

**DINÂMICA DE VÓRTICES
JOSEPHSON INTERGRANULARES EM
SUPERCONDUTORES CERÂMICOS**

por

José Henrique Spahn Torres

Orientador: Sergio Moehlecke

ESTE EXEMPLAR CORRESPONDE À REDAÇÃO FINAL DA TESE DE MESTRADO DEFENDIDA PELO ALUNO JOSÉ HENRIQUE SPAHN TORRES E APROVADA PELA COMISSÃO JULGADORA.

14/05/97

Sergio Moehlecke

Tese apresentada ao Instituto de Física "Gleb Wataghin" da Universidade Estadual de Campinas - Unicamp, como parte dos requisitos para a obtenção do título de Mestre em Física

Campinas, S.P., Maio de 1997

IF/1077

UNIDADE	IFGW
N.º CHAMADA:	
T/Unicamp	
T636d	
V.	Ex.
T. MBO BC/	30773
PROC.	281197
C	<input type="checkbox"/>
D	<input checked="" type="checkbox"/>
PREÇO	R\$ 11,00
DATA	13/06/97
N.º CPDC	M.000.98433-5

**FICHA CATALOGRÁFICA ELABORADA PELA
BIBLIOTECA DO IFGW - UNICAMP**

T636d

Torres, José Henrique Spahn
Dinâmica de vórtices Josephson intergranulares em supercondutores cerâmicos / José Henrique Spahn Torres. -- Campinas, SP : [s.n.] , 1997.

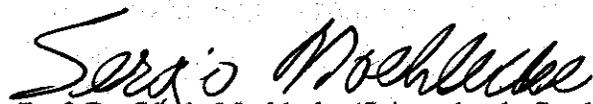
Orientador: Sérgio Moehlecke.
Dissertação (mestrado) - Universidade Estadual de Campinas, Instituto de Física "Gleb Wataghin".

1. Supercondutividade. 2. Supercondutores de alta temperatura. 3. Supercondutores cerâmicos. 4. *Materiais granulares. 5. *Movimento de vórtices. I. Moehlecke, Sérgio. II. Universidade Estadual de Campinas. Instituto de Física "Gleb Wataghin". III. Título.

PARECER DE APROVAÇÃO
DEFESA DE TESE DE MESTRADO DE
JOSÉ HENRIQUE SPAHN TORRES

DATA : 06 / 05 / 97

BANCA EXAMINADORA:



- Prof. Dr. Sérgio Moshlecke (Orientador do Candidato)



- Prof. Dr. Enzo Granato



- Prof. Dr. Oscar Ferreira de Lima

Agradecimentos

Agradeço ao meu orientador, Prof. Dr. Sergio Moehlecke, pelo estímulo, apoio e dedicação com que me orientou e pela sua preocupação com minha formação acadêmica.

Agradeço ao Prof. Dr. Yakov Kopelevich pelas esclarecedoras discussões e sugestões que me ajudaram no desenvolvimento deste trabalho.

Agradeço aos membros do Laboratório de Materiais de Dispositivos: Juan Carlos Paredes Campoy, José Tomazelli, Dimitrius José Dei Santi, Luiz Otávio Saraiva Ferreira.

Agradeço à Unicamp e ao Conselho Nacional de Desenvolvimento Científico e Tecnológico, CNPq, pela bolsa de estudos concedida.

*aos meus pais, José Maria e Christina
pelo incentivo dado*

à Christiane

Resumo

Neste trabalho de tese de Mestrado em Física estudamos a magnetização, $M(H,T)$, e as propriedades de transporte: resistividade, curvas $I \times V$ e magneto-resistividade em função do campo magnético e da corrente aplicada em cerâmicas supercondutoras policristalinas de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$, $\text{Bi}(2223)$, e de $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, $\text{Y}(123)$, com diferentes tamanhos de grãos.

Através da histerese nas medidas de magneto-resistividade ou $V(H)$ verificamos que pelo menos para a faixa de campo magnético, corrente e temperatura utilizados neste estudo, a dissipação nas amostras de $\text{Y}(123)$ ocorre principalmente devido ao movimento dos vórtices Josephson das regiões intergranulares.

Medindo curvas características $I \times V$ em uma amostra de $\text{Y}(123)$ com grãos grandes ($18\mu\text{m}$) identificamos claramente três diferentes regimes de dissipação no meio Josephson: TAFF, Flux Creep e Flux Flow. Apesar destes resultados serem semelhantes aos da literatura onde o modelo de uma transição vortex glass - vortex liquid é utilizado, concluímos que esta transição de fase provavelmente não ocorre nesta amostra nas condições estudadas. Além disso determinamos para esta amostra a energia de ativação em função do campo magnético $U_0(H)$ e mostramos que todas as curvas $I \times V$ podem ser descritas pela relação $V \sim (I-I_c)^n$.

Abstract

In order to fulfill the requirements of the Master thesis program in Physics we have studied magnetization, $M(H,T)$, and transport properties: resistivity, IxV curves and magneto-resistivity as a function of magnetic field and applied current in polycrystalline superconducting ceramics of $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$, Bi(2223), and of $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_7$, Y(123), with different grain size.

Through the hysteresis in magneto-resistivity or $V(H)$ measurements we verified that, at least in the magnetic field, current and temperature ranges used in this study, the dissipation in Y(123) samples occurs mainly due to the motion of Josephson vortices of the intergrain regions.

Measuring IxV characteristic curves of Y(123) sample with large grains ($18\mu\text{m}$) we identified clearly three different regimes of dissipation in the Josephson medium: TAFF, Flux Creep and Flux Flow. Although these results are similar to the ones in the literature where the model of vortex glass - vortex liquid transition theory is used, we conclude that probably this kind of phase transition does not occur in this sample for the used conditions. Moreover we determined for this sample the activation energy as a function of magnetic field $U_0(H)$ and we showed that all IxV curves can be described by the relation $V \sim (I-I_c)^n$.

Sumário

RESUMO	iv
ABSTRACT	v
SUMÁRIO	vi
CAPÍTULO 1	1
INTRODUÇÃO	1
CAPÍTULO 2	5
PROCESSOS DISSIPATIVOS	5
2.1 Introdução	5
2.2 Vórtice de fluxo magnético	6
2.3 Processos dissipativos	8
2.3.1 Flux Flow	10
2.3.2 Ativação Térmica: T AFF e Flux Creep	12
2.4 Vortex Glass	16
2.5 Materiais Granulares	18
CAPÍTULO 3	23
PARTE EXPERIMENTAL	23
3.1 Preparação das amostras	23
3.1.1 Bi(2223)	24
3.1.2 Y(123)	24
3.2 Caracterização das amostras	26
3.2.1 Bi(2223)	26
3.2.2 Y(123)	29
3.3 Contatos elétricos	34
3.4 Sistema para medidas de resistividade, magneto-resistividade e curvas IxV	36

CAPÍTULO 4 ----- **39**

RESULTADOS EXPERIMENTAIS----- **39**

4.1 Amostra Bi(2223)----- 40

4.1.1 Magnetização----- 40

4.1.2 Curvas Características I x V----- 45

4.1.3 Medidas de Magneto-resistividade----- 49

4.2 Amostra Y(123)P----- 51

4.2.1 Magnetização----- 51

4.2.2 Curvas Características I x V----- 53

4.2.3 Medidas de Magneto-resistividade----- 55

4.3 Amostra Y(123)G----- 56

4.3.1 Magnetização----- 57

4.3.2 Curvas Características I x V----- 58

4.3.3 Medidas de Magneto-resistividade----- 59

CAPÍTULO 5----- **61**

ANÁLISES E CONCLUSÕES----- **61**

REFERÊNCIAS----- **74**

CAPÍTULO 1

INTRODUÇÃO

Recentemente um grande número de trabalhos tanto experimentais como teóricos tem sido dedicados ao problema da ocorrência de um estado de vortex-glass (VG) nos supercondutores de alta temperatura (HTS) (para uma revisão veja ref. 1). A principal característica da existência deste estado é a dele ser um verdadeiro estado supercondutor (resistência nula) no limite de pequenas correntes ($J \rightarrow 0$). Tanto os modelos de VG como de pinning coletivo [2-5] predizem que $E \sim \exp[-(J/J_0)^\mu]$, com μ entre 0 e 1, dependência característica do campo elétrico, E , com a densidade de corrente, J , no limite de pequenas correntes ($0 < J < J_0$), o que apresenta uma curvatura negativa nos gráficos de $\log E - \log J$. Com o aumento da temperatura acima da temperatura de transição T_g , passamos do estado VG para o estado de vortex-liquid (VL), onde temos uma resistividade linear finita, que apresenta uma curvatura positiva nos gráficos de $\log E - \log J$. Próximo de T_g também é previsto um "scaling" destas curvas características de $E - J$ [3]. Em particular, em T_g é esperada a lei de potência $E \sim J^{(z+1)/(d-1)}$, onde z é uma constante determinada pelo scaling e d é a dimensionalidade do sistema. A primeira confirmação experimental da teoria foi apresentada por Koch et. al. [6], onde uma transição VG - VL foi medida em filmes finos de $YBa_2Cu_3O_x$ (Y(123)). Encontraram em T_g uma lei de potência $E \sim J^n$ com um expoente $n \approx 3$, em bom acordo com as expectativas teóricas para uma transição VG 3D ($d = 3$, $z \approx 5$). Mais tarde, a transição VG -

VL foi verificada em vários outros HTS. Uma transição do tipo VG-VL pode ocorrer não só em filmes e monocristais mas também em amostras policristalinas. Em cerâmicas de Y(123), por exemplo, a transição da curvatura de negativa para positiva num gráfico de $\log E - \log J$ foi observada tanto com a variação do campo magnético para uma temperatura fixa [7,8] como através da variação da temperatura para um campo magnético constante [9,10]. Nas ref. 9 e 10, o scaling das curvas características E - J, na fronteira da transição $H_g - T_g$ para esta amostra cerâmica, onde H_g é o campo magnético onde ocorre a transição VG-VL, forneceram parâmetros de scaling semelhantes aos encontrados para filmes finos e monocristais, donde concluíram que uma transição de fase do tipo VG-VL também ocorre num meio intergranular.

Nas ref. 7 e 34, uma transição da curvatura negativa para positiva num gráfico de $\log E - \log J$ em amostras policristalinas de Y(123) foi descrita como um crossover de um estado de resistência não linear representado por $V \sim (I - I_c)^n$, associado com o movimento dos vórtices intergranulares (Josephson), para um estado caracterizado por uma resistência linear, causado pelo movimento dos vórtices intragranulares (Abrikosov - AV). Assim, aqui este mesmo comportamento das curvas características E x J não é interpretado como uma transição de fase de 2^a ordem do tipo VG-VL, e esta continua sendo uma questão controversa.

É amplamente aceito que as cerâmicas de HTS podem ser consideradas como supercondutores granulares com um acoplamento fraco (tipo Josephson) entre os grãos [11]. Um campo magnético aplicado $H_{c1J} < H < H_{c1g}$ irá penetrar dentro do espaço intergranular na forma de vórtices Josephson (JV), onde H_{c1J} e H_{c1g} são os campos críticos inferiores para o meio intergranular e intragranular, respectivamente. Para $H > H_{c1g}$, vórtices JV e de Abrikosov (intragranulares) coexistem.

Neste trabalho de tese de mestrado, nós estudamos algumas questões com relação aos processos dissipativos que ocorrem nos HTS. Como será apresentado no capítulo 2, a dissipação tem origem no movimento dos vórtices.

