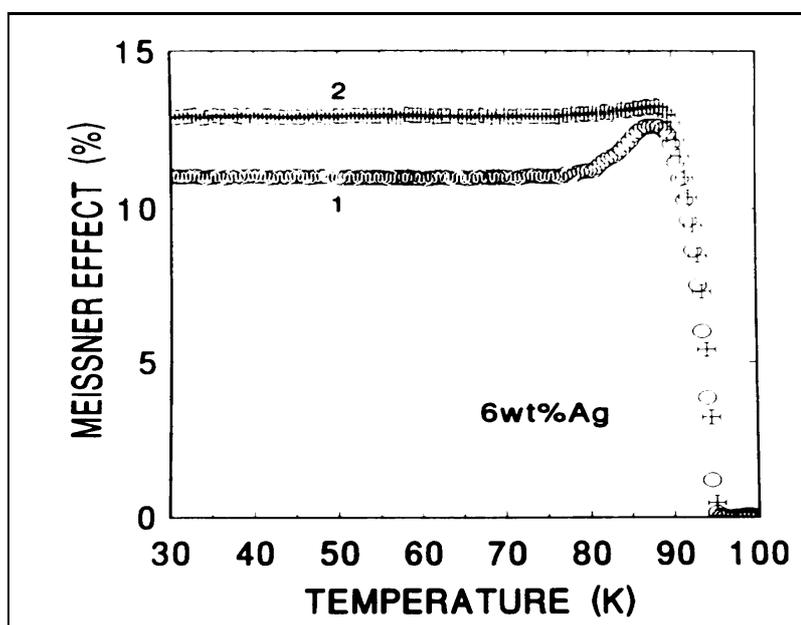
**Fig. 2.4:** Susceptibilidade diamagnética  $\chi_{ZFC}$  e  $\chi_{FC}$ , realizada  $H=500$  Oe, em função da temperatura para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  policristalino [40].

### O pico Meissner

Conforme descrito na seção 1.4.3, pode ser registrada a ocorrência de um “pico” Meissner quando o sistema supercondutor é resfriado rapidamente. A forma e a intensidade do pico Meissner, que ocorre nas medidas  $FCW$ , depende essencialmente do ciclo térmico da amostra, como verificado por Schaf *e col.* [3] e também por Jung *e col.* [2]. Um simples processo de resfriamento lento da amostra pode reduzir em grande parte e até mesmo eliminar o pico.

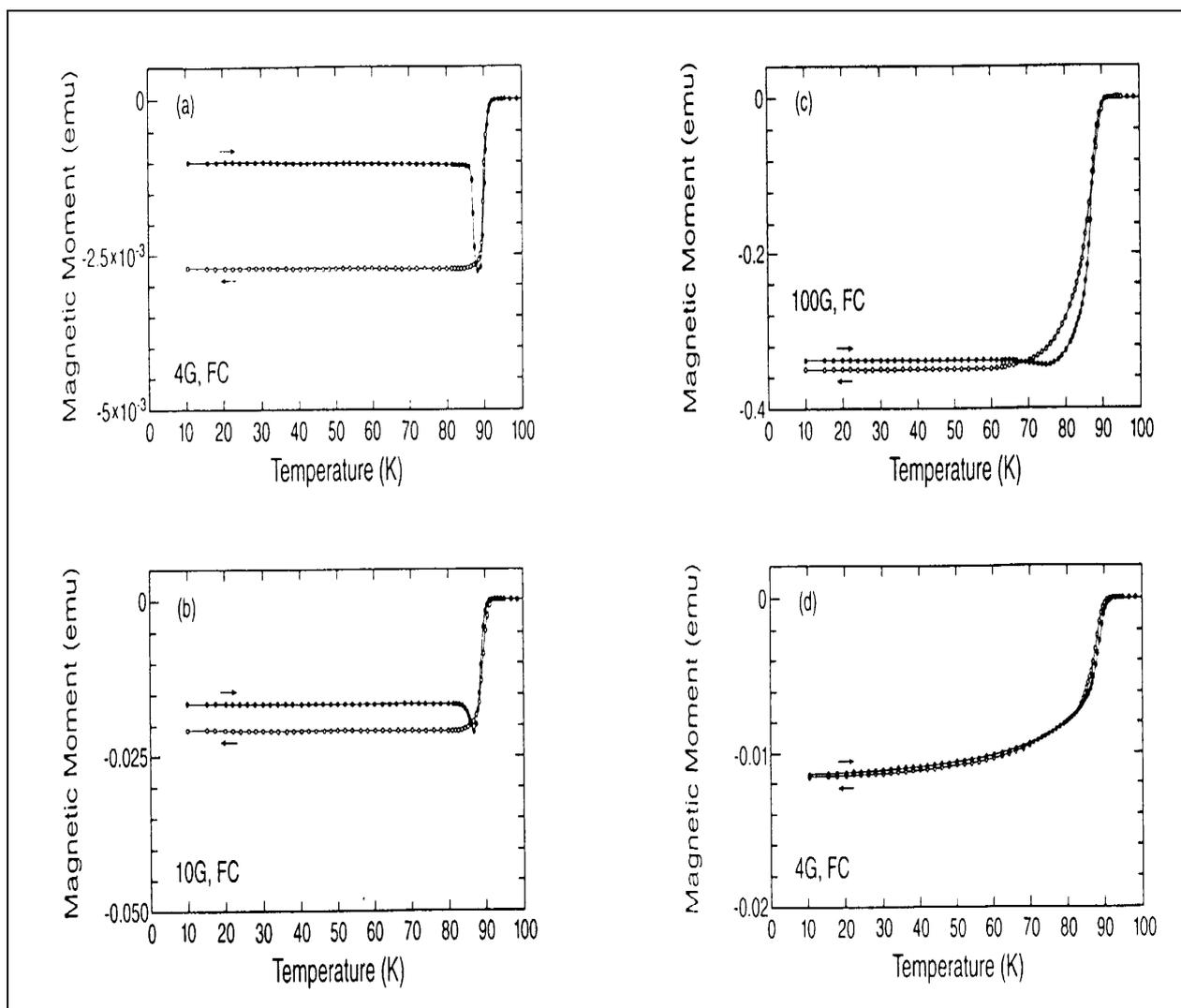
Devido ao excesso de fluxo aprisionado na amostra a resposta diamagnética é reduzida em relação àquela na qual o processo de resfriamento é lento, exceto na região de temperatura próxima ao pico, onde a magnetização aumenta porque o excesso de fluxo é liberado da amostra.

Quando a amostra é aquecida todo o excesso de fluxo (*flux trapped*) é liberado em temperaturas próximas a  $T_c(H)$ , e mais ainda, segundo Schaf [3] o pico Meissner não afeta a determinação de  $T_{irr}(H)$ , devido ao fato de que a temperatura, que caracteriza o pico, é consideravelmente menor que  $T_{irr}(H)$ . A figura 2.5 mostra o comportamento das duas formas de resfriamento.



**Fig. 2.5:** Susceptibilidade FC em função da temperatura em amostra com 6% de Ag [3]. A curva 2 corresponde a um resfriamento feito por etapas, gelando a amostra e aquecendo-a até próximo ao  $T_c$  e gelando a novamente. A curva 1 numa única etapa. Ambos numa taxa de 1 K/s em  $H=20$  Oe.

Jung e col. [2] realizaram medidas de magnetização DC em amostras cerâmicas de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , com processos de resfriamento lento e rápido em taxas de 0.05 – 0.1 K/min e 3 – 4 K/min respectivamente (fig. 2.6-a,b e c) e seqüencialmente repetiram estes procedimentos para uma amostra que não foi sinterizada (fig. 2.6-d). Como resultado a amostra não sinterizada não apresentou o pico Meissner, o que é uma forte evidência experimental de que a origem do pico é de natureza puramente intergranular.



**Fig. 2.6:** Medidas de magnetização FC em função da temperatura no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  [2]. As curvas FCC foram resfriadas lentamente e as FCW realizadas com resfriamento rápido. Observe a diferença entre as curvas “(a)” amostra sinterizada e “(d)” amostra em que não foi realizada a sinterização.

### 2.1.7 Relaxação Temporal

Uma das características da dinâmica de vórtices dos supercondutores óxidos é a relaxação temporal da magnetização.

Desde a verificação da relaxação magnética nos supercondutores de alta  $T_c$  [1] um número muito grande de pesquisas nessa área tem sido desenvolvido.

Nos supercondutores do tipo II em estado de não equilíbrio, o flux creep (movimento das linhas de fluxo pelo processo de ativação térmica), descrito na seção 1.2.3, faz com que o decaimento das correntes críticas persistentes tenha uma forma logarítmica. Este efeito foi observado primeiramente por Kim *e col.* [41], e explicado em termos da teoria do flux creep de Anderson [10]. Kim *e col.* assumiram que o mecanismo de decaimento é devido ao movimento termicamente ativado dos feixes de linhas de fluxo auxiliado pela força de Lorentz.

As medidas de relaxação magnética, tanto na presença de campo aplicado<sup>2</sup> como no caso da magnetização remanente<sup>3</sup> obedecem a eq.(2.1):

$$M_{rem}(t) - M_{rem}(t_0) = f(T, H) \log\left(\frac{t}{t_0}\right) \quad (2.1)$$

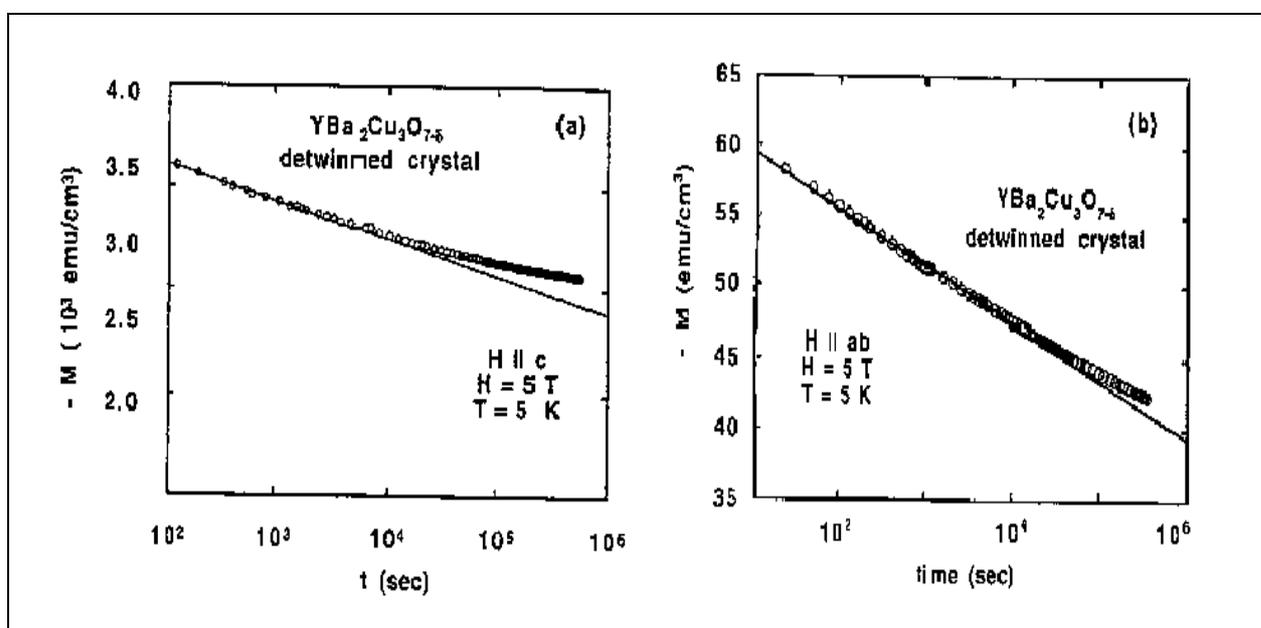
Esta equação pode ser obtida através da teoria de Anderson citada acima e levando em conta conceitos de creep coletivo proposto por Feigel'man *e col.* [42] que prevêem a existência do decaimento logarítmico não linear.

Na figura 2.7 abaixo mostramos a magnetização como função do tempo para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  monocristalino sem maclas, onde há claramente o desvio da linearidade da curva [43].

---

<sup>2</sup> Procedimento análogo ao usado numa medida ZFC, onde após o equilíbrio térmico, aplica-se um campo magnético medindo-se a seguir a magnetização em função do tempo.

<sup>3</sup> Procedimento análogo ao usado numa medida FC, após o equilíbrio térmico, remove-se o campo aplicado e mede-se a magnetização remanente em função do tempo.



**Fig. 2.7:** Relaxação magnética temporal do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  sem maclas em escala semi-log para campo aplicado: (a) paralelo ao eixo  $\hat{c}$  e (b) paralelo ao plano  $\hat{ab}$  do cristal. A linha sólida representa o ajuste linear esperado pelo modelo do flux creep clássico [43].

## 2.2 Compósitos Não-Randômicos $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$

Cedidos por S.Reich *e col.* [44] do Instituto Weizmann de Israel, os compósitos metal-supercondutor cerâmico não-randômicos (“*Nonrandom Ceramic superconductor-metal composites, NRMSC*”) são microgrãos de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  revestidos com filme fino de prata.