Então uma questão é saber qual tipo de vórtice (JV ou AV) dominará nos processos dissipativos para $H > H_{c1g}$. Como será mostrado, nas nossas medidas em amostras de Y(123) a dissipação se dá predominantemente no meio Josephson. Além disto, outra observação que chegamos é a de que podemos descrever estes processos dissipativos usando modelos clássicos, ou seja, tanto estes modelos como o de vortex glass podem descrever os resultados experimentais.

A seguir descreveremos como será apresentado este trabalho.

No capítulo 2 apresentaremos os modelos sobre dissipação no estado misto ($H > H_{c1}$). Começaremos descrevendo o vórtice de fluxo magnético, como ele se forma num supercondutor do tipo II, como ele se move devido a força de Lorentz à ele aplicada e como se gera dissipação devido ao movimento de um vórtice. Apresentaremos os processos de ativação térmica: TAFF (Thermally Activated Flux Flow) e Flux Creep e o Flux Flow que são os diferentes processos dissipativos decorrentes dos vários comportamentos dinâmicos dos vórtices. Descreveremos a teoria da transição vortex glass - vortex liquid, salientaremos a importância de levar em conta a granularidade dos materiais e terminaremos apresentando como se pode determinar em qual meio ocorre a dissipação: meio intergranular (Josephson) ou meio intragranular (Abrikosov).

As amostras utilizadas neste trabalho foram as cerâmicas supercondutoras $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ (Bi(2223)) e $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y(123)). No capítulo 3 descreveremos as características destas amostras, como elas foram preparadas, e daremos alguns de seus parâmetros. Variando o tratamento térmico das amostras é possível se conseguir amostras com diferentes tamanhos de grãos, que influenciam as características gerais das amostras. Neste capítulo descreveremos também o sistema utilizado para as medidas de resistividade, magneto-resistividade e curvas $I \times V$ das amostras.

No capítulo 4 apresentaremos em detalhes os resultados obtidos através das medidas de magneto-resistividade e curvas $I \times V$ em função do campo

magnético aplicado e medidas de magnetização realizadas num magnetômetro SQUID comercial nas amostras Bi(2223) e Y(123) com dois tamanhos de grãos bem distintos.

No capítulo 5 concluiremos com as análises e discussões sobre os resultados obtidos confrontando com as informações da literatura. Mostraremos, por exemplo, que se pode utilizar uma relação do tipo $V \sim (I - I_c)^n$ entre tensão e corrente para descrever bem os resultados experimentais das curvas $I \times V$. Terminaremos apresentando as conclusões e também algumas sugestões de como melhorar as medidas e um estudo sistemático para um trabalho futuro.

CAPÍTULO 2

PROCESSOS DISSIPATIVOS

2.1 Introdução

Os materiais supercondutores são divididos em dois tipos: os chamados supercondutores tipo I e os supercondutores tipo II.

A característica que determina de qual tipo é o supercondutor é o parâmetro de Ginsburg-Landau $\kappa = \lambda / \xi$, onde λ é o comprimento de penetração do campo magnético no supercondutor e ξ é o comprimento de coerência dos super-elétrons, como veremos mais adiante. Para $\kappa > 1/\sqrt{2}$ o supercondutor é do tipo II enquanto que para $\kappa < 1/\sqrt{2}$ o supercondutor é do tipo I.

Os supercondutores do tipo I, por exemplo elementos puros, quando submetidos a campos maiores que um campo crítico H_c , o campo crítico termodinâmico, apresentam penetração do campo magnético na forma de lamelas, regiões em que o material não mais está no estado supercondutor. Neste estado, o supercondutor é dito estar no estado intermediário.

Para os materiais do tipo II, por exemplo compostos e ligas, alguns elementos puros e as cerâmicas supercondutoras de alta temperatura, quando submetidos a campos maiores que o chamado primeiro campo crítico, H_{c1} , o campo penetra no supercondutor na forma de fluxóides quantizados. Cada fluxóide, ou vórtice de fluxo magnético, carrega um quantum de fluxo

magnético $\Phi_0 = \frac{hc}{2e} = 2,07 \times 10^{-7} \text{ G.cm}^2$. Este estado é chamado de estado

misto.

A seguir trataremos mais detalhadamente o vórtice de fluxo magnético, descrevendo sua estrutura e como ele se forma.

2.2 Vórtice de fluxo magnético

A origem da divisão dos supercondutores em dois tipos se deve à natureza da energia de superfície por unidade de área, $\sigma_{ns} = (H_c^2/8\pi)(\xi - \lambda)$, associada a interface entre as fases normal (n) e supercondutora (s)[19]. Quando o material é do tipo I, ou seja, $\kappa < 1/\sqrt{2}$ ou ainda $\xi > \lambda$ temos na equação acima que a energia de superfície é positiva, significando que neste material não é favorável a formação destas interfaces, então o material passa para o estado normal com o campo penetrando na forma de lamelas para minimizar a área destas interfaces. Entretanto, quando o material é do tipo II ($\xi < \lambda$ ou $\kappa > 1/\sqrt{2}$), a equação nos dá que a energia de superfície é negativa, sendo portanto favorável a formação destas interfaces. Assim o campo magnético penetra no supercondutor do tipo II na forma de vórtices para maximizar a área destas interfaces.

Deste modo, nos supercondutores do tipo II o campo penetra na forma de vórtices que tem a forma de cilindros orientados na direção do campo aplicado. Os vórtices podem ser considerados como tendo um núcleo de material normal de raio ξ rodeado por material no estado supercondutor, com o campo magnético constante no interior do núcleo, decaindo exponencialmente fora dele (veja figura 1).

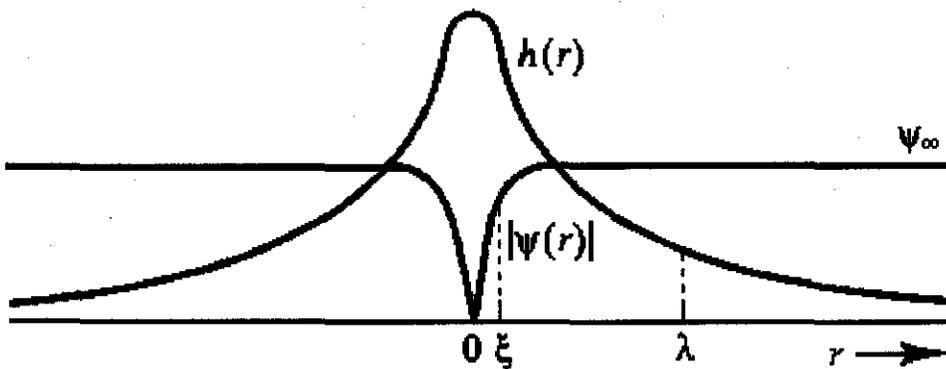


Figura 1: Estrutura de um vórtice isolado

Aqui ψ é uma pseudo-função de onda, também conhecida como parâmetro de ordem. A densidade local dos portadores de carga supercondutores pode ser escrita como $n_s = |\psi|^2$, daí a semelhança com a função de onda da mecânica quântica. Como ψ pode variar com a posição, isto permite tratar densidades de carga que variam no espaço, como é o caso dos vórtices de fluxo, já que eles apresentam um núcleo normal com variação da densidade de carga em um comprimento de coerência ξ .

Se o material não apresenta defeitos (vacâncias, impurezas, etc.), ou seja, um material ideal, os vórtices penetram formando uma rede triangular, com um parâmetro de rede bem definido, dado por $a_\Delta = \left(\frac{4}{3}\right)^{1/4} \left(\frac{\Phi_0}{B}\right)^{1/2}$, ver figura 2.

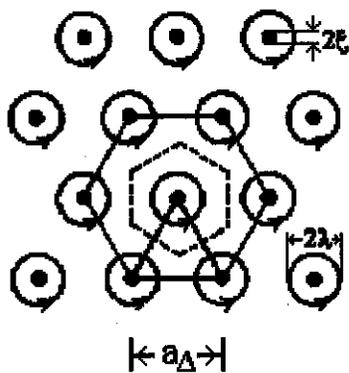


Figura 2: Diagrama esquemático de uma rede de vórtices

Quando se aplica uma corrente elétrica em um supercondutor ideal no estado misto, aparece uma força de Lorentz F_1 que atua em cada vórtice devido a interação entre a densidade de corrente \mathbf{j} e o fluxo de campo magnético \mathbf{B} dos vórtices, $F_1 = \mathbf{j} \times \mathbf{B}/c$. Devido a esta força os vórtices podem se movimentar, induzindo uma voltagem e gerando dissipação.

Entretanto, em um supercondutor real há defeitos e os vórtices podem ficar presos nas posições onde existem estes defeitos, já que nestes locais pode ser energeticamente mais fácil destruir a supercondutividade e, em consequência, a rede triangular se deforma, pois esses defeitos são distribuídos aleatoriamente pelo material. Quando os vórtices estão presos não há resistência (dissipação) até que a corrente atinja um certo valor (corrente crítica) tal que a força de Lorentz exceda a força de aprisionamento.

Veremos a seguir os processos que fazem com que um vórtice se mova e produza dissipação.

2.3 Processos dissipativos

Uma vez excedida a força de Lorentz, os vórtices se movem e pela equação de Maxwell $\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{1}{c} \frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t}$ tem-se a geração de um campo elétrico, já que no interior do vórtice existe um campo magnético que se desloca junto com o vórtice, portanto temos uma variação do campo magnético com o tempo, em relação a um referencial fixo à rede cristalina.

Se os vórtices se movem com uma velocidade \mathbf{v} então nós temos um campo elétrico dado por $\mathbf{E} = \frac{\mathbf{B}}{c} \times \mathbf{v}$ que é paralelo à densidade de corrente aplicada \mathbf{j} (ver figura 3). Portanto nós temos uma resistência e em consequência, dissipação.

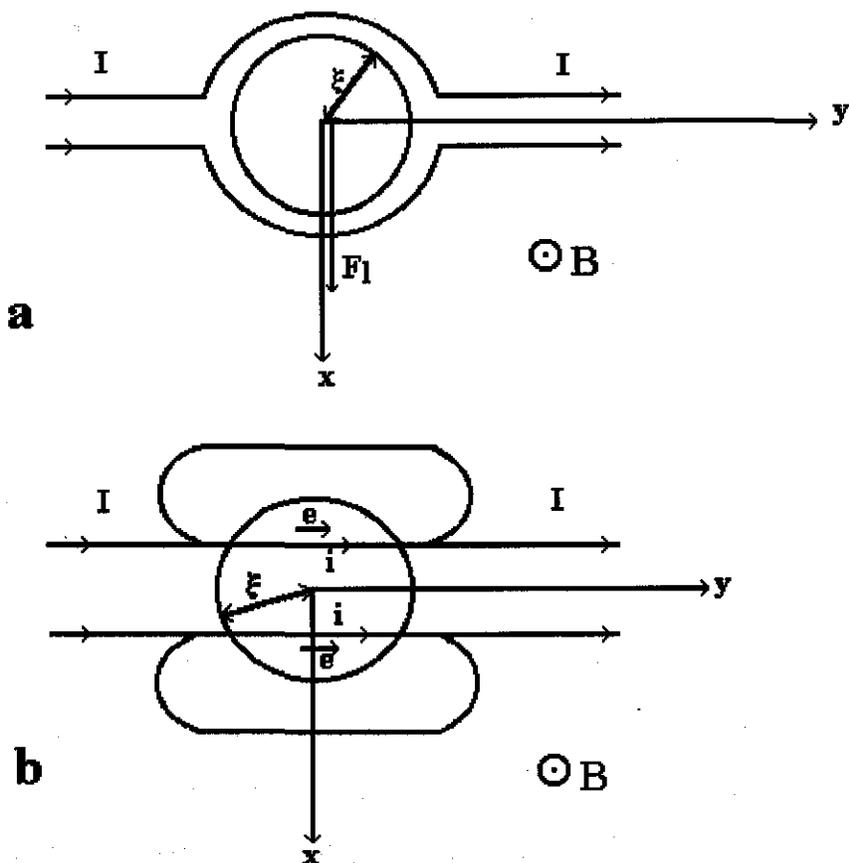


Figura 3: Esquema de um vórtice (a) aprisionado e (b) em movimento

Na figura 3(a) vemos o esquema de um vórtice aprisionado em algum defeito da amostra. Vê-se que os super-elétrons que conduzem a supercorrente circundam o núcleo normal de raio ξ , seria como se houvesse um curto-circuito e os elétrons fossem pelo caminho de menor resistência, neste caso resistência nula. Quando um material está no estado supercondutor somente uma fração dos elétrons participam da condução formando pares de Cooper. Supondo que a corrente tenha componentes somente na direção y , a força de Lorentz F_1 sentida pelo vórtice devido à corrente I tem resultante na direção x .

Quando esta força excede a força de aprisionamento, o vórtice se move na direção x , como mostrado na figura 3(b), gerando um campo elétrico e na direção y . Este campo por sua vez induz uma corrente i no interior do vórtice e como no núcleo existe material no estado normal esta corrente gera dissipação.

Nas seções seguintes veremos os diferentes regimes da dinâmica dos vórtices que geram dissipação.

2.3.1 Flux Flow

Flux Flow ocorre quando nós temos uma corrente aplicada ao supercondutor maior que j_c , a corrente crítica de depinning, de modo que a força de Lorentz é maior que a força de pinning e o vórtice então se movimenta sem sentir a presença do pinning. No entanto, estes vórtices livres de pinning não estão só sob a ação da força de Lorentz, mas também existe uma força de viscosidade agindo sobre o vórtice no sentido contrário ao seu movimento. Sendo v a velocidade do vórtice, a força viscosa é dada por $F = -\eta v$, onde η é o coeficiente de viscosidade. Igualando a força de viscosidade à força de Lorentz temos a relação dos módulos dada por:

$$J \frac{\phi_0}{c} = \eta v \quad (2.1)$$

Como isso apresenta um comportamento ohmico ($J \sim v \sim E$) podemos escrever

$$\rho_f = \frac{E}{J} = B \frac{\phi_0}{c^2 \eta} \quad (2.2).$$

Então, se η é independente de B , ρ_f , a resistividade de flow, é proporcional a B . Então o problema se reduz a achar η , que pode ser expresso em termos energéticos na forma $W = -F v = \eta v^2$.

Para encontrar η utilizamos um modelo simples desenvolvido por Bardeen e Stephen [21] onde o núcleo do vórtice é considerado como uma região normal de raio ξ . Então nós trataremos o problema utilizando a lei de Ohm dentro do núcleo e as equações de London fora do núcleo.

As equações de London foram desenvolvidas em 1935 por F. e H. London para dar conta dos fenômenos de condutividade perfeita e diamagnetismo perfeito ou efeito Meissner nos supercondutores. Eles propuseram as seguintes equações:

$$\mathbf{E} = \frac{\partial}{\partial t}(\Lambda \mathbf{J}_s) \quad (2.3)$$

$$\mathbf{h} = -c \nabla \times (\Lambda \mathbf{J}_s) \quad (2.4)$$

onde $\Lambda = \frac{4\pi\lambda^2}{c^2} = \frac{m^*}{n_s e^{*2}}$ é um parâmetro fenomenológico.

Voltando ao modelo de Bardeen-Stephen, usando a primeira equação de London podemos encontrar a dissipação no interior do núcleo:

$$W_{\text{núcleo}} = \pi \xi^2 \sigma_n E_{\text{núcleo}}^2 = \frac{v_x^2 \phi_0^2}{4\pi \xi^2 c^2 \rho_n} \quad (2.5)$$

Segundo Bardeen e Stephen há uma quantidade igual de dissipação na região de transição fora do núcleo. Então a dissipação total será

$$W = \frac{v^2 \phi_0^2}{2\pi \xi^2 c^2 \rho_n} \quad (2.6)$$

Igualando com a dissipação da força viscosa temos

$$\eta = \frac{\phi_0 H_{c2}}{c^2 \rho_n} \quad (2.7)$$

Substituindo na equação para a resistividade flow finalmente temos

$$\rho_f = \rho_n \frac{B}{H_{c2}} \quad (2.8)$$

Ou seja, a resistividade de flow é linear com o campo aplicado sendo esta dependência muitas vezes utilizada para se verificar experimentalmente a ocorrência do regime de flux flow.

A seguir veremos como a ativação térmica faz com que os vórtices possam se movimentar mesmo com a corrente aplicada sendo menor que a corrente crítica para depinning.

2.3.2 Ativação Térmica: TAFF e Flux Creep

A energia térmica tem grande influência nos processos dissipativos em materiais supercondutores de alta temperatura. A ativação térmica faz com que vórtices adquiram energia suficiente para pular a barreira de potencial que os prendem em centros de aprisionamento (pinning) [20]. Não havendo corrente elétrica fluindo no supercondutor, a probabilidade de um vórtice saltar de um centro de pinning para outro vizinho é igual para todas as direções (ver figura 4(a)) considerando centros de pinning idênticos.

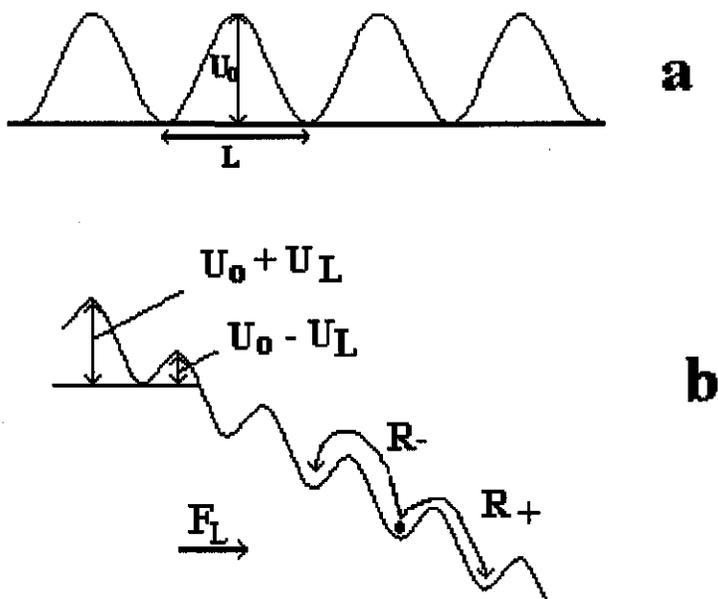


Figura 4: Potenciais dos centros de aprisionamento (a) sem corrente aplicada e (b) com corrente aplicada

Quando se tem uma corrente fluindo pelo material as probabilidades de salto se modificam, favorecendo os saltos em uma direção, por exemplo, no mesmo sentido da força de Lorentz devido a uma corrente aplicada externamente (figura 4(b)). Chamando os saltos a favor da força de Lorentz de R_+ e contra a força de Lorentz de R_- podemos escrever:

$$\begin{aligned} R_+ &= \omega_0 \exp[-(U_0 - U_L) / kT] \\ R_- &= \omega_0 \exp[-(U_0 + U_L) / kT] \end{aligned} \quad (2.9)$$

onde ω_0 é uma frequência característica de vibração da linha de fluxo e k é a constante de Boltzmann. Aqui definimos $U_L = (\mathbf{j} \times \mathbf{B}) r_p V_c$ e $U_0 = (\mathbf{j}_c \times \mathbf{B}) r_p V_c$, onde r_p é o alcance do potencial de pinning, V_c é o volume do pacote de vórtices (consideramos aqui um pacote de vórtices que podem saltar em conjunto as barreiras de potencial em vez de apenas um vórtice saltando individualmente) e \mathbf{j}_c é a corrente crítica de depinning definida como o prolongamento da região linear de flux flow até $E=0$ numa curva $E \times J$ (figura

5). U_0 é chamada de energia de ativação e U_L é a energia associada à força de Lorentz.

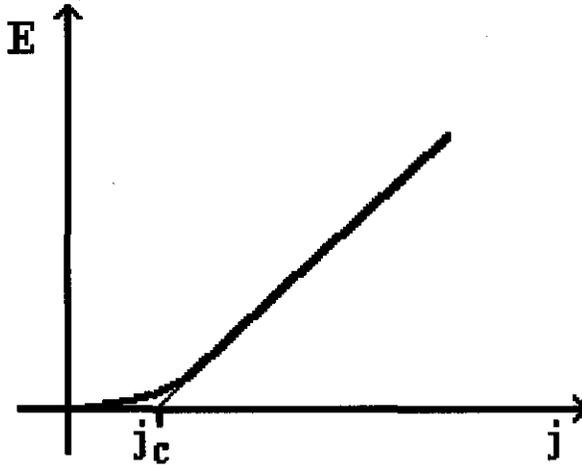


Figura 5: Definição de j_c : extensão da região linear do flux flow até $E=0$.

Com isso podemos calcular a taxa líquida de salto:

$$R_{\text{eff}} = R_+ - R_- = 2\omega_0 \exp(-U_0 / kT) \sinh(U_L / kT) \quad (2.10)$$

Escrevendo a velocidade média dos vórtices como $v=R_{\text{eff}} L$, onde L é a distância média entre centros de aprisionamento (ver figura 4), já que os centros de pinning tem uma distribuição aleatória; temos então que o campo elétrico gerado pelos saltos é:

$$E = \frac{2\omega_0 BL}{c} \exp(-U_0 / kT) \sinh(U_L / kT) \quad (2.11)$$

No limite de baixas densidades de corrente ($j \ll j_0$) podemos escrever o campo elétrico como (usando a definição de U_L e aproximando \sinh pelo seu argumento):

$$E \propto j \exp[-U_0 / kT] \quad (2.12)$$

o que nos dá uma relação linear e ohmica num gráfico $E \times J$. Este regime é chamado de TAFF (Thermally Activated Flux Flow).

Com densidades de correntes próximas a j_c o campo elétrico é dado por (usando a definição de U_L e aproximando \sinh por \exp):

$$E \propto \exp[j] \quad (2.13)$$

cuja característica é uma curvatura positiva num gráfico $E \times j$. Este regime é chamado de flux creep.

O gráfico abaixo (figura 6) apresenta a característica geral das curvas $E \times j$ para uma ampla faixa de corrente englobando todos os efeitos descritos anteriormente.

Resumindo, para $j \ll j_c$ temos o regime TAFF dando uma característica linear e ohmica para a curva $E \times j$. Para $j \sim j_c$ temos o regime de flux creep, cuja característica é um campo elétrico crescendo exponencialmente com a densidade de corrente. E por fim temos o regime de flux flow, cuja característica é um campo elétrico linear com a corrente porém não ohmico.