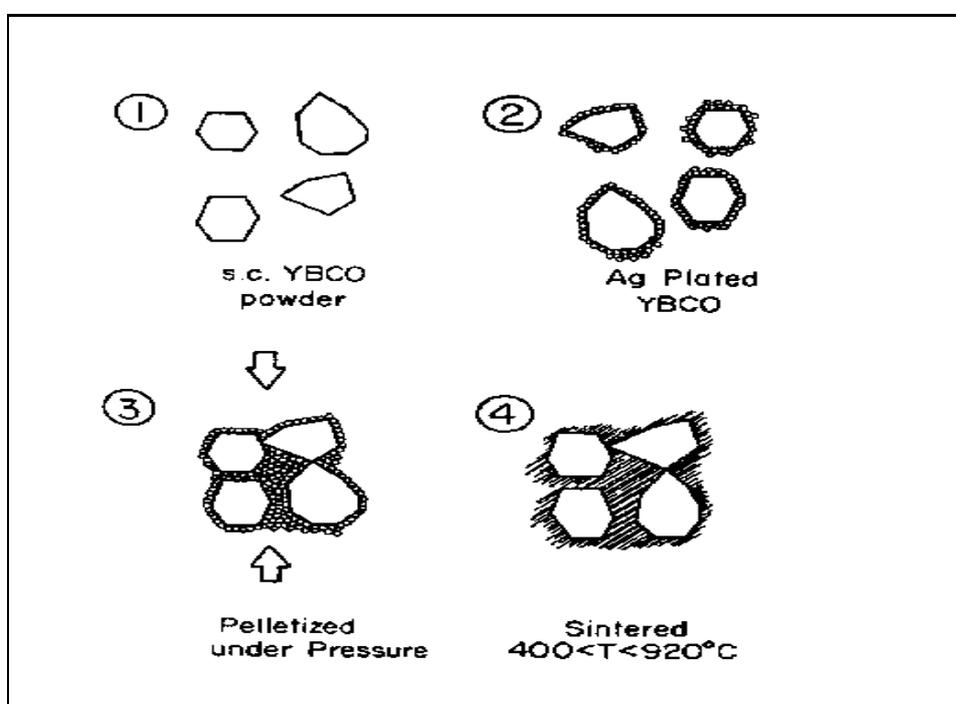
O  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  na forma pulverizada, com grãos de tamanhos entre 1 e 20  $\mu m$ , é obtido por processos convencionais.

O recobrimento destes grãos pela prata é feito mediante um processo de deposição química, onde o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  pulverizado é adicionado a uma solução aquosa composta por:  $AgNO_3$ ,  $NH_4NO_3$ ,  $NaOH$  e  $C_{12}H_{22}O_{11}$  com ácido tartárico, preparado na proporção adequada. Em poucos minutos os grãos de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  são recobertos por uma camada de prata cuja espessura pode ser controlada. A solução é então filtrada e os grãos são lavados várias vezes com etanol, após são secados ao ar e prensados na forma de pastilhas, sob uma pressão de 10  $Ton/cm^2$

A sinterização da pastilha é feita a  $920^{\circ}C$  durante 3 horas, após a temperatura é reduzida passando lentamente pela transição tetragonal-ortorrômbica em fluxo contínuo de oxigênio.

As pastilhas possuem forma cilíndrica, ambas com dimensões de altura e diâmetro  $\approx 5mm$  de forma que todas as amostras tenham a mesma massa, e que os efeitos demagnetizantes sejam aproximadamente os mesmos em todas as amostras. A amostra utilizada nas medidas de resistividade possui altura de 1.85mm e diâmetro de 5mm.

A representação esquemática do processo de preparação das amostras é mostrado na figura 2.8, segundo Reich *e col.* [44]. A morfologia resultante é uma estrutura contínua de grãos de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  interfaceados pelo filme de prata.



**Fig. 2.8:** Esquema dos processos de preparação das amostras de compósitos supercondutores não randômicos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  [44].

## Capítulo 3

# A Técnica de Medida

### 3.1 Magnetômetro: Medidas de Magnetização DC

Medidas de magnetização são convenientes para a caracterização de novos materiais pois tal tipo de medida não exige contato físico com a amostra, evitando assim, por exemplo, problemas relacionados a contatos elétricos, como ocorre em experiências de transporte elétrico.

#### 3.1.1 A Estrutura do Magnetômetro

Utilizado nas medidas de magnetização-DC, o magnetômetro de amostra vibrante (Foner), representado na figura 3.1, tem uma sensibilidade de aproximadamente  $10^{-4} \text{ emu}$  numa faixa de campo de 0 a 8 kOe. A calibração feita com uma amostra padrão de níquel em temperatura ambiente equivale a  $24 \mu\text{V}/\text{emu}$ . Para baixas temperaturas não há uma mudança significativa deste valor, mesmo assim este valor pode ser corrigido para temperaturas baixas com muita precisão.

**Campo Aplicado e Leitura da Magnetização:** Uma fonte de corrente estabilizada alimenta as bobinas do eletroímã, as quais geram o campo magnético na faixa de valores citada acima.

Quatro bobinas de pick-up, que estão presas aos pares na parte central dos pólos do eletroímã, detectam a variação do fluxo magnético provocado pela vibração de pequena amplitude da amostra. Estas bobinas estão conectadas ao detector síncrono (*Lock-IN*), sendo que duas bobinas estão no pólo esquerdo e as outras duas estão no pólo direito do eletroímã, as quais estão ligadas em série.

Um sensor Hall, devidamente posicionado próximo a amostra, mede o valor do campo

magnético aplicado, sendo que o sinal deste é diretamente proporcional ao valor do campo, com uma calibração de  $0.667 \text{ mV/kOe}$ .

Um gerador senoidal acoplado a um transdutor faz vibrar a haste de suporte da amostra, e também está ligado ao detector síncrono como sinal de referência. A frequência de vibração da amostra é de aproximadamente  $27.7 \text{ Hz}$  e a amplitude é mantida fixa. Assim o sinal induzido nas bobinas de pick-up é proporcional a magnetização.

**Isolamento Térmico e a Temperatura:** O criostato é composto por um dewar superisolado e um anticriostato. A isolação do dewar consiste de camadas de folhas de cobre isoladas da parede externa e entre si por alto-vácuo da ordem de  $10^{-5} \text{ torr}$ .

No dewar é então colocado hélio ou nitrogênio líquido, para baixar a temperatura do sistema. Após ser feito vácuo no anticriostato uma atmosfera rarefeita de gás hélio é introduzida em seu interior, a qual se faz necessária para um bom acoplamento térmico entre o dewar e o porta amostra.

O sensor térmico é um sensor tipo Carbon-Glass, o qual apresenta um pequeno sinal paramagnético, mas está localizado  $3 \text{ cm}$  acima da amostra, onde o seu sinal é essencialmente nulo.

O porta amostra é constituído de folhas  $Al$ , o qual não produz nenhum sinal magnético detectável e ao mesmo tempo é um ótimo condutor térmico, garantindo o acoplamento térmico entre a amostra e o sensor de temperatura.

Quando a taxa de resfriamento do porta amostra for da ordem de  $1 \text{ K/min}$  (lenta), o gradiente de temperatura entre a amostra e o sensor não ultrapassa  $0.01 \text{ K}$ .

**Localização da Amostra:** O porta-amostra localiza-se bem ao centro dos pólos do eletroímã onde o campo magnético é bem homogêneo, e está fixada à extremidade de uma haste de vidro, cuja outra extremidade esta presa ao núcleo do transdutor, como mencionado acima.

A amostra por sua vez é bem centrada entre as quatro bobinas de pick-up de forma a maximizar o sinal lido. Um ajuste fino desta posição é feito em baixas temperaturas, onde a posição escolhida é a de maior sinal magnético.

A leitura dos dados do sensor térmico, do detector síncrono e do sensor Hall é feita através de multímetros *Keitley 195*, os quais enviam o sinal para uma IEEE-488 permitindo assim o

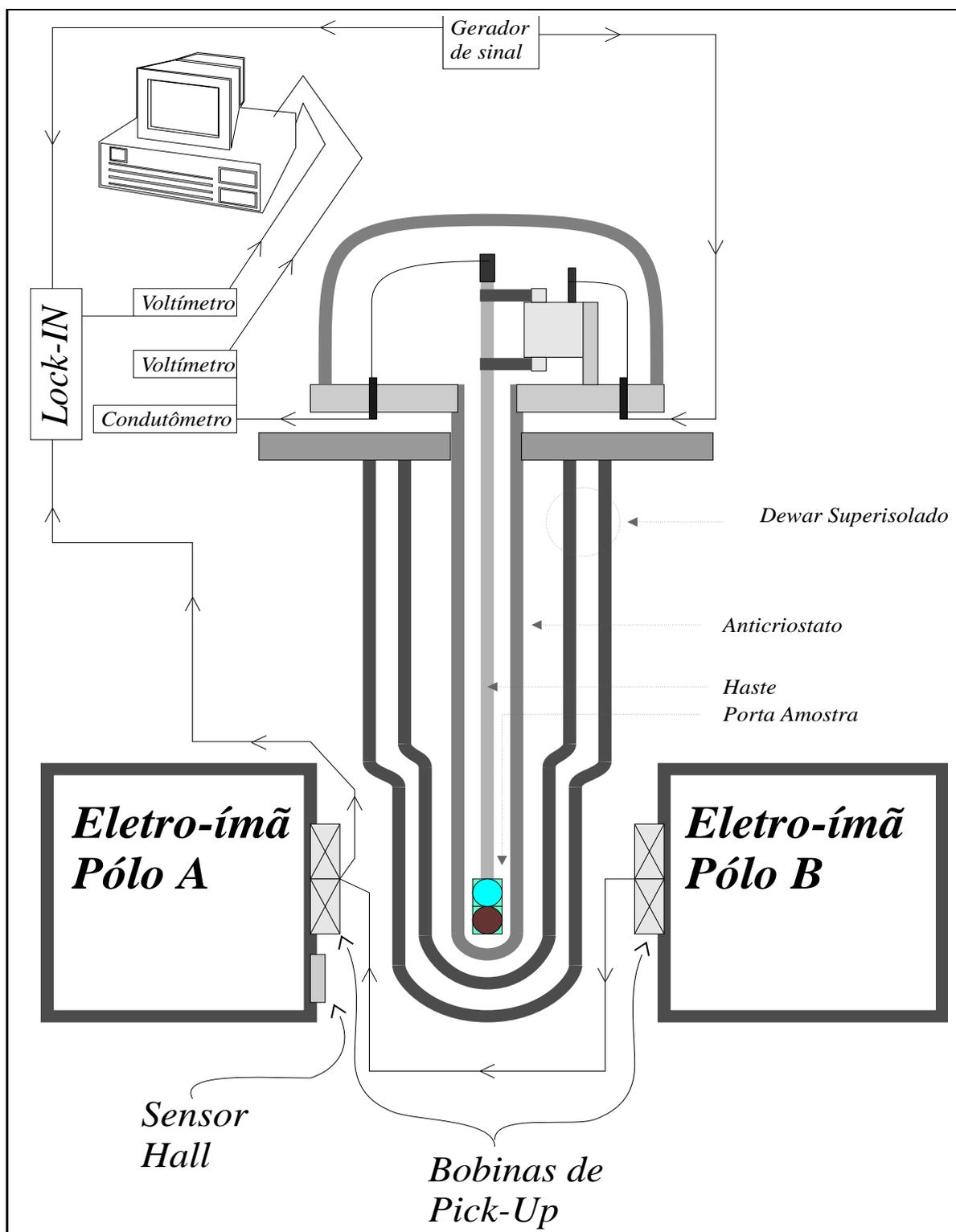
registro dos dados no computador.

### 3.1.2 A Técnica de Medida

Todas as medidas foram realizadas, após um resfriamento com taxa da ordem de  $1\text{ K/sec}$ , durante o aquecimento da amostra com uma taxa de aproximadamente  $0.6\text{ K/min}$ . A técnica para obter o ponto de irreversibilidade consiste em medir as curvas *ZFC* e *FC* respectivamente em seqüência, o que requer um mínimo de ajustes no equipamento possibilitando obter o ponto de irreversibilidade com uma boa precisão.

Resfria-se a amostra em campo nulo e após o equilíbrio térmico aplica-se um campo magnético, ajusta-se a fase do detector síncrono, e durante o aquecimento da amostra mede-se a magnetização *ZFC* em função da temperatura até um limite ligeiramente acima de  $T_c$ . A amostra em seu estado normal, não apresenta mais nenhum sinal diamagnético, apagando a sua história termo-magnética. Novamente a amostra é resfriada sem que se realize qualquer alteração no campo magnético e na fase do detector, permitindo assim a penetração na amostra do campo magnético com a mesma intensidade com a qual foi realizada a medida *ZFC*. Após o equilíbrio térmico, a temperatura começa a subir novamente e é feita a medida de magnetização *FCW* em função da temperatura. Assim os sinais das duas curvas são compatíveis para a análise da linha de irreversibilidade.

O depinning inicial é obtido da mesma curva *FCW*, obtida pelo método descrito acima. Não verificou-se nenhuma diferença que justificasse um congelamento mais rápido da amostra para a obtenção da temperatura do depinning inicial.



**Fig. 3.1:** Representação esquemática do Magnetômetro Foner utilizado nas medidas de magnetização-DC. A posição do sensor Hall esta numa região onde o campo magnético é tão homogêneo quanto o campo na amostra.

## 3.2 Equipamento para Medidas de Magnetoresistividade

Descreveremos rapidamente aqui o equipamento utilizado nas medidas de magnetoresistividade, visto que este sistema foi utilizado somente como uma técnica auxiliar para uma comparação e melhor compreensão dos dados obtidos com a magnetização DC a qual foi nossa técnica de medida principal. Detalhes sobre este equipamento podem ser obtido da referência [45].

A técnica utilizada para medidas de resistividade é o de quatro pontas. Os contatos utilizados na amostra foram contatos de pressão, manufaturados com folhas de bronze fosforoso, os quais além de realizarem os acoplamentos elétricos, mantêm a amostra fixa no porta amostra e não se magnetizam.

O porta amostra é constituído de um suporte de cobre no qual estão acoplados o sensor térmico (resistência de platina com precisão de  $1\text{ mK}$ ) e um aquecedor, que permite uma variação controlada da temperatura da amostra. Este porta amostra é fechado com uma câmara de cobre, no interior do qual é feito vácuo durante as medidas.

As medidas são feitas com a técnica de corrente AC. O sinal de tensão na amostra é amplificado em um transformador de baixo ruído e enviado ao canal 'A' de um Lock-IN, enquanto o canal 'B' faz a leitura da tensão correspondente a uma resistência ajustável através de uma década resistiva automática.

Quando o sinal em 'A' se iguala ao sinal de 'B' a resistência da amostra é proporcional ao valor ajustado na década (esta é a técnica de nulo) e o *Lock-IN* detecta um sinal nulo, pois está operando no modo *A-B*, indicando o exato momento de registro dos dados.

Um solenóide envolve a câmara (a qual encobre o porta amostra) para geração de um campo magnético homogêneo na amostra.