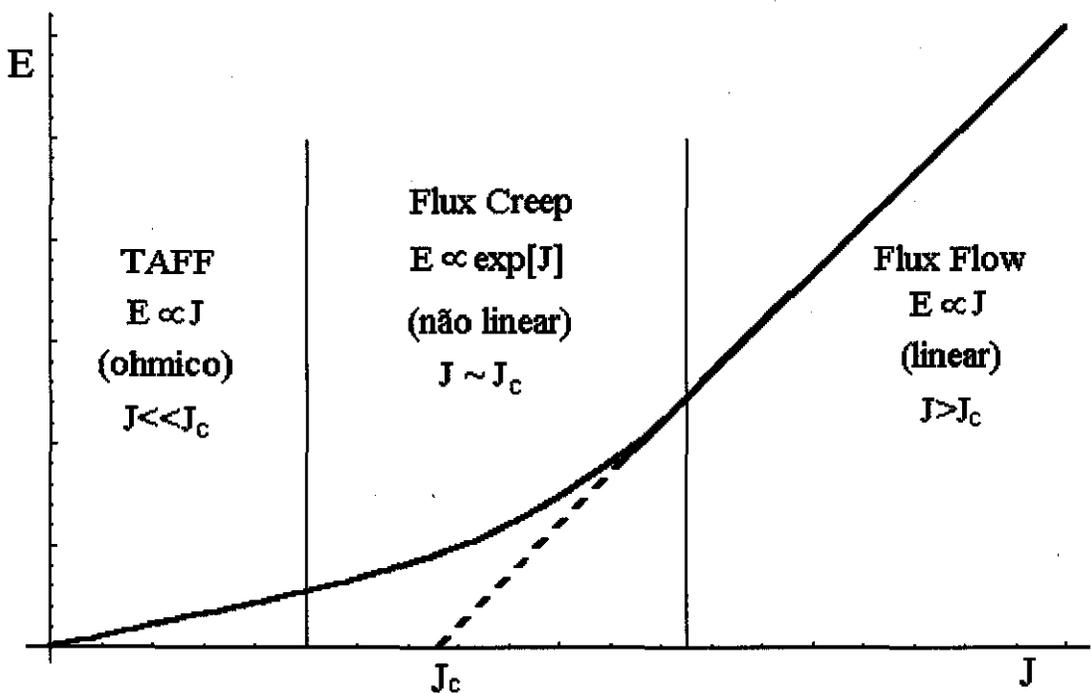


Figura 6: Característica das curvas $E \times j$ para uma ampla faixa de corrente.

A seguir veremos com mais detalhes a teoria de vortex glass que prediz uma resistividade igual a zero para correntes muito menores que j_c , porém finitas, e temperaturas menores que uma certa temperatura de transição T_g .

2.4 Vortex Glass

O modelo de vortex glass [2,3] introduz uma temperatura T_g , onde ocorre uma transição de fase de segunda ordem, abaixo da qual existe o estado de vortex glass (VG) no qual a resistência linear é zero (R no limite $I \rightarrow 0$) e acima T_g ocorrendo um estado de vortex liquid (VL) onde se observa uma resistência linear.

Fisher et al. [3] mostraram a ocorrência da transição de fase VG-VL utilizando argumentos de scaling. Eles definiram um expoente ν que descreve a divergência do comprimento de correlação, ξ_G , do estado vortex glass:

$$\xi_G \approx |T - T_g|^{-\nu} \quad (2.14)$$

e um expoente z para o tempo de relaxação, τ_G :

$$\tau_G \approx \xi_G^z \quad (2.15)$$

Argumentando que o campo elétrico E deve escalar como $1/(\text{comprimento} \times \text{tempo})$ e que J deve escalar como $1/(\text{comprimento})^{D-1}$, onde D é a dimensão do sistema, eles chegaram na relação de scaling

$$\xi_G^{z+1} E \approx \varepsilon_{\pm} (\xi_G^{D-1} J) \quad (2.16)$$

onde ε_{\pm} são diferentes funções de scaling para $T > T_g$ (+) e $T < T_g$ (-).

No estado vortex glass ($T < T_g$) $\varepsilon_{\pm}(x)$ deve ser proporcional a $\exp(-\text{const.}/x^{\mu})$, de modo que o campo elétrico em função da densidade de corrente J tem a forma

$$E(J) \approx \exp[-(J_T / J)^{\mu}] \quad (2.17)$$

com $\mu \leq 1$, cuja característica prediz uma curvatura negativa em gráficos $\log E$ x $\log j$.

Em $T = T_g$ é predito ocorrer uma lei de potência para a característica $I \times V$:

$$E \approx J^{(z+1)/(D-1)} \quad (2.18)$$

E para $T > T_g$ espera-se uma característica ôhmica $E \sim J$ para baixas correntes e lei de potência para correntes altas.

Vários grupos [6,26] observaram comportamentos das curvas $I \times V$ que sugerem uma transição vortex glass - vortex fluid no limite $I \rightarrow 0$. Entretanto há muita discussão na literatura sobre se existe mesmo esta fase vortex glass [27] e se ela ocorre nas regiões inter-grãos ou intra-grãos em amostras policristalinas [8,9].

Veremos a seguir como se comportam os vórtices nas regiões inter-grãos, também conhecido como meio Josephson.

2.5 Materiais Granulares

As cerâmicas supercondutoras de alta temperatura são compostas de grãos ou microcristais acoplados entre si através de junções Josephson [11, 12].

Esses materiais apresentam na transição para o estado supercondutor algumas características específicas da granularidade em suas curvas de resistência, R , em função da temperatura, T . Com a diminuição da temperatura, primeiro, a uma temperatura T_{c0} , a resistência começa a diminuir, indicando o início da perda de resistência dos grãos. Resfriando mais, a resistência diminui continuamente até que a energia de acoplamento Josephson nos elos fracos (weak links) entre os grãos começa a sobrepular as flutuações térmicas e inicia-se então a correlação entre as fases das funções de onda supercondutora dos vários grãos. (Isso aparece como um “joelho” na curva $R \times T$ como veremos no próximo capítulo). Então, a uma temperatura menor, chamada T_c , as funções de onda estão em fase dando uma coerência de longa distância e conseqüentemente $R=0$. Assim,

$$kT_c \approx E_J = \frac{\hbar}{2e} I_c(T_c) \quad (2.19)$$

onde E_J é a energia de acoplamento Josephson entre grãos adjacentes e I_c é a corrente crítica entre grãos, ou I_{cJ} .

Agora veremos como uma amostra granular se comporta quando se aplica um campo magnético externo H com $T \ll T_c$. Para $H < H_{c1J}$, onde H_{c1J} é o campo crítico inferior para o meio Josephson, temos o estado Meissner onde ocorre apenas uma pequena penetração do campo nas junções decaindo exponencialmente num comprimento λ_J devido à corrente de blindagem que circula através das junções (figura 7(a)). Com $H > H_{c1J}$, vórtices começam a penetrar no interior da junção (figura 7(b)). Com isso temos um estado misto só com vórtices Josephson. Os vórtices Josephson, diferentemente dos vórtices Abrikosov, não apresentam núcleo normal, por isso, quando eles se movem, a dissipação ocorre pela corrente induzida na região de penetração do campo magnético na borda dos grãos, de comprimento λ (ver figura 7(b)).

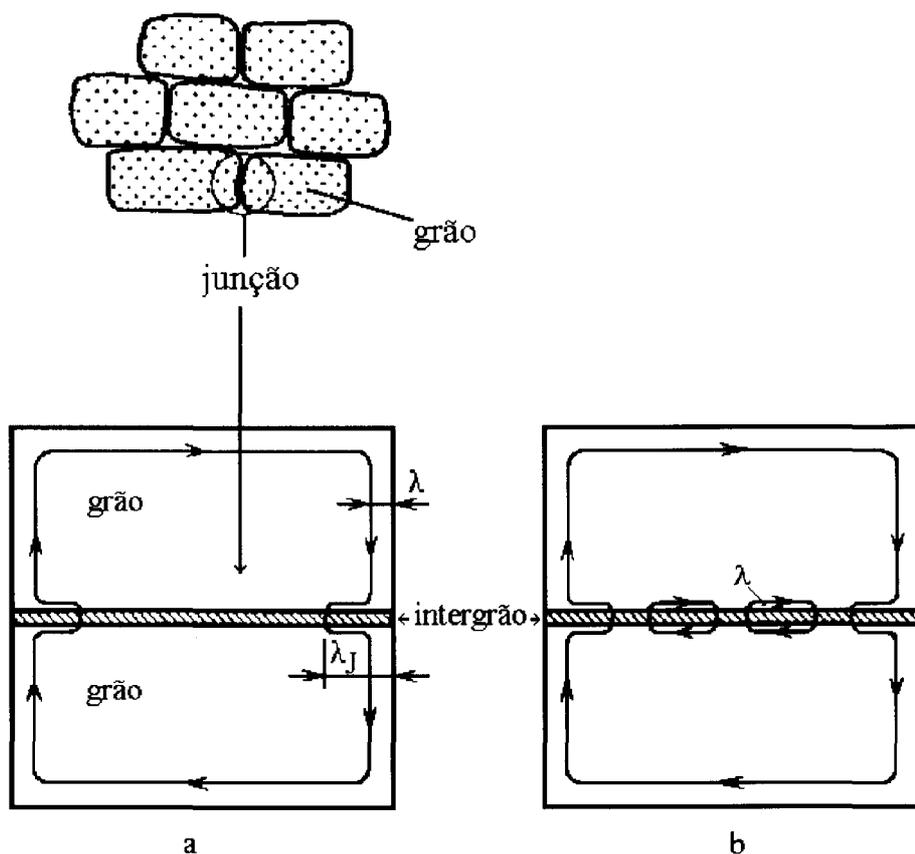


Figura 7: Junção Josephson nos estados Meissner (a) e misto (b).

No campo H_{c2J} , diferentemente de H_{c2A} do meio Abrikosov onde a supercondutividade é destruída, os vórtices Josephson estão tão próximos e sobrepostos que o campo na região entre grãos fica quase homogêneo, mas não há supressão completa da supercondutividade nesta região.

Aumentando mais o campo externo atinge-se $H_{c1A}=H_{c1}$ onde temos a penetração do campo no interior dos grãos formando vórtices Abrikosov com núcleo normal. Neste campo temos um estado misto com vórtices Abrikosov e Josephson.

Clem [11] e Tinkham [12] desenvolveram modelos para calcular H_{c1J} , λ_J , H_{c2J} e outros parâmetros. Nesses modelos eles chegaram nos seguintes resultados, com pequenas diferenças entre eles:

$$H_{c1J} = (\phi_0 / 4\pi\lambda_J^2) \ln \kappa_J \quad (2.20)$$

$$\lambda_J = (c\phi_0 / 8\pi^2 a J_{cJ})^{1/2} \quad (2.21)$$

$$H_{c2J} = \frac{3\pi\phi_0}{8a^2} \quad (2.22)$$

a menos de algumas constantes estas equações são análogas às do meio Abrikosov, apenas mudando ξ por a , o diâmetro médio dos grãos. J_{cJ} é a densidade de corrente crítica da junção, $J_{cJ}=I_{cJ}/a^2$.

Uma vez que esses materiais granulares apresentam dois meios onde existem vórtices distintos, é de interesse encontrar uma forma de distinguir qual tipo de vórtice dominará nos processos dissipativos quando $H>H_{c1A}$. Para distinguir entre a dissipação devido aos vórtices Josephson e aos vórtices Abrikosov podemos usar o sentido (horário x anti-horário) da histerese das medidas de magneto-resistividade ou $V(H)$ para amostras granulares. Numa amostra granular, como dito anteriormente, o fluxo penetra primeiro na região inter-grãos, gerando portanto dissipação no meio Josephson. Assim, para

$H_{c1J} \leq H \leq H_{c1A}$ a resistência observada ou tensão medida é devido ao movimento (dissipação) dos vórtices Josephson (JV), já que não existem vórtices Abrikosov (AV). Para $H \geq H_{c1A}$, como temos os dois tipos de vórtices, vamos analisar o comportamento da histerese de $V(H)$ para dois casos, primeiro de como seria a histerese de $V(H)$ só devido a JV e depois só a AV.

Supondo uma amostra policristalina em um campo magnético H crescente, a partir de H_{c1A} , o fluxo começa a penetrar na região intra-grão, fazendo com que haja uma mudança na taxa de crescimento de V com H , isto porque a densidade de vórtices no meio Josephson já não aumenta com a mesma taxa, pois o aumento de H causa um aumento de AV.

Diminuindo-se o campo ocorre histerese e observa-se uma tensão menor para um mesmo campo, H_x , figura 8(a), isso é devido ao pinning dos vórtices no interior dos grãos, que reduzem a indução magnética, B_J , no meio Josephson.

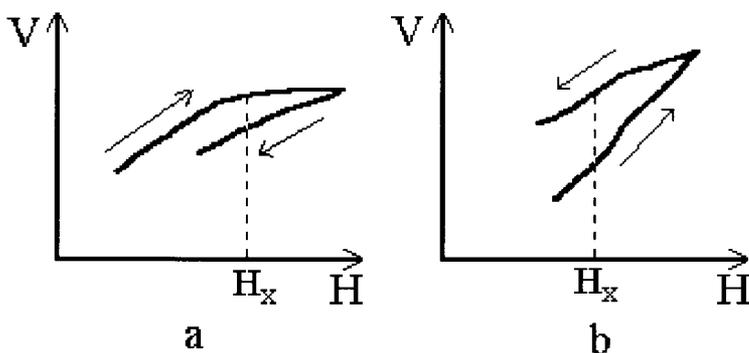


Figura 8: Diferença na curva $V(H)$ para dissipação intergranular (a) e intragranular (b).

Já foi mostrado [7] que a tensão gerada, neste caso é proporcional a indução magnética no interior da junção, B_J , que por sua vez é proporcional ao número de vórtices, ou seja: $V \sim B_J \sim n\phi_0$. Então com a diminuição de H até H_x temos um número n de vórtices Josephson menor com uma tensão menor.

Assim, quando $V(H)$ tem a forma da figura 8(a), com uma histerese no sentido horário, temos dissipação devido aos vórtices do meio Josephson.

Caso a dissipação seja devida apenas aos vórtices Abrikosov, vamos supor um monocristal ou apenas um grão em um campo magnético crescente, quando $H > H_{c1A}$, espera-se que a curva $V(H)$ tenha um comportamento como mostrado na figura 8(b), ou seja, com a diminuição do campo magnético temos uma dissipação maior para um mesmo valor de campo, H_x , pois haverá um número maior de vórtices no interior dos grãos devido ao pinning. Então quando a dissipação ocorre devido aos vórtices do meio Abrikosov observa-se uma histerese na magneto-resistência no sentido anti-horário.

Do exposto acima pode-se diferenciar em qual meio ocorre a dissipação quando se aplica uma corrente externa. Para histerese no sentido horário em $V(H)$ temos dissipação devido aos vórtices do meio Josephson, enquanto que para histerese no sentido anti-horário temos dissipação devido aos vórtices do meio Abrikosov.

Uma forma semelhante de distinguir a origem da dissipação ($V_J \times V_A$) seria através da histerese das curvas de $I_c(H)$, só que nestas o sentido da histerese é invertido, ou seja, por exemplo para vórtices Josephson a histerese em $I_c(H)$ é anti-horária [35].

No capítulo seguinte descreveremos a preparação e caracterização das amostras e o sistema de medidas.

CAPÍTULO 3

PARTE EXPERIMENTAL

Neste capítulo descreveremos o sistema de medidas de resistividade, magneto-resistividade e curvas $I \times V$ em função do campo magnético, e daremos as características das amostras utilizadas nesta tese, apresentando como elas foram preparadas. Das amostras utilizadas a Bi(2223) foi por nós preparada, em trabalho anterior [17], e as demais já se encontravam prontas. Descreveremos também as técnicas utilizadas na confecção dos contatos elétricos que são fundamentais para se ter uma boa medida.

3.1 Preparação das amostras

Três amostras de alta qualidade e bem caracterizadas foram estudadas nesta tese: duas amostras de $Y_1Ba_2Cu_3O_{7-8}$, Y(123), uma com grãos pequenos denominada Y(123)P e outra com grãos grandes denominada Y(123)G, e uma amostra de $Bi_2Sr_2Ca_2Cu_3O_{10}$, denominada Bi(2223). A seguir apresentamos em detalhes como estas amostras foram preparadas e os tratamentos térmicos utilizados que resultaram nestas amostras.

3.1.1 Bi(2223)

A amostra de Bi(2223), de composição nominal $\text{Bi}_{1,7}\text{Pb}_{0,3}\text{Sr}_2\text{Ca}_3\text{Cu}_4\text{O}_x$, foi preparada usando pós de Bi_2O_3 , PbO , SrCO_3 , CaCO_3 , CuO (Aldrich) com alta pureza ($\geq 99,99\%$) na proporção estequiométrica indicada acima para a otimização da fase desejada conforme proposto por Shi et al. [22]. A introdução de Pb e a adição de Ca e Cu em excesso melhora a qualidade da amostra em termos de homogeneidade e aumenta a fração volumétrica da fase 2223 [23, 24]. Depois de misturados os pós por aproximadamente 30 minutos em um almofariz, o pó resultante foi transferido para um cadinho de Al_2O_3 para a calcinação em um forno Lindenberg (modelo 51333 com controlador modelo 58125-P) a 800°C por 14 horas em ar. Após este tratamento, o pó foi moído novamente para a primeira sinterização a 850°C por 14 horas em ar. Para a segunda sinterização o pó foi moído e prensado em forma de pastilha com 1 cm de diâmetro e 5 mm de espessura. A pressão utilizada para a prensagem foi de 500MPa. Nesta sinterização o tratamento térmico foi de 850°C por 100 horas em ar. Com isso se conseguiu uma amostra com densidade geométrica (a partir da geometria e massa da amostra) de $\rho=4,01 \text{ g/cm}^3$, o que corresponde a 63% da densidade teórica para este composto ($\rho_t=6,36 \text{ g/cm}^3$).

3.1.2 Y(123)

Estas amostras de Y(123) já se encontravam prontas antes do início deste trabalho, mas a seguir descreveremos como elas foram preparadas.

A primeira amostra de 123, chamada Y(123)G, de composição $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-8}$ foi preparada a partir dos pós de óxidos e carbonatos Y_2O_3 , BaCO_3 e CuO (Aesar, $\geq 99,9\%$). O pó resultante depois de misturado por 30 min. foi prensado em pastilhas de 2,5cm de diâmetro a uma pressão de 61MPa.

O tratamento de calcinação consistiu de um período de 20 horas a 900°C em ar. Após este tratamento ela foi novamente moída e prensada recebendo novo tratamento térmico de 28 horas a 910°C em ar. Após ser moída e prensada novamente com a mesma pressão (61MPa), recebeu um último tratamento térmico em fluxo de O₂ de 48 horas a 970°C, sendo resfriada a 4°C/min. até 700°C, temperatura em que a amostra ficou por 8 horas. Com este tratamento térmico, os grãos alcançaram um tamanho médio de 18μm nesta amostra, como veremos mais adiante.

A amostra apresentou uma densidade geométrica de 81,8% da densidade teórica ($\rho_T=6,37 \text{ g/cm}^3$) do composto Y(123).

A segunda amostra de 123, por nós chamada de Y(123)P, de composição YBa₂Cu₃O₇₋₈ foi preparada a partir do pó de 123 pré-reagido fornecido pelo Argonne National Laboratory. Este material foi desidratado, moído e peneirado num filtro de 400 mesh (equivalente a 37μm). O pó resultante foi prensado em pastilhas de 2,5cm de diâmetro a uma pressão de 61MPa. O tratamento térmico consistiu de um período de 24 horas a 955°C após isso a temperatura foi reduzida até 700°C a uma taxa de 15°C/h onde ficou por 30 minutos sendo novamente reduzida até 500°C numa taxa de 50°C/h, sempre em fluxo de O₂. Com este tratamento térmico, os grãos alcançaram um tamanho médio de 3μm nesta amostra.

Esta amostra apresentou densidade geométrica de 86,4% da densidade teórica para o composto Y(123).

Na preparação destas amostras usou-se já no começo da calcinação e sinterização amostras na forma de pastilhas para se diminuir a contaminação das mesmas pelo cadinho de Al₂O₃.

A diferença nos tamanhos dos grãos está diretamente ligada ao tratamento térmico a que cada amostra foi submetida. Quanto mais perto da temperatura de fusão e quanto maior o tempo de tratamento maior o grão que se forma.

3.2 Caracterização das amostras

Para verificar que temos uma fase pura e outras caracterizações das amostras usamos técnicas de raio-x (método de pó, geometria $\theta - 2\theta$ e rocking curves), microscopia óptica e eletrônica (SEM), metalografia e medimos os parâmetros e características supercondutores (T_c , ΔT_c , H_c 's e $M(H,T)$) usando as técnicas de susceptibilidade AC, magnetização e resistividade elétrica DC.

3.2.1 Bi(2223)

Os espectros de difração de raio-x do pó de Bi(2223) para radiação Cu $K\alpha$ com filtro de Ni foram medidos entre $4^\circ \leq 2\theta \leq 50^\circ$ com um difratômetro Phillips modelo PW1710. Indexando os picos de difração de raio-x com uma estrutura ortorômbica e usando um programa de refinamento de mínimos quadráticos pudemos determinar os parâmetros de rede das amostras. Para a amostra Bi(2223) esses parâmetros são $a=5,51 \pm 0,01 \text{ \AA}$, $b=5,19 \pm 0,01 \text{ \AA}$ e $c=37,28 \pm 0,03 \text{ \AA}$ e estão em bom acordo com os valores mencionados na literatura [14]. Na figura 9 abaixo segue um difratograma desta amostra. É importante observar que a baixo ângulo existe somente um pico ((002) em $2\theta=4,9^\circ$) que caracteriza a fase pura do Bi(2223). Caso houvessem outras fases presentes na amostra, por exemplo a fase 2212 ou 2201, devido ao grande tamanho do eixo c nestes materiais, apareceriam outros picos significantes entre 5° e 9° [24] que permitiriam distinguir as diferentes fases.

Esta amostra apresenta uma alta orientação preferencial dos grãos na direção do eixo c, resultado da técnica de compressão uniaxial a frio utilizada [23]. Esta orientação foi confirmada por raio-x através de “rocking curves”. Os picos de difração (0 0 10) e (0 0 14) apresentaram uma largura a meia altura de

7°, que é similar aos melhores valores reportados na literatura para fitas de Bi:2223 [15,16].