## Capítulo 4

# Resultados Experimentais

### 4.1 Introdução

Medidas de efeito Meissner no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  com excesso de fluxo aprisionado tem-se mostrado capazes de separar os efeitos resultantes das dinâmicas dos vórtices intragranulares e intergranulares, pelo menos para campos magnéticos bastante baixos ( $H < H_{c1}(T)$ ).

Para investigar a dinâmica dos vórtices intergranulares utilizamos cinco amostras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ , sendo uma pura e quatro compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ , com as seguintes quantidades de  $Ag$  (relativas ao peso da amostra): 3.7%, 8.6%, 16.1%, 20.7%. Foram feitas medidas de blindagem “ZFC” e de efeito Meissner “FC” em todas amostras, em baixos valores de campos magnéticos  $H < 120 Oe$ . As amostras foram produzidas por S. Reich *e col.* [44] do Instituto Weizmann de Israel, conforme descrito na seção 2.2 .

Com estes resultados foi possível obter a linha de irreversibilidades magnéticas e a linha de depinning inicial em baixos campos aplicados. Esta região de baixos campos, como já foi explicado, é dominada essencialmente pela dinâmica dos vórtices intergranulares de Josephson. Também realizamos medidas de transporte num dos compósitos, afim de comparar e até mesmo comprovar a eficiência dos resultados obtidos pela magnetização DC.

### 4.2 Medidas de Magnetização DC

As medidas de magnetização DC fornecem resultados a partir dos quais podemos obter um melhor entendimento da dinâmica dos vórtices de Josephson, permitindo uma melhor compreensão da origem do seu aprisionamento e depinning.

Curvas *FC*, quando realizadas nas condições termodinâmicas impostas na seção 1.4.3 ,

forneem um resultado muito importante, que estabelecem uma linha divisória no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  chamada “linha de depinning inicial”,  $T_{dep}(H)$ . Esta linha  $T_{dep}(H)$  separa o diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  em duas regiões: uma de baixas temperaturas onde o fluxo intergranular esta totalmente bloqueado devido ao pinning causado pelas junções Josephson, e uma região de temperaturas mais altas onde o pinning não é tão eficaz, devido aos desacoplamentos das junções Josephson e à ativação térmica dos vórtices (Ref. Sec. 1.4).

Curvas de efeito de blindagem do campo magnético  $ZFC$ , juntamente com as curvas de expulsão do fluxo magnético  $FC$  (efeito Meissner) permitem-nos obter o limite de irreversibilidade. Este limite de irreversibilidade nos mostra o início de uma região no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  a partir da qual as respostas magnéticas  $ZFC$  e  $FC$  coincidem, ou seja, a distribuição do fluxo tem completa liberdade de movimentação dentro da amostra, permitindo que estes fluxóides cheguem rapidamente a um estado de equilíbrio.

A figura 4.1 mostra algumas curvas de magnetização  $FC$  e  $ZFC$  para duas amostras com campos magnéticos escolhidos arbitrariamente, mostrando claramente que há uma região próxima ao  $T_c(H)$  na qual as duas curvas se sobrepõe<sup>1</sup>.

Na figura 4.2 pág. pagereffig-RE-soZFC mostramos dois conjuntos de curvas  $ZFC$ , para diversos campos aplicados relativos a uma amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e a um compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 16.1% de peso em prata. Observamos que, até o limite de campo magnético aplicado  $H < 120 Oe$ ), a resposta diamagnética (efeito blindagem) sempre resulta num aumento da magnetização com o aumento do campo aplicado. Porém com o aumento da quantidade de prata no compósito ocorre uma grande redução da blindagem magnética. Também verificamos o alargamento da transição com o aumento do campo e da quantidade de prata. Estes resultados podem ter a mesma origem, que é o enfraquecimento das correntes de blindagem na amostra devido à redução do número de centros de aprisionamento efetivos do fluxo de Josephson nas regiões próximas ao  $T_c(H)$ .

A seguir mostramos as figuras das medidas de efeito Meissner. A figura 4.3 mostra curvas de efeito Meissner, para as amostras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro e para o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 20.7% de prata. Note-se que, com o aumento do campo magnético aplicado temos um aumento do efeito Meissner, mas o acréscimo de prata ao sistema supercondutor resulta numa

---

<sup>1</sup> Note-se que todas as curvas de magnetização estão em unidades arbitrárias, mas normalizadas à mesma escala.

redução do efeito. Esta redução diferencial do efeito Meissner com o aumento da quantidade de prata pode ser melhor observada na figura 4.4 onde a diferença no momento Meissner entre a amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com menor quantidade de prata (3.7% de prata) é realmente grande. O valor do campo aplicado é aproximadamente<sup>2</sup> o mesmo para todas as medidas  $H \approx 20 Oe$ . Os dados das figuras 4.4 e 4.2 indicam que o fluxo magnético localiza-se mais facilmente nas regiões intergranulares preenchidas com prata do que na amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro.

Se o efeito Meissner diminui com o aumento da quantidade de prata, então as regiões intergranulares com mais prata podem manter uma quantidade maior de fluxo magnético (diminuição da magnetização) na amostra, do que no sistema  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro, e isto ocorre porque o excesso de prata aumenta volumetricamente a região normal da junção Supercondutor-Normal-Supercondutor (*SNS*).

Observamos também que no compósito com 16.1% de prata, tanto o efeito Meissner quanto o efeito blindagem são relativamente menores que o compósito com 20.7% de prata, escapando à regra em que quanto maior a quantidade de prata menor é o efeito Meissner. Possivelmente estes efeitos magnéticos reduzidos, obtidos desta amostra com 16.1% podem ter origem na deterioração das fronteiras dos grãos, talvez devido as suas condições de armazenamento.

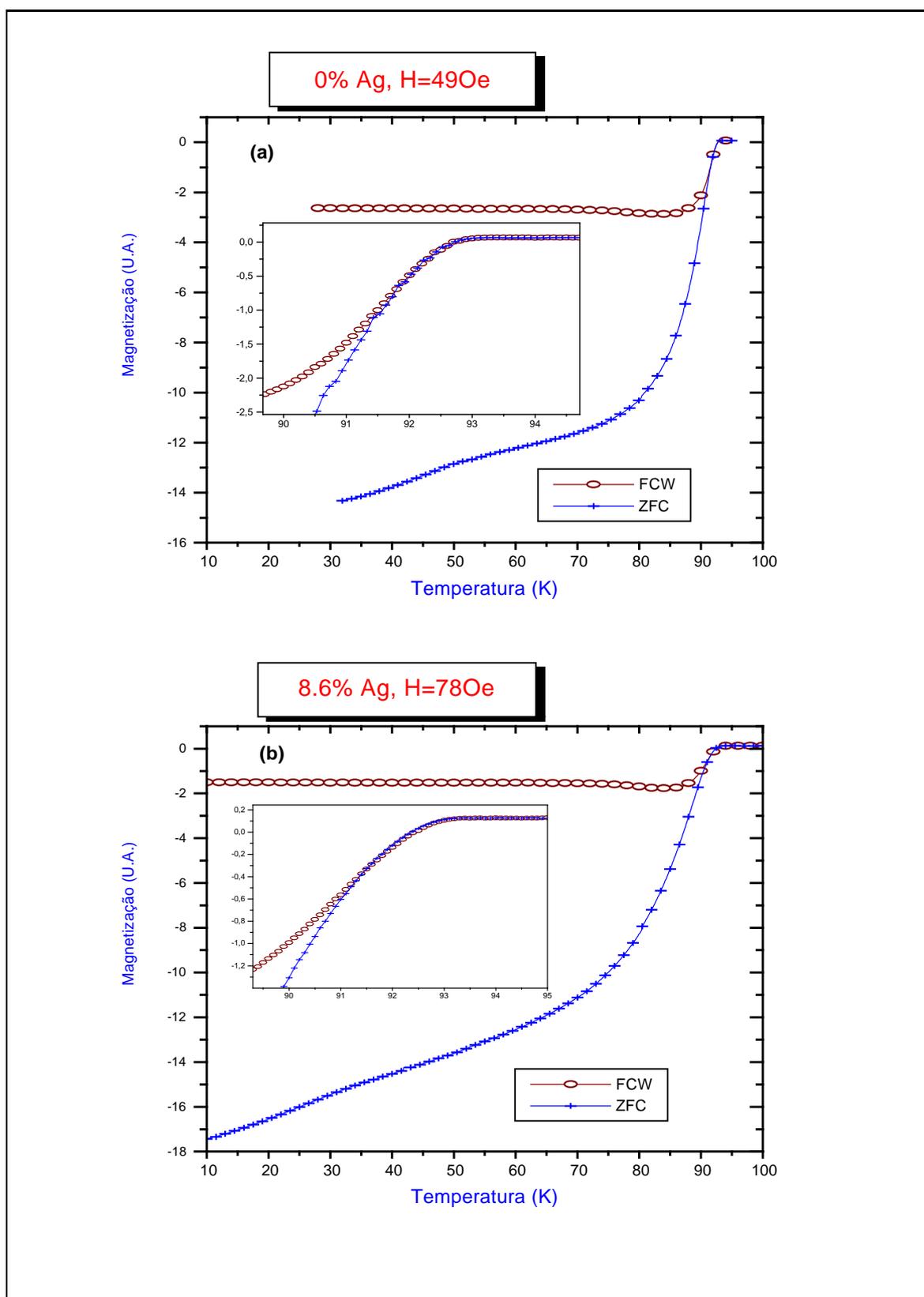
Para cada uma destas amostras obtivemos a linha de depinning inicial  $T_{dep}(H)$  e a linha de irreversibilidades magnéticas  $T_{irr}(H)$ . Estas linhas foram obtidas de um conjunto de doze valores de campo em média para cada amostra. No caso da linha de depinning inicial, este valor corresponde à temperatura em que começa a ocorrer liberação do excesso de fluxo magnético, ou seja, um aumento da resposta magnética durante o aquecimento da amostra, que é bem definido nas curvas *FCW*. Já para a linha de irreversibilidade tomamos o limite a partir do qual as curvas de magnetização *ZFC* e *FC* (ver seção 3.1.2) coincidem, e pode ser facilmente determinado a partir da diferença (subtração) das duas curvas<sup>3</sup>. Assim,  $T_{irr}(H)$  em uma dada curva de diferença é o valor de temperatura no qual a curva *ZFC-FC* abandona a linha de base (*ZFC-FC=0*).

<sup>2</sup> Aproximadamente falando porque é difícil estabelecer valores de campo magnético exatamente iguais em todas as medidas, num sistema que não é informatizado. Uma vez aplicado o campo magnético seu valor não pode ser reduzido, pois tal procedimento mudaria a história termomagnética da amostra, alterando a configuração dos gradientes de fluxo magnético em seu interior.

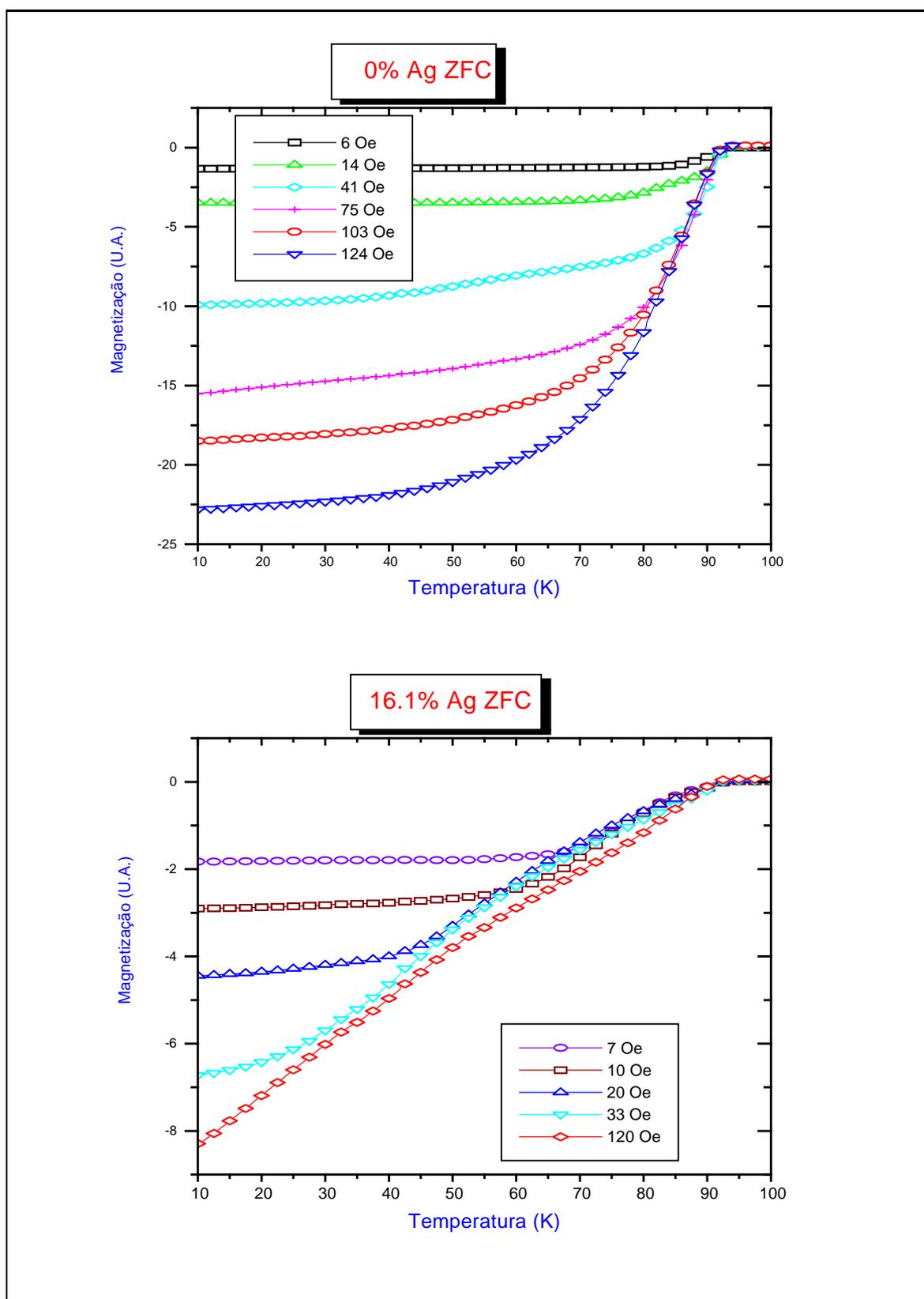
<sup>3</sup> A curva resultante será chamada simplesmente de *diferença ZFC-FC* neste texto.