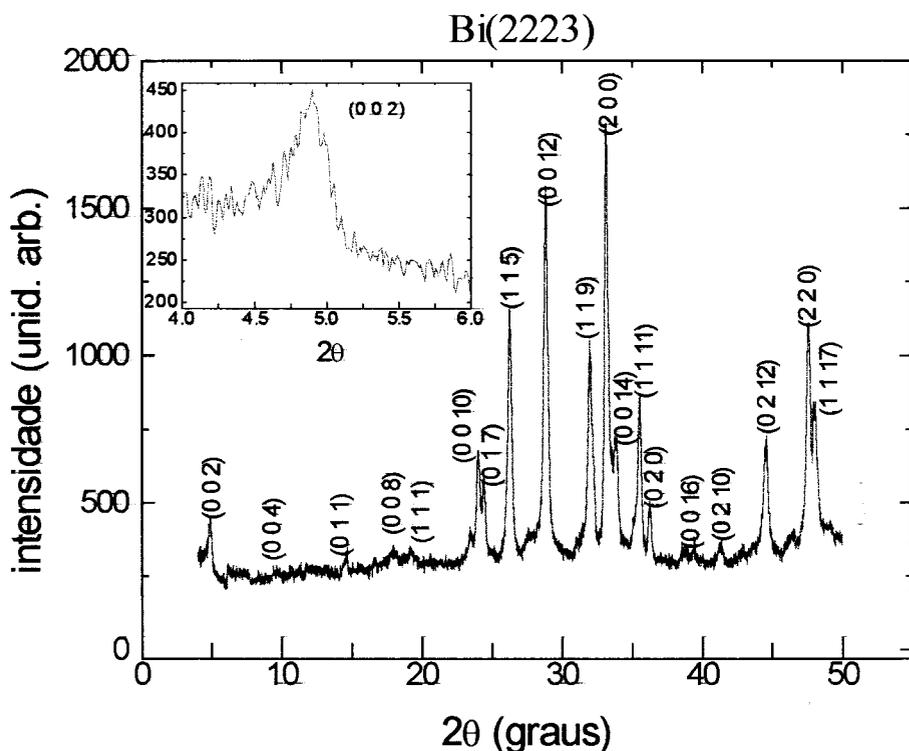


Figura 9: Espectro de difração de raio-x do pó da amostra Bi(2223)

Para se determinar o tamanho do grão da amostra utilizamos técnicas de metalografia com luz polarizada e microscopia por varredura de elétrons (SEM). Abaixo (figura 10) está uma foto tirada utilizando um microscópio por varredura de elétrons. Os grãos tem a forma de plaquetas de tamanho médio $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ no plano ab com uma espessura de $0,6 \mu\text{m}$ ao longo do eixo c. Na foto observa-se claramente o alinhamento paralelo dos grãos numa orientação preferencial.



Figura 10: Foto de SEM da amostra Bi(2223). Ampliação 29750x.

Medindo-se a resistência da amostra em função da temperatura, T , pelo método de quatro pontas, que será descrito mais adiante, observa-se que a transição supercondutora para $H=0$ ocorre em $T_c(50\%)=109\text{K}$ com uma largura $\Delta T_c(10-90\%) \approx 3\text{K}$. No gráfico abaixo (figura 11) vê-se tal transição. Observa-se também que aumentando a corrente de medida de 10mA para 100mA fica claro que o joelho da curva $R \times T$ se deve ao acoplamento intergranular, mencionado no capítulo 2. Observa-se um comportamento ôhmico para T acima de 108K , ou seja, uma resistência independente da corrente. Abaixo desta temperatura, vê-se que para correntes diferentes temos resistências diferentes. No estado normal esta amostra apresenta uma característica metálica, com uma resistência linear em T .

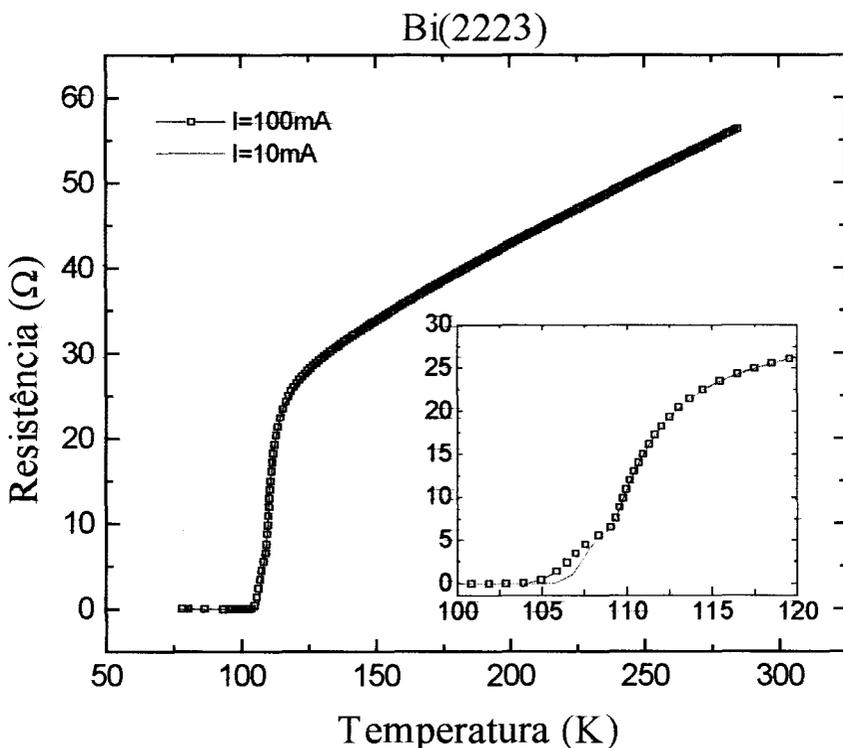


Figura 11: Medida da resistência da amostra Bi(2223)

3.3.2 Y(123)

Utilizando as mesmas técnicas de difração de raio-x (θ - 2θ) e os métodos descritos anteriormente determinamos os parâmetros de rede para as amostras de Y(123). Para a amostra Y(123)G temos $a=3,817 \pm 0,001 \text{ \AA}$, $b= 3,884 \pm 0,002 \text{ \AA}$ e $c=11,685 \pm 0,004 \text{ \AA}$. Para a amostra Y(123)P temos $a=3,818 \pm 0,001 \text{ \AA}$, $b=3,885 \pm 0,002 \text{ \AA}$ e $c=11,656 \pm 0,004 \text{ \AA}$. Estes valores estão em muito bom acordo com a literatura [29]. Abaixo (figuras 12 e 13) seguem os difratogramas das amostras de Y(123). Misturou-se Si (grau semiconductor) para servir de referência como um padrão interno para aumentar a precisão das medidas fazendo as correções para os erros instrumentais.

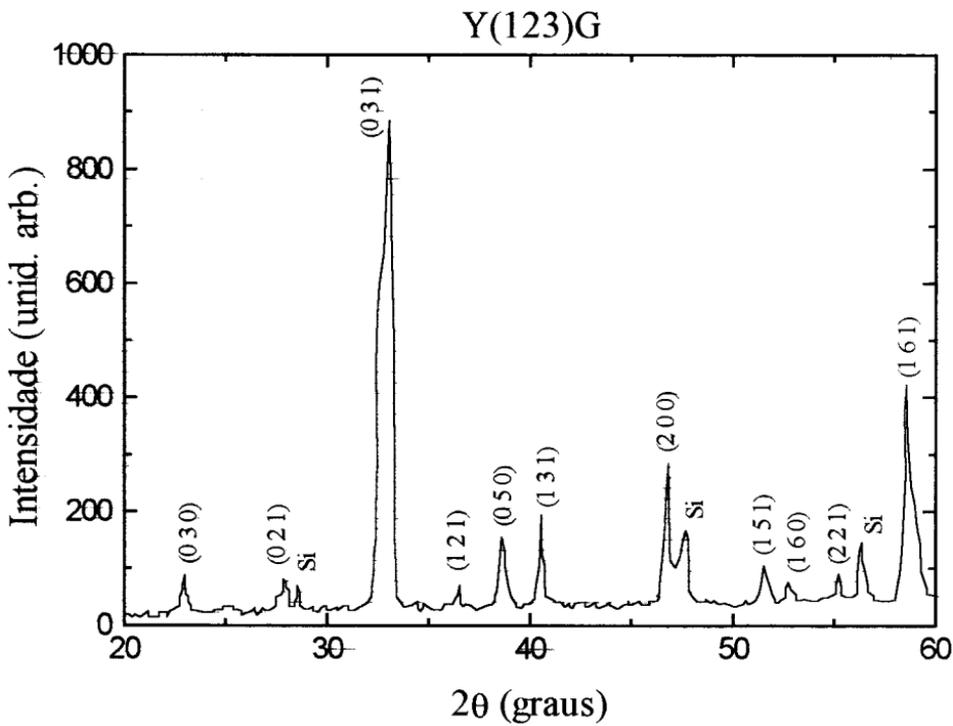


Figura 12: Espectro de difração de raio-x do pó da amostra Y(123)G

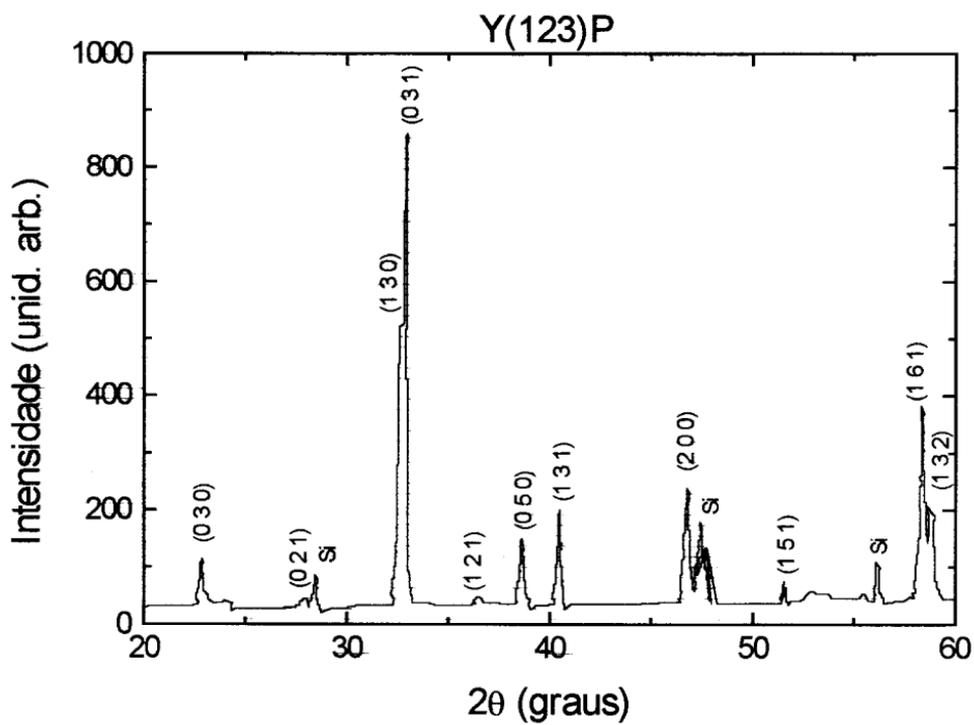


Figura 13: Espectro de difração de raio-x do pó da amostra Y(123)P.

A pureza das amostras pode ser comprovada pela ausência de picos de difração correspondentes a outras fases secundárias que poderiam estar presentes (Nota: nas figuras 12 e 13 usamos um scanner para a apresentação dos difratogramas o que causou uma aparente perda de resolução que não ocorre nos dados originais).

Nestas duas amostras as temperaturas de transição supercondutora, T_c , e as larguras destas transições (10%-90%) foram medidas por susceptibilidade AC ($H_{AC} = 0,10e$, $f = 16Hz$). Na figura 14 abaixo mostramos estas medidas. Para estas amostras encontramos transições em $T_c = 90K$ com $\Delta T_c \approx 2K$ para a Y(123)P; e $T_c = 92K$ e $\Delta T_c \approx 2,5K$ para a Y(123)G.

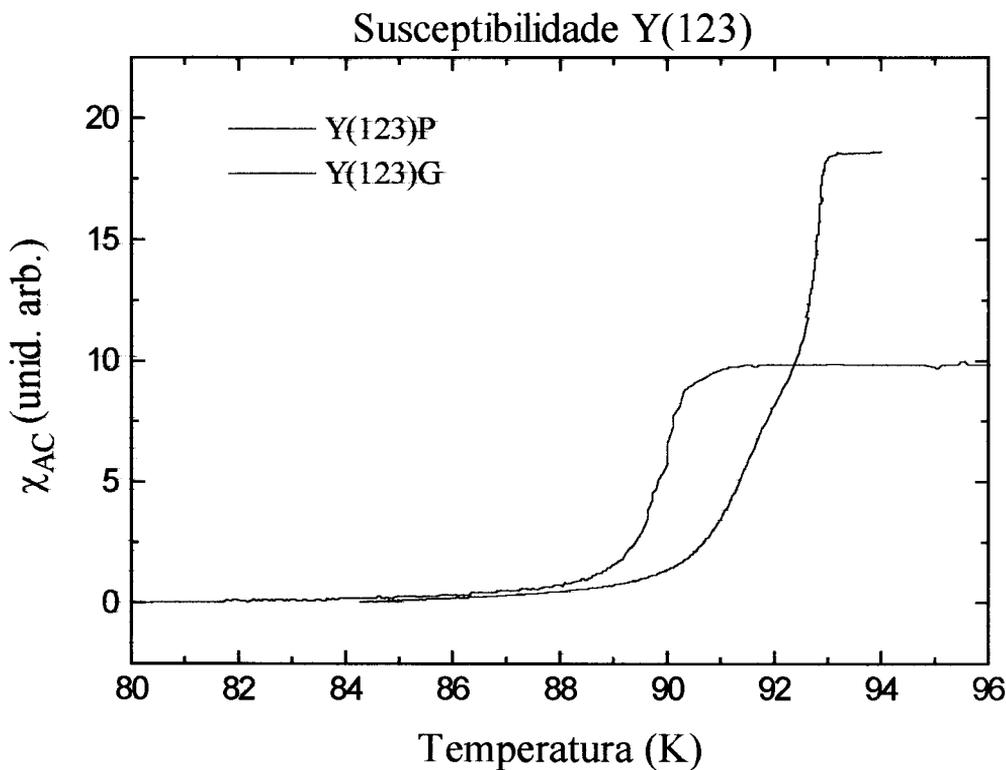


Figura 14: Susceptibilidade AC para as amostras Y(123)P e Y(123)G.

Como dissemos anteriormente, o tamanho dos grãos foi determinado utilizando-se técnicas de metalografia. A seguir apresentamos algumas fotos feitas utilizando-se microscopia por varredura de elétrons.

As fotos abaixo correspondem às amostras Y(123)P e Y(123)G. Observa-se claramente a diferença no tamanho dos grãos das duas amostras devido à diferença de tratamento térmico a que as amostras foram submetidas. Quanto maior o tempo de tratamento, maior o tamanho do grão que se forma.

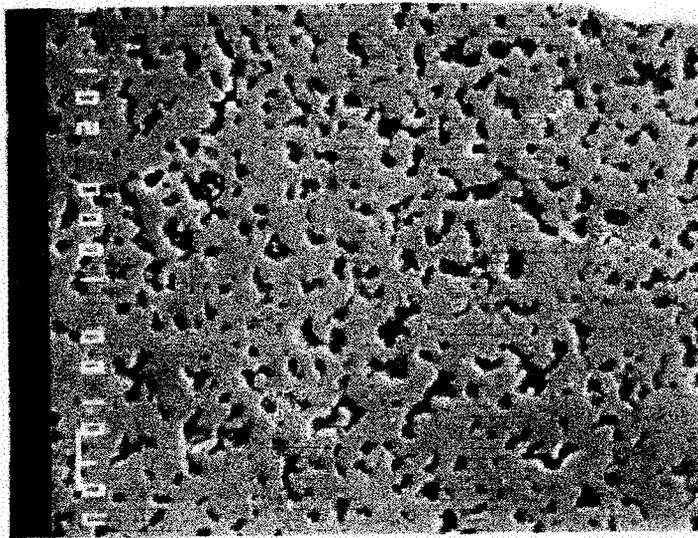


Figura 15: Foto da amostra Y(123)P, grãos da ordem de $3\mu\text{m}$. Ampliação de 1200x.

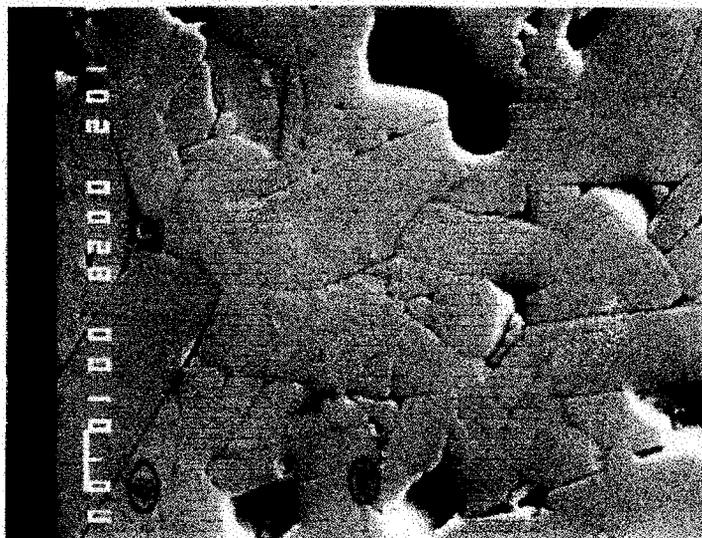


Figura 16: Foto da amostra Y(123)G, grãos da ordem de $18\mu\text{m}$. Ampliação de 1000x.

Nestas fotos as partes escuras são buracos vazios causados em parte pela compactação não perfeita dos grãos e em parte por grãos arrancados durante o processo de polimento a que foram submetidas estas amostras. Na figura 16 vê-se claramente a forma dos grãos. As regiões marcadas em vermelho representam pequenas quantidades CuO nas regiões de junção dos grãos identificado através de EDX (x-ray energy dispersion analysis) mas que não foi detectado nas medidas de raio-x.

Utilizando luz polarizada num microscópio ótico pode-se ver claramente os grãos, sua distribuição de tamanhos e mesmos os “twins” no interior dos grãos de ambas as amostras. Abaixo estão as fotos das amostras Y(123)P e Y(123)G.



Figura 17: Foto com luz polarizada da amostra Y(123)P. Aumento de 16x100.



Figura 18: Foto com luz polarizada da amostra Y(123)G. Aumento 16x100.

Cabe aqui ainda comentar que estas amostras de Y(123) apesar de apresentarem grande diferença no tamanho dos grãos elas tem parâmetros cristalográficos e T_c muito parecidos.

3.3 Contatos elétricos

Para realizar as medidas de transporte as amostras foram cortadas e polidas com uma geometria bem definida (na forma de barras de comprimento $\sim 10\text{mm}$ e secção transversal $\sim 1 \times 1 \text{ mm}^2$) e os contatos elétricos feitos depositando-se Au por sputtering em certas regiões da amostra (ver figura abaixo). Após a deposição do ouro, fizemos um tratamento térmico na amostra para a difusão do ouro e conseqüentemente melhorar os contatos elétricos. Este tratamento consistiu em deixar a amostra 2 horas a 250°C em ar atmosférico. Os contatos elétricos na amostra foram feitos através de fios de ouro de $50 \mu\text{m}$

de diâmetro colados nas amostras nas regiões onde se depositou ouro. Deste modo conseguimos contatos com resistência da ordem de 10Ω .

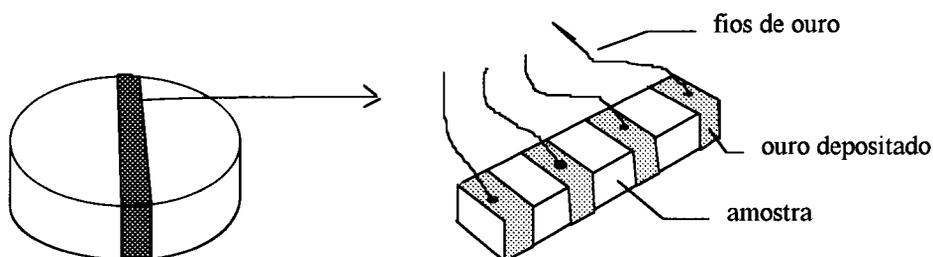


Figura 19 - Esquema de amostra com fios já colados

Na amostra Bi(2223) os contatos foram feitos fundindo-se os fios de ouro na amostra. Para isso usamos um transformador Variac que controla a tensão imposta sobre a amostra, esta tensão é aplicada através de uma ponta de grafite, sendo o circuito fechado com o fio de ouro tocando a amostra. Com isso o fio de ouro se funde à amostra devido ao efeito Joule no ponto de contato entre o fio de ouro e a amostra, o que dá uma boa rigidez mecânica. Após ter fundido o fio com a amostra, recobrimos os contatos com tinta prata para termos um bom contato elétrico, já que somente o contato com o fio fundido apresentava geralmente uma resistência da ordem de 300Ω . Com esta técnica conseguimos contatos com resistência de aproximadamente 8Ω . Antes de se chegar a este resultado nós tentamos utilizar somente a tinta prata para colar os contatos, sem a fusão dos fios de ouro na amostra, mas esta técnica não se apresentou adequada devido a sua fragilidade mecânica. Depois de alguns ciclos de medidas, esfriando e esquentando a amostra, os contatos soltavam por inteiro, impossibilitando continuar com as medidas.

Já para a amostra Y(123)P, a utilização de tinta prata não apresentou problemas, mesmo depois de muitos ciclos os contatos continuavam apresentando a mesma resistência, da ordem de $15-20\Omega$ e boa rigidez mecânica.

Com a amostra Y(123)G nenhuma das técnicas descritas acima apresentou resultado satisfatório. Neste caso tivemos que utilizar cola epoxi condutora para a confecção dos contatos. Esta cola necessita ser curada para ter rigidez, sendo assim a amostra sofreu outro tratamento térmico, agora para curagem da cola, 2 horas a 250°C. Os contatos desta amostra apresentaram resistência de aproximadamente 5Ω.

Vale lembrar que todas essas técnicas foram testadas com todas as amostras, mas as amostras responderam diferentemente a cada técnica, sendo que as que apresentaram menor resistência elétrica dos contatos foram utilizadas para as medidas. Por isso para cada amostra utilizou-se uma técnica diferente para a colagem dos contatos.

3.4 Sistema para medidas de resistividade, magneto-resistividade e curvas IxV

Para as medidas de resistividade elétrica, curvas IxV e magneto-resistividade construímos, durante a iniciação científica, um sistema de medidas que consiste de um suporte de amostra que é inserido no criostato de pirex do laboratório. Este suporte de amostra é formado basicamente de um tubo de inóx de paredes finas (~0,25 mm) para menor condutividade térmica. Tem em uma de suas extremidades uma lâmina de safira onde está colado com verniz GE7031 em uma das faces um termômetro do tipo diodo de silício calibrado (LakeShore, modelo DT-470-SD-13) e na outra face da safira temos a amostra colada com graxa de vácuo. Na outra extremidade do tubo temos a saída dos fios blindados (4 para a amostra, 4 para o termômetro e 2 para correntes maiores) onde é conectado um cabo que leva o sinal até os equipamentos. Deste modo, passamos corrente e medimos a diferença de potencial na amostra utilizando o método de quatro pontas.