A figura 4.5 mostra algumas curvas de diferença *ZFC-FC* para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro em três valores de campos magnéticos. As curvas da figura 4.5 foram posicionadas de modo a tornar visível o deslocamento da  $T_{irr}(H)$  com o aumento do campo magnético aplicado.

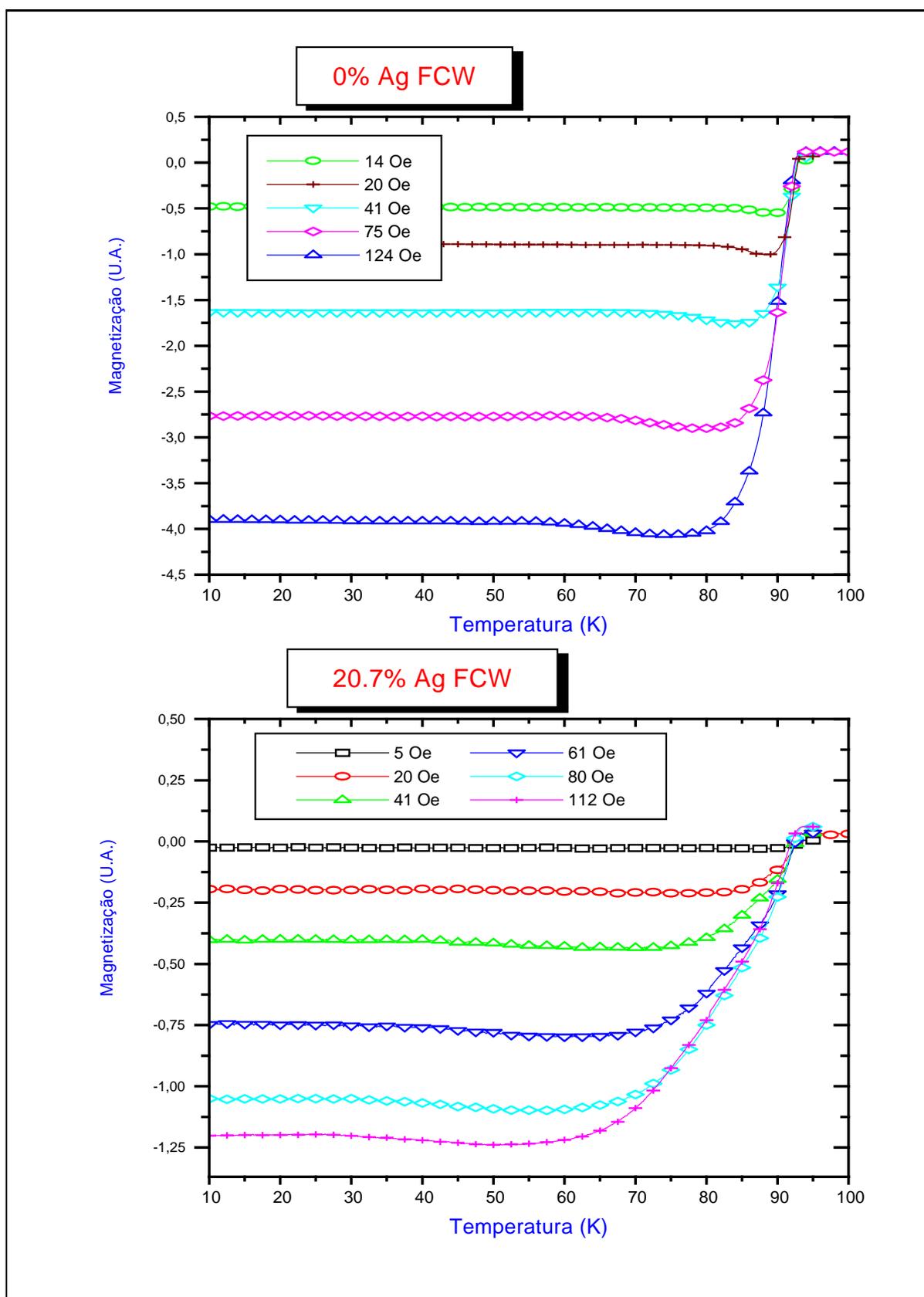
Na figura 4.6 temos algumas curvas *FCW* para as amostras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro e para os compósitos. Uma seta indica a temperatura do início do depinning efetivo dos fluxóides de Josephson,  $T_{dep}(H)$ .



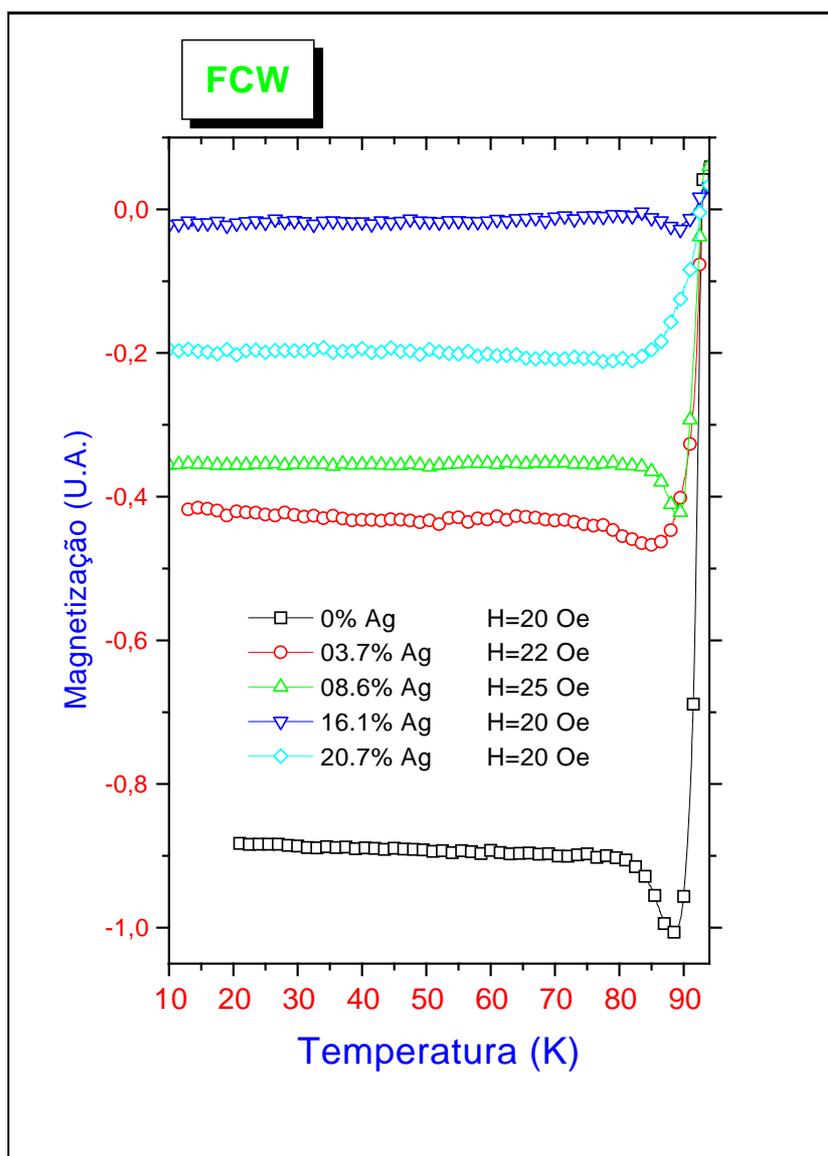
**Fig. 4.1:** Magnetização ZFC e FCW para (a) o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  em campo aplicado de 49 Oe e (b) para o composto  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 8.6% em campo aplicado de 78 Oe. Note na região próxima ao  $T_c$  a sobreposição das curvas indicando existência de uma faixa magneticamente reversível.



**Fig. 4.2:** Magnetização ZFC na amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro (em cima) e para  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 16.1% de prata (em baixo) para diversos campos aplicados. Observe o alargamento da transição com o aumento do campo magnético e a redução do efeito de blindagem com a presença de prata no sistema.



**Fig. 4.3:** Magnetização FCW para amostras de 0 e 20.7% de Ag em peso, para vários campos aplicados. Note o aumento do efeito Meissner com o campo aplicado e o alargamento da transição com a presença de prata no sistema supercondutor.



**Fig. 4.4:** Magnetização FCW em  $H \approx 20$  Oe para os compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  em várias concentrações de Prata. Observe o aumento do efeito Meissner com a redução da quantidade de prata, exceto para o compósito com 16.1% de prata.

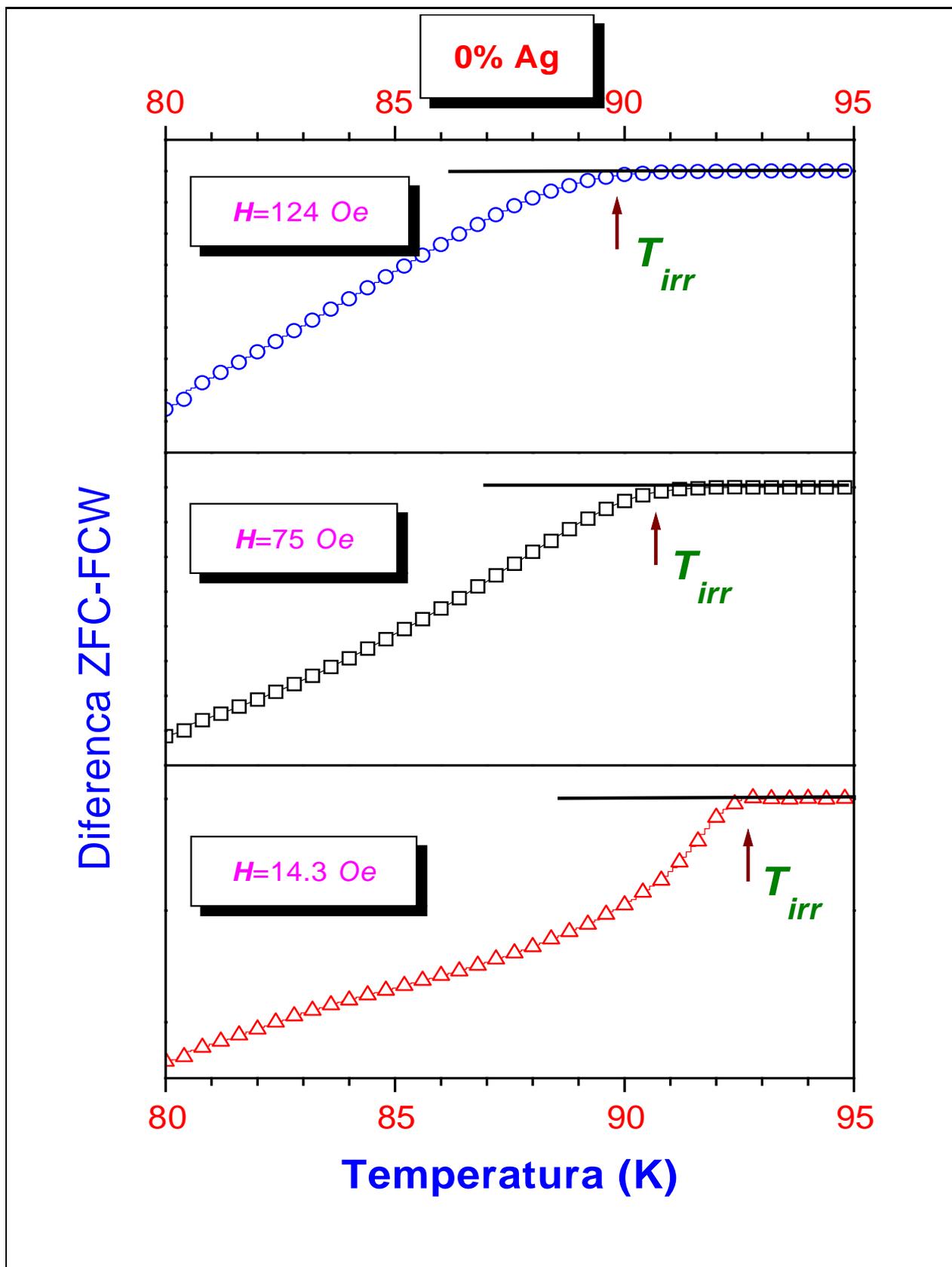
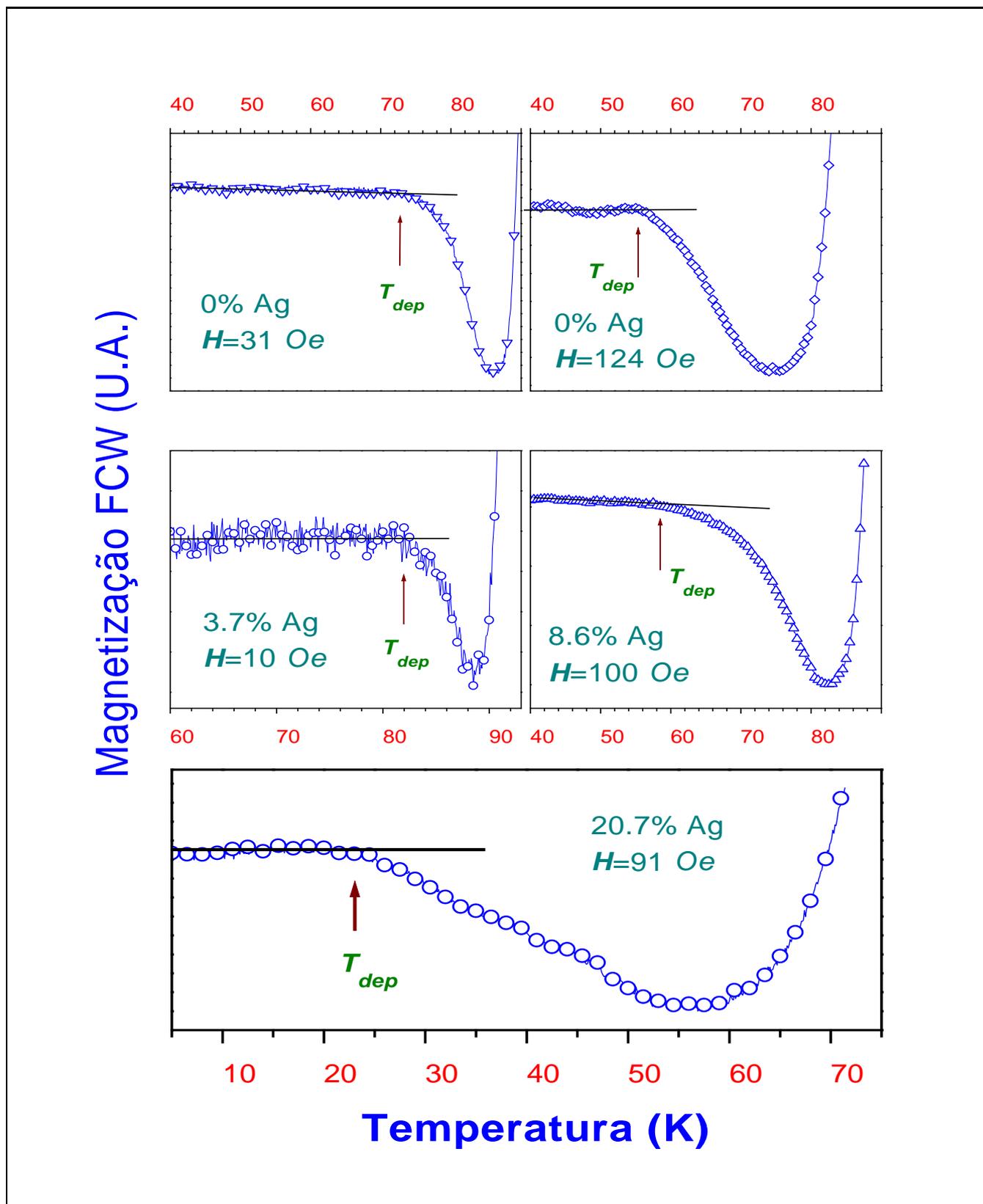


Fig. 4.5: Diferenças ZFC-FCW para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  em três valores de campo magnético aplicados. Note o deslocamento da temperatura  $T_{irr}(H)$ , para regiões de mais baixas temperaturas com o aumento do campo aplicado, de baixo para cima. A densidade média pontos foi de 20 pt/K.

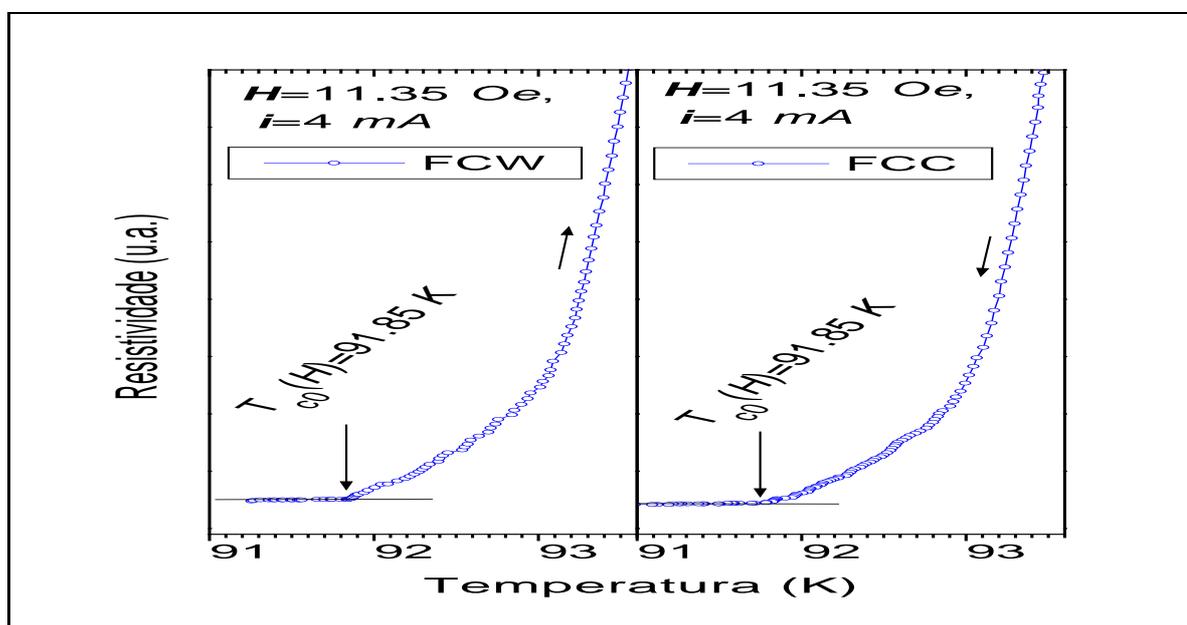


**Fig. 4.6:** Curvas FCW com uma seta indicando a temperatura do início do depinning dos fluxóides de Josephson. Note, no topo da figura os dois gráficos da amostra de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  puro, o deslocamento da temperatura  $T_{dep}(H)$  para regiões de temperaturas mais baixas com o aumento do campo aplicado. A densidade média de pontos foi de 20 pt/K.

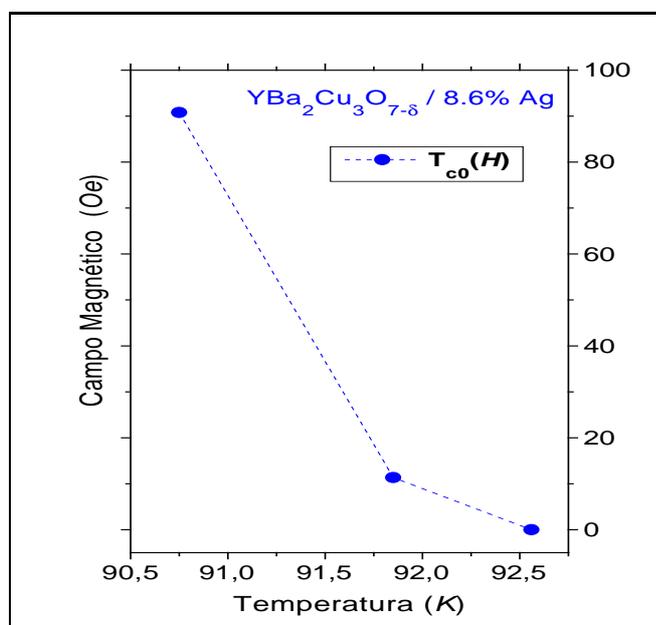
### 4.3 Medidas de Magnetoresistividade

Medidas de transporte fornecem resultados imediatos de características que são praticamente impossíveis de se obter com magnetização, tais como o valor de  $T_{c0}(H)$  ou de  $T_{cJ}(H)$  de amostras granulares. Estes valores permitem um melhor entendimento da supercondutividade intergranular na região próxima ao  $T_c$ , tais como a formação da rede de junções Josephson e a influência do transporte de correntes através dessa rede.

Realizamos medidas de magnetoresistividade em campo aplicado de  $0$ ,  $11$  e  $90$  Oe no compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  com  $8.6\%$  em peso de prata, para uma corrente de transporte de  $4$  mA aplicada na amostra. Em temperatura ambiente a amostra apresentou uma resistividade  $\rho(300\text{ K}) \approx 0.5\text{ m}\Omega.\text{cm}$ . Para campo aplicado de  $11$  Oe, as medidas de  $\rho$  foram realizadas durante o resfriamento (FCC) e também no aquecimento (FCW) da amostra. A taxa de variação de temperatura, tanto nas curvas FCW como FCC foram de  $5$  K/h. A figura 4.7 mostra curvas de resistividade em campo aplicado de  $11$  Oe, note a seta indicando a temperatura  $T_{c0}(H)$ , e que, dentro do erro experimental, esta temperatura é a mesma. O valor de  $T_{c0}(H)$  se desloca para temperaturas mais baixas com o aumento do campo aplicado, como pode ser visto na figura 4.8. Como já foi discutido na seção 1.4.4, a linha  $T_{c0}(H)$  como mostrada na figura 4.8 divide o diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ , para temperaturas inferiores a  $T_c(H)$ , em duas regiões: coerente e paracoerente. No limite  $T_{c0}(H)$  há pelo menos  $25$  a  $30\%$  de grãos acoplados, os quais devem ter fase comum para o parâmetro de ordem supercondutor.



**Fig. 4.7:** Resistividade para o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 8.6% de prata em campo aplicado de 11Oe, indicando a temperatura característica  $T_{c0}(H)$ , em corrente aplicada de 4 mA.



**Fig. 4.8:** Linha  $T_{c0}(H)$  para o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 8.6% de prata com corrente de transporte de 4 mA. Note o deslocamento da linha para regiões de temperatura mais baixa com o aumento do campo aplicado. A linha tracejada é apenas um guia para uma melhor visualização.

## 4.4 A linha de Depinning Inicial

A figura 4.6 mostra um conjunto de medidas *FCW* nas quais esta indicada a temperatura de depinning inicial do fluxo de Josephson. Estas temperaturas  $T_{dep}(H)$  quando plotadas no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  dão origem à linha de depinning inicial como mostrado nas figuras 4.9 e 4.10 . As figuras ‘4.9-a,b,c,d’ e ‘4.10’ apresentam os pontos experimentais do depinning inicial,  $T_{dep}(H)$ , respectivamente para os compósitos com 0, 3.7, 8.6, 16.1 e 20.7 % de prata, sendo que as linhas contínuas representam os ajustes destes pontos de acordo com a seguinte equação:

$$\left(\frac{H}{\alpha}\right)^y = 1 - \frac{T_{dep}(H)}{T_{dep}(0)} \quad (4.1)$$

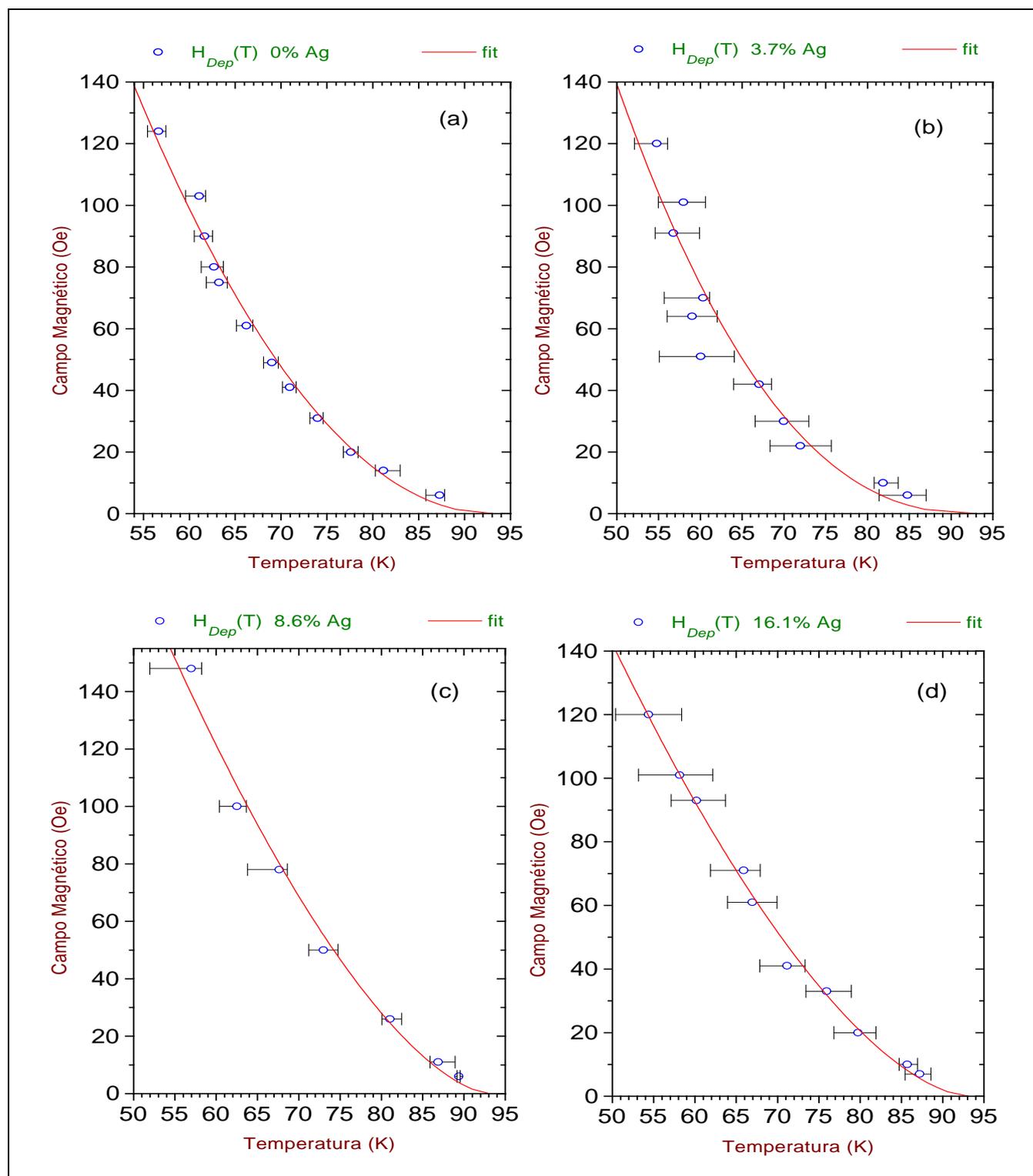
onde  $\alpha$ ,  $y$  são ajustados para cada amostra. O parâmetro  $T_{dep}(0)$  é uma extrapolação da temperatura de depinning para a região de campo nulo na qual começaria o depinning intergranular. Impomos como limite superior o valor  $T_c$  ao parâmetro de ajuste  $T_{dep}(0)$ . Em todos os casos obtivemos  $T_{dep}(0)$  aproximadamente igual a  $T_c$  como sendo o melhor ajuste. Obviamente este valor de  $T_{dep}(0) \sim T_c$  não está de acordo com nossas interpretações, pois esperaríamos que ele fosse inferior ao valor de  $T_c$ . A origem do desvio do valor de  $T_{dep}(0)$  se deve ao fato de não termos realizado medidas na faixa de campos menores que 5 Oe. Cabe ressaltar que não há nenhuma justificativa teórica para a utilização da eq. 4.1. Apenas mostramos que há uma possível relação entre a  $T_{dep}(H)$  e uma lei de potências no campo magnético aplicado.

Os valores de  $\alpha$  e  $y$  obtidos nos ajustes das curvas de depinning estão na tabela abaixo:

% Ag	0	3.7	8.6	16.1	20.7
$\alpha(kOe)$	0.81	0.86	0.62	0.49	0.20
$y$	0.493	0.421	0.633	0.614	0.477

Na figura 4.11 apresentamos os ajustes (fits) das linhas de depinning inicial para todas as amostras, utilizadas neste trabalho, juntos num só diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ .

O que se pode notar na fig. 4.11 é que dentro do erro experimental parece não haver uma diferença significativa das linhas de depinning com a variação da quantidade de prata nas amostras utilizadas, exceto para a amostra com 20.7 % de peso em prata, a qual mostrou um forte desvio para temperaturas mais baixas.



**Fig. 4.9:** O diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  com as linhas de depinning para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e para os compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 3.7, 8.6, 16.1 % respectivamente. A linha contínua nos gráficos é o ajuste de acordo com a eq. 4.1.

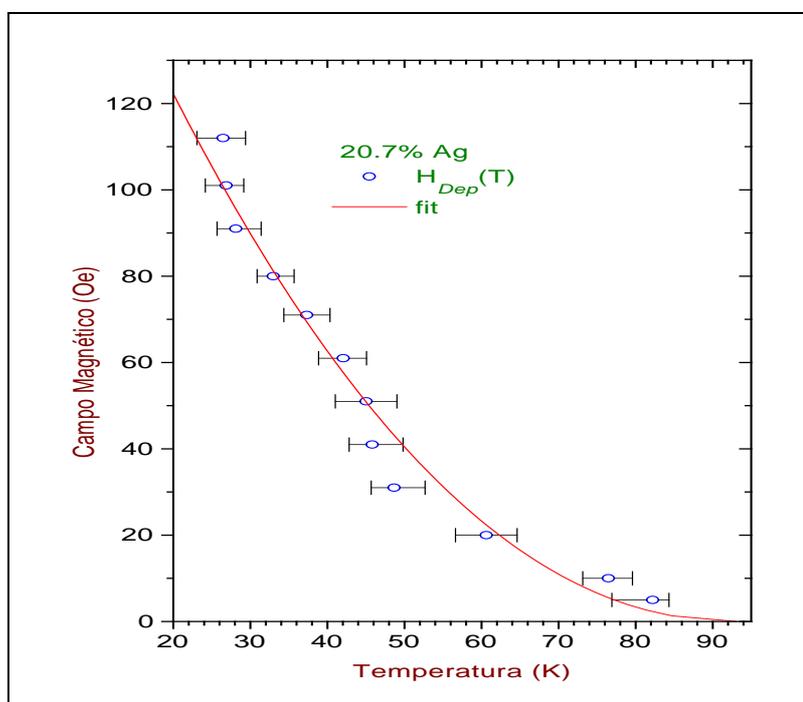


Fig. 4.10: Linha de depinning inicial para o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 20.7 % de prata. A linha contínua é o ajuste de acordo com a eq. 4.1.

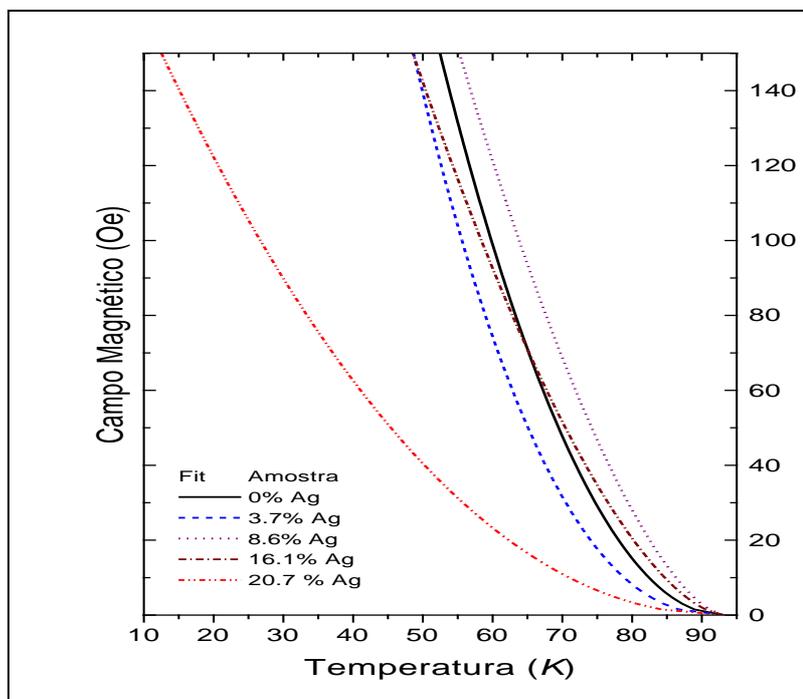


Fig. 4.11: Ajustes das linhas de Depinning inicial para todas as amostras. Note o deslocamento da linha para a amostra com 20.7 % .

## 4.5 A Linha de Irreversibilidades Magnéticas

A figura 4.5 mostra algumas diferenças ZFC-FC, onde estão indicadas as respectivas temperaturas de irreversibilidade magnética  $T_{irr}(H)$ , obtidos conforme explicado na seção 4.2. Nas figuras ‘4.12-a,b,c,d’ e 4.13 mostramos o diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  com as linhas de irreversibilidade para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e os compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$ . com respectivamente 3.7, 8.6, 16.1, e 20.7 % de peso em prata.

Todas as curvas  $T_{irr}(H)$  nas figuras 4.12 e 4.13 ajustam-se bem a funcionalidade tipo ‘de Almeida-Thouless’:

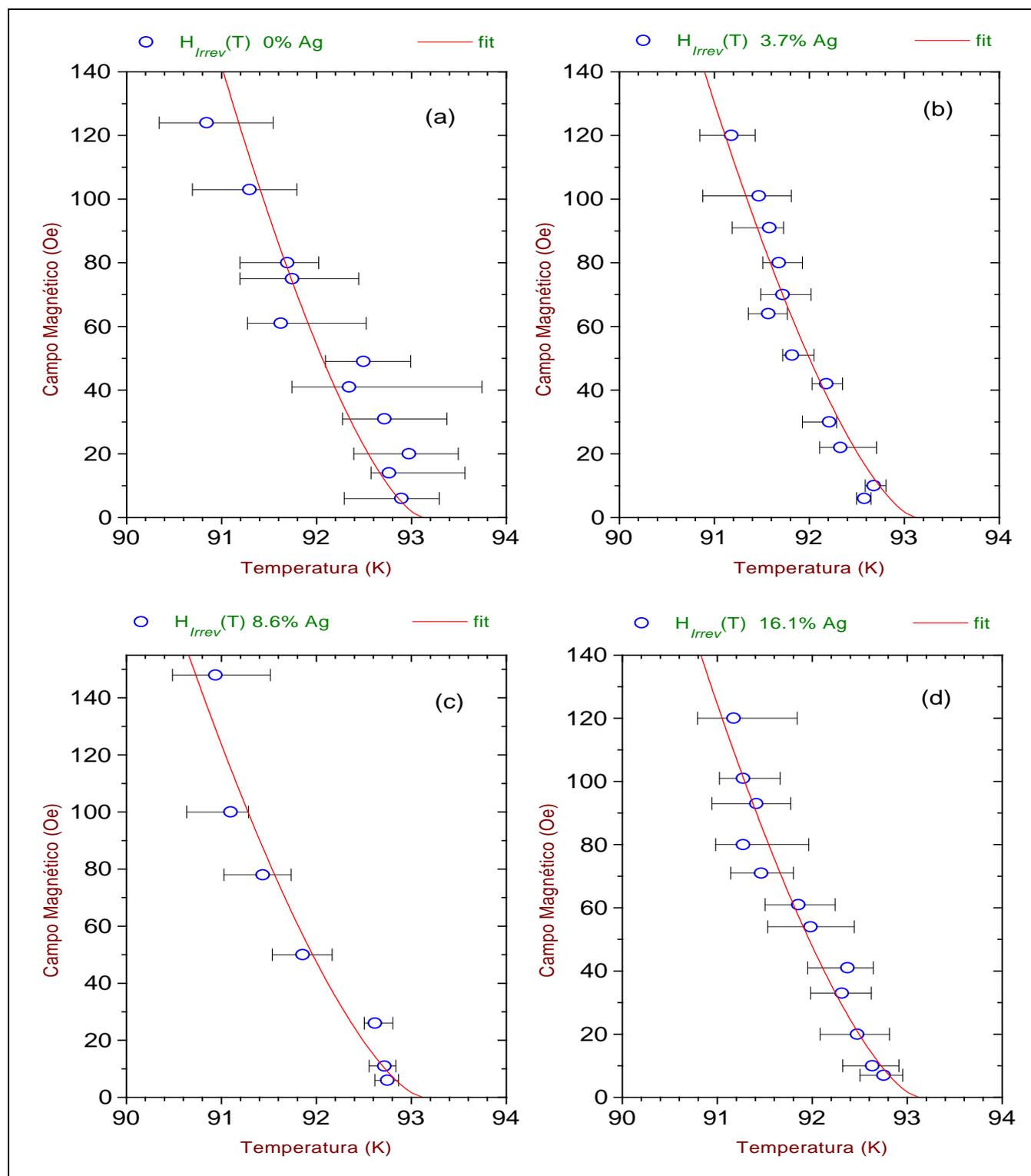
$$\left(\frac{H}{\alpha}\right)^{\frac{2}{3}} = 1 - \frac{T_{irr}(H)}{T_{irr}(0)} \quad (4.2)$$

onde consideramos  $T_{irr}(0)$  equivalente a  $\langle T_c \rangle$  como é usualmente feito,  $\alpha$  é ajustado para cada amostra. A figura 4.14 mostra o diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  somente com os ajustes obtidos pela eq. 4.2 para todas as amostras.

Notamos que, como no caso da linha de depinning inicial, apenas a amostra com 20.7 % de peso em prata apresentou um deslocamento considerável da linha de irreversibilidades no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  para regiões de temperaturas mais baixas. As linhas de irreversibilidades magnéticas para as outras amostras coincidem dentro do erro experimental, na faixa de campos magnéticos em que realizamos as medidas.

Os valores para  $\alpha$ , obtidos dos ajustes feitos com a eq. 4.2 estão na tabela abaixo:

% Ag	0	3.7	8.6	16.1	20.7
$\alpha$ (kOe)	41.26	37.94	35.99	36.24	27.32



**Fig. 4.12:** O diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  com as linhas de irreversibilidade magnéticas para o  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e para os compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 3.7, 8.6, 16.1 % respectivamente. A linha contínua nos gráficos é o ajuste de acordo com a eq. 4.2 .

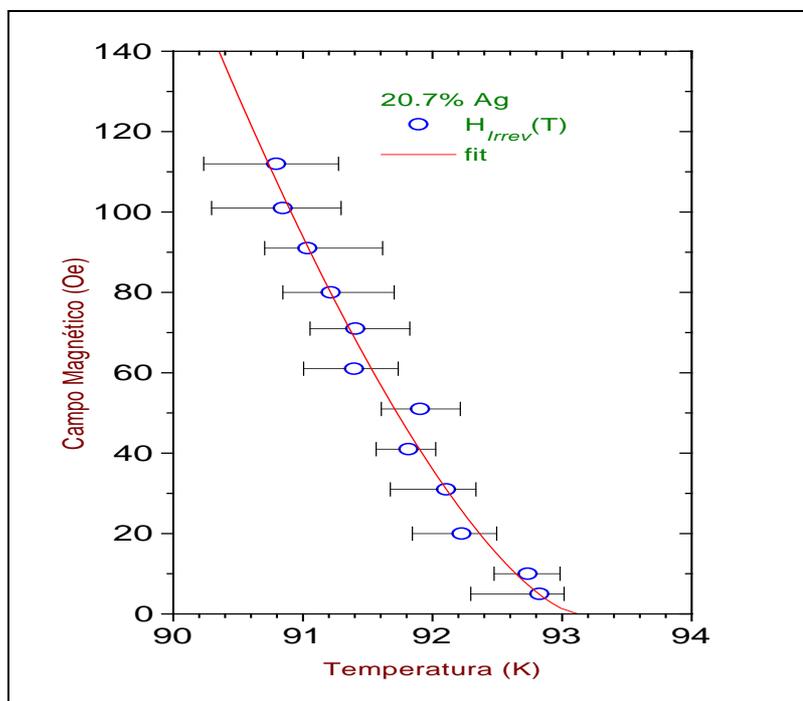


Fig. 4.13: Linha de irreversibilidades magnéticas para o compósito  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com 20.7 % de prata. A linha contínua é o ajuste de acordo com a eq. 4.2 .

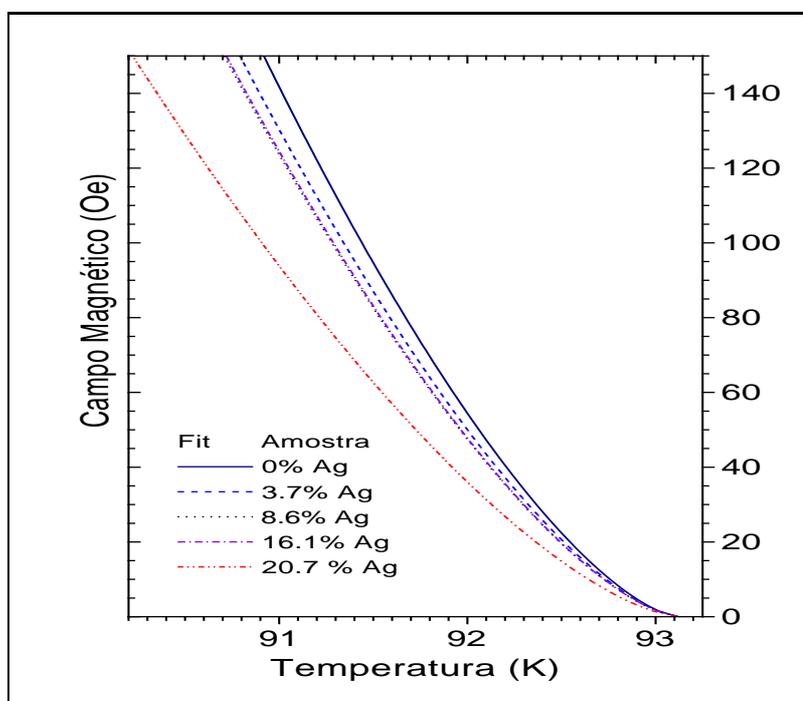


Fig. 4.14: Linhas de Irreversibilidade ajustadas para todas as amostras. Note o deslocamento da linha de irreversibilidade para a amostra com 20.7 % , para temperaturas mais baixas.

## 4.6 Discussão dos Resultados

Para estudar a dinâmica do fluxo intergranular numa rede de junções Josephson, é necessária a utilização de técnicas especiais de medida, que permitam separar os efeitos causados pela contribuição da dinâmica do fluxo intragranular. Medidas de magnetização DC do momento Meissner (*FCW*) em supercondutores granulares, quando sujeitos ao processo de resfriamento muito rápido permitem a separação das duas dinâmicas.

A técnica de magnetização DC com congelamento rápido (*FC*) foi utilizada em amostras de  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e compósitos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com diversas quantidades de prata, o que permitiu encontrar os valores de campo magnético e temperatura que indicam o início do depinning do fluxo de Josephson. Através da análise das curvas *ZFC* e *FC*, obtivemos também o limite de irreversibilidade para estas amostras.

Medidas de magnetoresistividade mostram que, numa certa região do diagrama de fases *H vs. T* ocorre a existência de acoplamentos de fase do parâmetro de ordem supercondutor entre os grãos, resultando numa configuração tal que a rede de junções Josephson estabelece caminhos contínuos sem resistência elétrica, para uma corrente de transporte atravessar a amostra.

A redução seqüencial do momento Meissner em função da quantidade de prata nas medidas de magnetização DC, exceto pela amostra com 16.1% Ag, que foge da seqüência (ver seção 4.2, pág. 51 e figura 4.4), indica um aumento do fluxo intergranular nas amostras com o acréscimo de prata. Apesar da amostra com 16.1 % de prata apresentar uma resposta diamagnética extremamente menor que todas as outras amostras, este compósito apresentou, dentro da barra de erro experimental, a mesma linha de depinning inicial e a mesma linha de irreversibilidade que as amostras com menor porcentagem de prata dentro da faixa de campos magnéticos na qual realizamos as medidas.

O fato de que o depinning inicial  $T_{dep}(H)$  e a irreversibilidade magnética  $T_{irr}(H)$  não mudarem significativamente com o aumento de prata, indicam que o potencial efetivo de aprisionamento (pinning) é constante até a quantidade de 16.1% de prata no sistema supercondutor, dentro da faixa de campos magnéticos utilizados,  $H < 120 Oe$ .

Com o aumento da quantidade de prata esperaríamos um aumento volumétrico das regiões normais entre os grãos e conseqüentemente um enfraquecimento dos elos fracos (junções), oca-

sionando uma redução no potencial de pinning. No entanto isto só foi verificado na amostra com 20.7% de prata, pelo desvio considerável das linhas  $T_{dep}(H)$  e  $T_{irr}(H)$  no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ , para regiões de temperaturas mais baixas, na faixa de campo magnético utilizada,  $H < 120 Oe$ .

A figura 4.15 mostra as linhas críticas obtidas para o compósito com 8.6% de prata.

Abaixo da linha de depinning inicial o fluxo magnético intergranular deve estar estabilizado pelas forças de pinning e, nesta linha inicia-se o depinning gradual do excesso de fluxo intergranular aprisionado durante as condições especiais de resfriamento. A saída deste fluxo é evidenciada pelo aumento do efeito Meissner e se estende claramente até o máximo do pico Meissner. Vale lembrar que Jung [2], não obteve a linha de depinning inicial (não houve pico Meissner na magnetização DC, figura 2.6-d) quando utilizou uma amostra que não foi sinterizada (equivalente a moer uma amostra sinterizada e prensá-la novamente) como descrito na seção 2.1.6, pág 37 . Este processo impede a formação de elos fortes assim como reduz quase que totalmente o número de elos fracos quando a amostra se encontra no estado supercondutor.

Nesta região de temperatura, próxima ao pico Meissner, podemos dizer que houve um enfraquecimento considerável do potencial efetivo de aprisionamento do fluxo intergranular, ou seja, um grande número de grãos foram desacoplados pela ruptura dos elos fracos. Isto indica que o máximo do pico Meissner<sup>4</sup> nas medidas de magnetização DC é apenas uma situação onde há um equilíbrio entre as forças de expulsão do excesso de fluxo aprisionado e a tendência do campo aplicado externo de penetrar na amostra. Mas o fato da temperatura de resistividade zero,  $T_{c0}(H)$ , ocorrer acima do pico Meissner, mostra que ainda muitos elos permanecem estáveis quando  $T_{pico}(H) < T < T_{c0}(H)$ .

A linha  $T_{c0}(H)$  marca o fim da região coerente, na qual o sistema estava percolado, ou seja, a fase do parâmetro de ordem estava estabelecida numa quantidade de grãos suficiente para que houvesse condutividade infinita no bulk. A quantidade de grãos acoplados<sup>5</sup> em  $T_{c0}(H)$  geralmente é de 25 a 30 % do total de grãos. Cabe ressaltar que esta quantidade de grãos acoplados não é devido somente a junções Josephson. Elos fortes (que atuam como se fossem

<sup>4</sup> Onde o sistema supercondutor (bulk) ainda apresenta condutividade infinita.

<sup>5</sup> Supondo que todos os grãos são homogêneos e de aproximadamente mesmo tamanho, então geometricamente falando, é suficiente que 25 a 30 % do total de grãos do sistema supercondutor estejam acoplados para que uma corrente de transporte atravessasse a amostra, com  $\rho = 0$ , utilizando-se destas junções, que fazem as conexões entre os grãos.

soldas entre os grãos), tais como as micropontes também contribuem, mas a quantidade destes acoplamentos é muito pequena quando comparada com a quantidade de junções Josephson no material.

Na região do diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  entre as linhas  $T_{pico}(H)$  e  $T_{c0}(H)$  o campo magnético está penetrando no bulk (redução do momento Meissner), o que pode ser verificado pela rápida queda da magnetização DC. Esta penetração pode ter lugar nas regiões normais entre os grãos, que volumetricamente aumentam conforme o aumento da energia térmica, com a conseqüente desestabilização das junções, que gradualmente vão se tornando resistivas para as supercorrentes dos vórtices. Em temperaturas maiores que a do pico Meissner também poderá ser atingido o  $H_{c1}(T)$ , permitindo que o campo magnético penetre também nos grãos na forma de vórtices intragranulares, o que tornaria as junções Josephson ainda mais fracas, pela depressão do parâmetro de ordem nos grãos, mas não impedindo que as junções persistam até o limite de irreversibilidade magnética, onde ‘todas’ as junções devem ser resistivas.

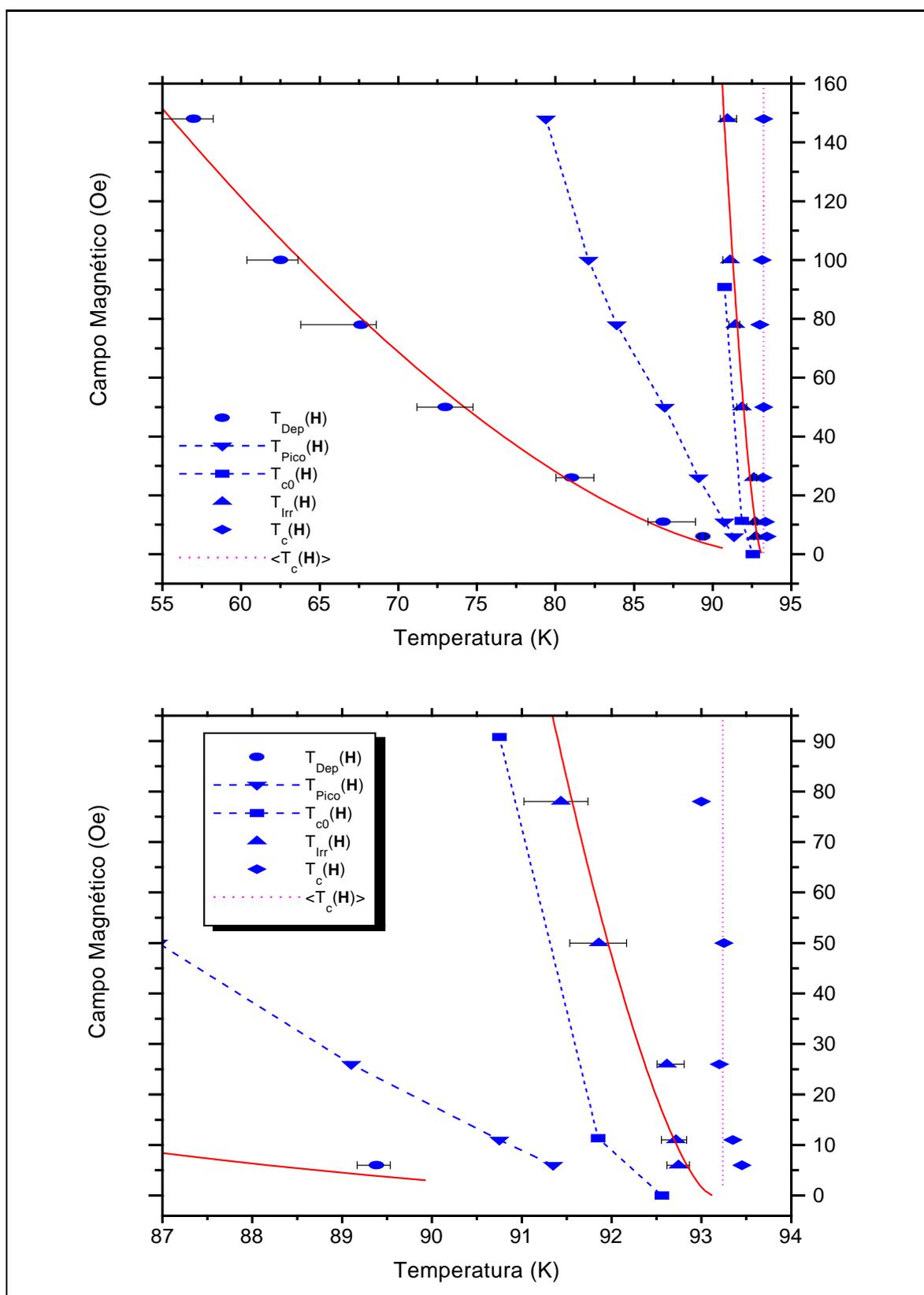
Assim, a linha de irreversibilidades magnéticas seria o limite para o sistema aprisionar efetivamente fluxo intergranular, podendo o depinning total e o desacoplamento completo dos grãos ocorrer até mesmo em temperaturas mais baixas que  $T_{irr}(H)$ , mas certamente acima da linha  $T_{c0}(H)$ . Se o depinning total ocorresse abaixo da linha de irreversibilidade que obtivemos, então esta  $T_{irr}(H)$  seria devida unicamente ao fluxo intragranular. Neste caso deveria ter sido detectada abaixo de  $T_{irr}(H)$  alguma anomalia nas curvas de magnetização DC, ou até mesmo na  $T_{irr}(H)$ , indicando o fim dos acoplamentos Josephson, o que não foi verificado.

De fato, para a linha de irreversibilidades magnéticas, nossos resultados se ajustaram bem à funcionalidade do tipo ‘*de Almeida-Thouless*’ (eq. 4.2), introduzida no trabalho pioneiro de Müller [1], em analogia com os vidros de spin em concordância com o modelo do Vidro Supercondutor. Este modelo do vidro supercondutor é adequado para um arranjo composto de  $n$ -grãos supercondutores, acoplados entre si por efeitos de proximidade ou tunelamento Josephson (ver seção 1.4.5). Nas nossas amostras granulares a linha de depinning inicial marca o início da expulsão do excesso de campo aprisionado e o início do movimento dos vórtices intergranulares. Ainda que o depinning se estenda ao longo de uma larga faixa de temperaturas, até a linha de irreversibilidade magnética denotando uma grande distribuição de energias de acoplamentos, nossos resultados podem ser melhor entendidos em termos do modelo do Vidro Supercondu-

tor. Neste modelo, como já foi explicado, a fase de baixa temperatura (abaixo da linha de irreversibilidade no diagrama de fases  $H$  vs.  $T$ ), denominada vidro supercondutor, apresenta o parâmetro de ordem supercondutor intragranular numa configuração, que consiste em uma distribuição randômica de fases congeladas localmente. Isto faz com que devido a desordem dos grãos o sistema apresente efeitos de frustração na presença de campo magnético externo, o que provoca as diferenças entre os momentos  $ZFC$  (metaestável) e  $FC$  (quase equilíbrio), dando origem à irreversibilidade magnética.

Acima da linha de irreversibilidade magnética não há qualquer tipo de fluxo aprisionado. Desta maneira podemos dizer que a linha de irreversibilidade é o limite dentro da faixa de campos magnéticos utilizados, acima do qual todas as formas de aprisionamento de vórtices são ineficazes, incluindo os centros de pinning dos vórtices intragranulares. De outra forma, isto significa que numa medida tipo  $FCC$ , a temperatura  $T_{irr}(H)$  marca o início dos acoplamentos entre os grãos por junções Josephson, ocasionando pinning dos fluxóides intergranulares. A linha de depinning inicial,  $T_{dep}(H)$ , por outro lado indica que todas as junções estão fortemente estabelecidas.

A linha  $H_{c2}(T)$  ou  $T_c(H)$  que mostramos no gráfico é aproximadamente constante dentro da nossa precisão experimental e na faixa de campos magnéticos utilizados.



**Fig. 4.15:** O diagrama de fases  $H$  vs.  $T$  para o compósito com 8.6% de prata com as linhas críticas  $T_{dep}(H)$ ,  $T_{Pico}(H)$ ,  $T_{c0}(H)$ ,  $T_{irr}(H)$  e  $T_c(H)$ . Em baixo mostramos uma ampliação da região próxima ao  $T_c$ .

## Capítulo 5

# Conclusões

Realizamos um estudo experimental da linha de depinning inicial e da linha de irreversibilidades magnéticas no  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  e em compósitos não randômicos  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  com até 20.7% de prata, no limite de baixos campos magnético,  $H < 120 Oe$ .

Medidas de magnetização DC, juntamente com algumas medidas de magnetoresistividade para um dos compósitos, permitiram um estudo da dinâmica do fluxo intergranular de Josephson, levando às seguintes conclusões.

Na região do diagrama de fases abaixo da linha de depinning inicial,  $T_{dep}(H)$ , o fluxo intergranular está fortemente aprisionado por elos fracos (junções Josephson) que acoplam os grãos supercondutores. Na linha  $T_{dep}(H)$ , os fluxóides intergranulares começam a se movimentar, devido ao enfraquecimento de algumas junções Josephson e saem da amostra. Este enfraquecimento das junções ocorre gradualmente com o aumento da energia térmica do sistema. Acima da linha do pico Meissner,  $T_{pico}(H)$ , começa a ocorrer penetração de campo magnético na amostra, o que é verificado pela redução do momento Meissner nas medidas. Aparentemente esta penetração ocorre em algumas regiões intergranulares que se tornaram normais devido a quebra de muitas junções, ou até mesmo dentro dos grãos, na forma de vórtices de Abrikosov se  $H > H_{c1}(T)$ . Na linha  $T_{c0}(H)$ , ( $T_{c0}(H) > T_{pico}(H)$ ), ainda temos uma quantidade de grãos acoplados suficientemente grande ( $\sim 25-30\%$ ) para que ocorra condutividade infinita à uma pequena corrente de transporte no bulk, ou seja, estas ligações ainda estão bem estabelecidas mantendo uma certa quantidade de fluxo intergranular aprisionado. Com o aumento da energia térmica do sistema o número de junções decresce aparentemente até o limite da irreversibilidade magnética  $T_{irr}(H)$ , acima do qual não há mais qualquer tipo de fluxóide (intragranular ou intergranular) efetivamente aprisionado.

Verificamos também que a adição de prata até a quantidade de 16.1 % em relação ao peso da amostra, não tem influência relevante na linha de depinning inicial ou na linha de irreversibilidade, dentro do limite de campo magnético utilizado. O compósito com 20.7 % ,no entanto, apresenta um forte desvio das linhas  $T_{dep}(H)$  e  $T_{irr}(H)$  para regiões de temperaturas mais baixas no diagrama de fases  $H vs. T$ , que ao nosso ver é resultado de uma redução no potencial de pinning com a redução do número de fortes centros de aprisionamento, ou seja, um enfraquecimento das junções devido ao aumento volumétrico das regiões normais intergranulares.

Dentro deste nosso entendimento a  $T_{irr}(H)$ , no limite de baixos campos magnéticos ( $H < 120 Oe$ ), é a linha limite do diagrama de fases  $H vs. T$  acima da qual nenhuma junção Josephson é eficaz para aprisionamento de fluxóides, garantindo que todos os grãos estão efetivamente desacoplados. Para um sistema de grãos desacoplados se espera que o fluxo magnético efetivamente possa fluir livremente entre os grãos. Se isto é verdade, não há mais quantização do fluxo intergranular, e conseqüentemente a linha de irreversibilidade seria o limite extremo de persistência de alguma supercondutividade intergranular estável dentro de um modelo vidro supercondutor para um sistema real.

# Referências

- [1] MÜLLER, K. A., TAKASHIGE, M., BEDNORZ, J. G. Flux trapping and superconductive glass state in  $La_2CuO_{4-y} : Ba$ . *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 58, n. 11, p. 1143-1146, mar. 1987.
- [2] JUNG, J., MOHAMED, M. A-K., ISAAC, I. *et al.* Josephson-flux depinning in granular  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 49, n. 17, p. 12188-12199, may 1994.
- [3] SCHAF, J., RODRIGUES JR, P., GHIVELDER L. *et al.* Magnetic irreversibility in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}/Ag$  nonrandom composites. *Physica. C.*, Amsterdam, v. 247, n. 314, p. 376-380, june 1995.
- [4] YESHURUN, Y., MALOZEMOFF, A. P. Giant flux creep and irreversibility in an Y-Ba-Cu-O crystal: an alternative to the superconducting-glass model. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 60, n. 21, p. 2202-2205, may 1988.
- [5] FISHER, M. P. A. Vortex-glass superconductivity: a possible new phase in bulk high- $T_c$  oxides. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 62, n. 12, p. 1415-1418, mar. 1989.
- [6] NELSON, D. R. Vortex Entanglement in high- $T_c$  superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 60, n. 19, p. 1973-1976, may 1988.
- [7] BEAN, C. P. Magnetization of hard superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, New York, v. 8, n. 6, p. 250-253, mar. 1962.
- [8] CAMPBELL, A. M., EVETTS, J. E. Flux vortex and transport currents in type II superconductors. *Adv. Physics*, v. 21, n. 90, p. 199-428, mar. 1972.
- [9] BEAN, C. P. Magnetization of high-field superconductors. *Rev. Mod. Phys.*, v. 36, n. 1, p. 31-39, jan. 1964.

- [10] ANDERSON, P. W. Theory of flux creep in hard superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, New York, v. 9, n. 7, p. 309-311, oct. 1962.
- [11] ANDERSON, P. W., KIM, Y. B. Hard superconductivity: theory of the motion of Abrikosov flux lines. *Rev. Mod. Phys.*, New York, v. 36, n. 1, p. 39-43, jan. 1964.
- [12] KES, P. H., AARTS, J., VAN DEN BERG, J. *et al.* Thermally assisted flux flow at small driving forces. *Supercond. Sci. Technol.*, Bristol v. 1, n. 5, p. 242-248, 1989.
- [13] MALOZEMOFF, A. P. Macroscopic magnetic properties of high temperature superconductors. In: GINSBERG, D. M. (Ed.) *Physical Properties of High Temperature Superconductors*. Singapore: World Scientific, 1989. v. 1, p. 71-150.
- [14] KOSTERLITZ, J. M., THOULESS, D. J. Two-dimensional physics. In: BREWER, D. F. (Ed.) *Progress in Low Temperature Physics*, Amsterdam: North-Holland, 1978. v. 7b, p. 371-433.
- [15] FISHER, D. S. Flux-lattice melting in thin-film superconductors. *Phys. Rev. B*, New York, v. 22, n. 3, p. 1190-1199, aug. 1980.
- [16] NELSON, D. R., SEUNG, H. S. Theory of melted flux liquids. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 39, n. 13, p. 9153-9174, may 1989.
- [17] HOUGHTON, A., PELCOVITS, R. A., SUDBO, A. Flux lattice melting in high- $T_c$  superconductors. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 40, n. 10, p. 6763-6770, oct. 1989.
- [18] FISHER, D. S., FISHER, M. P. A., HUSE, D. A. Thermal fluctuations, quenched disorder, phase transitions, and transport in type-II superconductors. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 43, n. 1, p. 130-159, jan. 1991.
- [19] KOCH, R. H., FOGLIET, V., GALLAGHER, W. J. *et al.* Experimental evidence for vortex-glass superconductivity in Y-Ba-Cu-O. *Phys. Rev. Lett.*, v. 63, n. 14, p. 1511-1514, oct. 1989.
- [20] JOSEPHSON, B. D. Possible new effects in superconductive tunnelling. *Physics Letters*, Amsterdam, v. 1, n. 7, p. 251-253, july 1962.

- [21] ANDERSON, P. W., ROWELL, J. M. Probable observation of the Josephson superconducting tunnelling Effect. *Phys. Rev. Lett.*, New York, v. 10, n. 6, p. 230-232, mar. 1963.
- [22] JAKLEVIC, R. C., LAMBE, J., SILVER, A. H. *et al.* Quantum interference effects in Josephson tunnelling. *Phys. Rev. Lett.*, New York, v. 12, n. 7, p. 159-160, feb. 1964.
- [23] CLEM, J. R. Granular and superconducting-glass properties of the high-temperature superconductors. *Physica C.*, Amsterdam, v. 153/155, p. 50-55, june 1988.
- [24] JUNG, J., ISAAC, I., MOHAMED, M. A-K. Effect of intergrain junctions and flux pinning on transport critical currents in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  granular superconductors. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 48, n. 10, p. 7526-7536, sept. 1993.
- [25] MOHAMED, M. A-K., JUNG, J. Geometric aspect of intergrain flux penetration and pinning in  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  ceramics. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 44, n. 9, p. 4512-4525, sept. 1991.
- [26] RODRIGUES JUNIOR, Pedro. *Irreversibilidades magnéticas e flutuações na condutividade elétrica do  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$* . Porto Alegre: Curso de Pós-graduação em Física da UFRGS, 1994. Tese.
- [27] SHIH, W. Y., EBNER, C., STROUD, D. Frustration and disorder in granular superconductors. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 30, n. 1, p. 134-144, july 1984.
- [28] EBNER, C., STROUD, D. Diamagnetic susceptibility of superconducting clusters: spin-glass behavior. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 31, n. 1, p. 165-171, jan. 1985.
- [29] de ALMEIDA, J. R. L., THOULESS, D. J. Stability of the Sherrington-Kirkpatrick solution of a spin glass model. *J. Phys. A*, Bristol, v. 11, n. 5, p. 983-990, may 1978.
- [30] WU, M. K., ASHBURN, J. R., TORNG, C. J. *et al.* Superconductivity at 93K in a new mixed-phase Y-Ba-Cu-O compound system at ambient pressure. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 58, n. 9, p. 908-910, 1987.

- [31] TARASCON, J. M., McKINNON, W. R., GREENE, L. H. *et al.* Oxygen and rare-earth doping of the 90-K superconducting perovskite  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 36, n. 1, p. 226-234, july 1987.
- [32] JORGENSEN, J. D. Defects and superconductivity in the copper oxides. *Physics Today*, Woodbury, v. 44, n. 6, p. 34-40, june 1991.
- [33] TRANQUADA, J. M., MOUDDEN, A. H., GOLDMAN, A. I. *et al.* Antiferromagnetism in  $YBa_2Cu_3O_{6+x}$ . *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 38, n. 4, p. 2477-2485, aug. 1988.
- [34] SALAMON, M. B, BARDEEN, J. Comment on "bulk superconductivity at 91K in single-phase oxygen-deficient perovskite  $Ba_2YCu_3O_{9-\delta}$ ". *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 59, n. 22, p. 2615, nov. 1987.
- [35] BATLOGG, B. Physical Properties of High- $T_c$  Superconductors. *Physics Today*, Woodbury, v. 44, n. 6, p. 44-50, june 1991.
- [36] FRIEDMANN, T. A., RABIN, M. W., GIAPINTZAKIS, J. *et al.* Direct measurement of the anisotropy of the resistivity in the  $a$ - $b$  plane of twin-free, single-crystal, superconducting  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$ . *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 42, n. 10, p. 6217-6221, oct. 1990.
- [37] GURVICH, M., FIORY, A. T. Resistivity of  $La_{1.825}Sr_{0.175}CuO_4$  and  $YBa_2Cu_3O_7$  to 1100 K: absence of saturation and its implications. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 59, n. 12, p. 1337-1340, sept. 1987.
- [38] PUREUR, P., SCHAF, J., KUNZLER, J. V. Electric and magnetic measurements on the high- $T_c$  oxide superconductors  $YBa_2Cu_3O_7$ ,  $EuBa_2Cu_3O_7$  and  $GdBa_2Cu_3O_7$ . In: NICOLSKY, R., BARRIO, R. A., de LIMA, O. F., ESCUDERO, R. (Ed.) *Progress in high temperature superconductivity*. Singapore: World Scientific, 1988. v. 9, p. 137.
- [39] HIKITA, M., SUSUKI, M. Magnetoresistance and thermodynamic fluctuations in single-crystal  $YBa_2Cu_3O_y$ . *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 39, n. 7, p. 4756-4759, mar. 1989.
- [40] PUREUR, P., SCHAF, J. Magnetic irreversibility line in a deoxygenated YBaCuO superconductor. *Solid State Communications*, Oxford, v. 78, n. 8, p. 723-726, may 1991.

- [41] KIM, Y. B., HEMPSTEAD, C. F., STRAND, A. R. Critical persistent currents in hard superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, New York, v. 9, n. 7, p. 306-309, oct. 1962.
- [42] FEIGEL'MAN, M. V., GESHKENBEIN, V. B., LARKIN, A. I. *et al.* Theory of collective flux creep. *Phys. Rev. Lett.*, Woodbury, v. 63, n. 20, p. 2303-2306, nov. 1989.
- [43] LU ZHANG, LIU, J. Z., SHELTON, R. N., LAN, M. D. Long-time magnetic relaxation in a detwinned  $YBa_2Cu_3O_{7-\delta}$  single crystal. *Phys. Rev. B*, Woodbury, v. 50, n. 10, p. 7092-7098, sept. 1994.
- [44] REICH, S., FELNER, I. Nonrandom ceramic superconductor-metal composites. *J. Appl. Phys.*, v. 67, n. 1, p. 388-392, jan. 1990.
- [45] COSTA, Rosângela Menegotto. *Flutuações na condutividade elétrica do YBaCuO na presença de campo magnético*. Porto Alegre: Curso de Pós graduação em Física da UFRGS, 1993. Diss. maestr. Física.