Para a aquisição de dados desenvolvemos o software que consiste em programas escritos em Microsoft QuickBasic que controlam os equipamentos através de uma interface GPIB Omega. Os equipamentos utilizados são duas fontes de corrente Keithley 228A para gerar o campo magnético, um nanovoltímetro Keithley 181 para medir a diferença de potencial na amostra e uma fonte de corrente Keithley 225 manual (sem GPIB) para se passar corrente na amostra.

Para se medir curvas $I \times V$ e magneto-resistividade é utilizado um magneto com campo máximo de 1000 Oe gerados quando se passa 2A e remanência zero ($< 0,5$ Oe) construído com fios de cobre enrolados sobre um tubo de PVC que é fixado dentro do dewar. O magneto foi calibrado utilizando-se um sensor de campo do tipo Hall. O magneto apresenta uma região de campo homogêneo da ordem de 4 cm a partir do centro do magneto.

Para as medidas de resistividade usamos uma fonte 228A para passar corrente pela amostra e medimos a tensão usando o nanovoltímetro 181. A temperatura é lida utilizando-se um controlador de temperatura LakeShore DRC-93CA conectado ao termômetro do suporte de amostra. A temperatura é variada elevando-se ou abaixando-se o suporte de amostra com relação ao nível do líquido criogênico (He ou N_2 líquido) no interior do criostato. Esta altura é controlada através de um motor de passo que sobe e desce o suporte dentro do criostato.

Para as medidas de magneto-resistividade utilizou-se um programa que controla as fontes de corrente Keithley 228A para o campo magnético, aumentando-o em passos de 1 Oe, e faz a leitura da variação de tensão na amostra através do nanovoltímetro 181. Para se passar corrente na amostra utilizou-se a fonte manual Keithley 225. O programa foi feito de modo a se ter a possibilidade de medir tanto aumentando como diminuindo o campo entre -1000 Oe e 1000 Oe. As medidas aqui descritas foram feitas sempre com a seguinte sistemática: resfria-se a amostra partindo-se da temperatura ambiente até 77K (todas as medidas foram feitas em N_2 líquido) sem campo magnético

aplicado (ZFC - Zero Field Cooled). Aplica-se a corrente desejada e mede-se a tensão aumentando o campo aplicado de zero até 1000 Oe (ou outro valor desejado), diminuindo até -1000 Oe e aumentando novamente até zero Oe.

Para as medidas de curvas $I \times V$ utilizamos a fonte 225 para passar a corrente na amostra variando de 100nA a 100mA. O campo magnético é aplicado pelas duas fontes 228A depois que a amostra já se encontrava em 77K. Como a fonte 225 é manual tivemos que alterar manualmente a corrente a cada ponto coletado. As medidas foram feitas aumentando-se a corrente até 100mA e diminuindo-se até um valor de corrente em que se tinha uma tensão superior ao ruído. Entre cada medida levava-se a amostra para o estado normal ($T \gg T_c$) para destruir a supercondutividade completamente.

No próximo capítulo vamos apresentar em detalhes os resultados obtidos.

CAPÍTULO 4

RESULTADOS EXPERIMENTAIS

Neste capítulo apresentaremos os resultados experimentais obtidos utilizando-se os métodos de medidas descritos no capítulo anterior. Faremos aqui apenas a apresentação dos resultados e frisaremos alguns detalhes que serão úteis no próximo capítulo, onde concluiremos com as análises e interpretações.

As medidas de magnetização foram feitas utilizando-se um magnetômetro com sensor SQUID comercial modelo MPMS-5 fabricado pela Quantum Design.

O levantamento das curvas características $I \times V$ foram feitas a temperatura do nitrogênio líquido, 77K, com ZFC. As curvas $I \times V$ foram feitas aumentando-se e diminuindo-se a corrente. Para cada nova medida a amostra era levada ao estado normal ($T > T_c$) e resfriada novamente em ZFC.

Para as medidas de magneto-resistividade, a amostra era resfriada a ZFC, aplicava-se a corrente desejada e variava-se o campo magnético máximo entre -1000 Oe 1000 Oe com incrementos de 1 Oe.

Nas medidas de magneto-resistência e curvas $I \times V$ plotamos sempre $V(H)$ e $V(I)$ e não $\Delta R(H)/R$ ou $R(I)$ pois a definição de resistência $R=V/I$, que é a inclinação da reta $V(I)$ só é válida quando temos comportamento ohmico o que não ocorre na maioria de nossas medidas. Se aplicássemos esta definição o resultado não seria a resistência, mas um valor sem significado físico. Uma

outra forma é utilizar a chamada resistência dinâmica $dV/dI=R_d$, que representa a inclinação da reta tangente a cada ponto da curva medida.

4.1 Amostra Bi(2223)

A seguir apresentaremos os resultados obtidos para a amostra Bi(2223). Mostraremos as medidas de magnetização tanto da amostra em pó como maciça. Dessas medidas construiremos o diagrama $H \times T$. Mostraremos as características $I \times V$ e as curvas de magneto-resistividade.

4.1.1 Magnetização

Apresentamos aqui as medidas de magnetização feitas nesta amostra de Bi(2223) [17] principalmente para se localizar no diagrama de fases $H \times T$ onde as medidas de transporte foram feitas.

Abaixo (figura 20) está uma das medidas (ZFC) de magnetização feitas num pedaço maciço da amostra Bi(2223). Observa-se uma região reversível acima de 1500 Oe para esta temperatura. Este ponto, chamado de ponto de irreversibilidade, é dependente da temperatura. Determinando-se este ponto para várias temperaturas pode-se montar a linha de irreversibilidade que separa a região com vórtices aprisionados da região com vórtices livres.

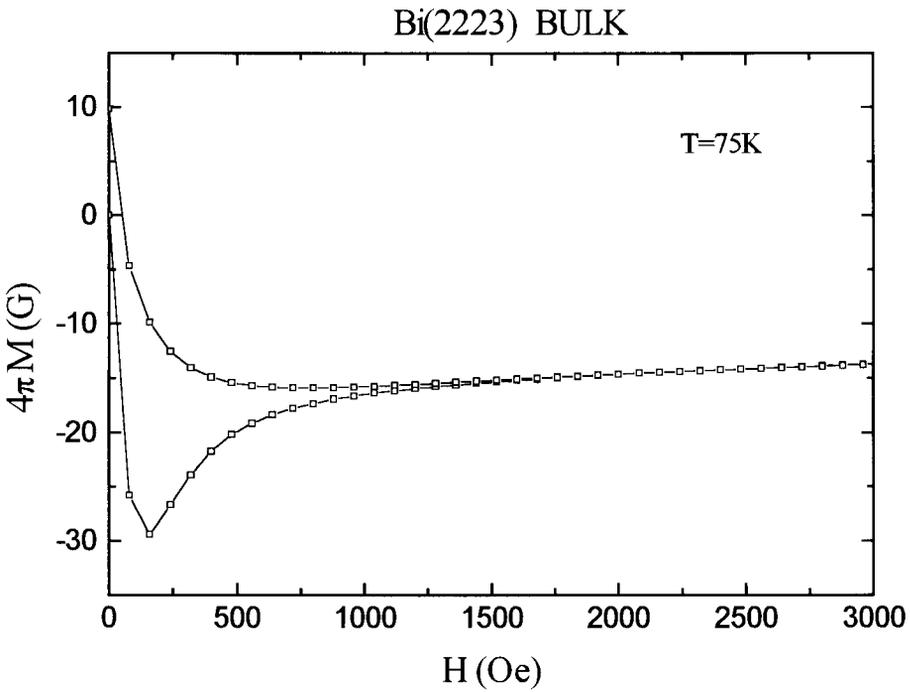


Figura 20: Magnetização em função do campo aplicado para a amostra Bi(2223) BULK a 75K.

Medindo-se a magnetização para campos e temperaturas mais baixos (figura 21), observa-se duas regiões lineares com inclinações distintas. A primeira refere-se ao efeito Meissner, onde o campo magnético não penetra no interior da amostra. Quando a curva de magnetização se afasta desta primeira reta, ocorre a penetração de campo nas regiões inter-grãos, formando os chamados vórtices Josephson e definindo H_{c1J} . Aumentando o campo observa-se uma nova reta com inclinação diferente da primeira. Nesta região de campo, ocorre a blindagem dos grãos ao campo magnético, ou seja, os grãos ainda estão no estado Meissner. Aumentando o campo mais um pouco, observa-se novamente um afastamento da curva de magnetização da reta. Neste ponto ocorre a penetração de campo no interior dos grãos, formando os chamados vórtices de Abrikosov e definindo H_{c1A} . A partir deste campo há a coexistência dos dois tipos de vórtices no interior da amostra.

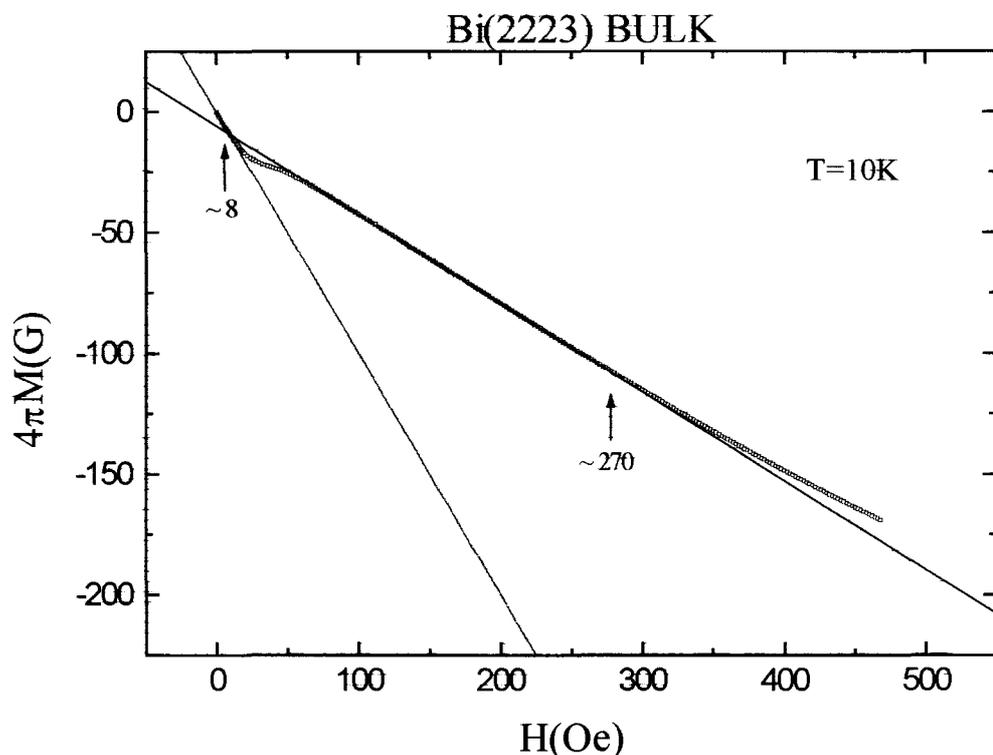


Figura 21: Magnetização para baixos campos para a amostra Bi(2223) BULK a 10K.

Medimos também a magnetização (ZFC) em função do campo magnético aplicado para a mesma amostra Bi(2223) depois desta ter sido moída e transformada em pó. Observou-se o mesmo comportamento que a amostra maciça, com os mesmos valores para a linha de irreversibilidade.

Entretanto, quando se mede a magnetização a baixos campos encontra-se somente uma inclinação da curva. Isto se deve ao desacoplamento dos grãos quando a amostra é um pó. No gráfico a seguir (figura 22) apresentamos tal curva.

Bi(2223) PÓ

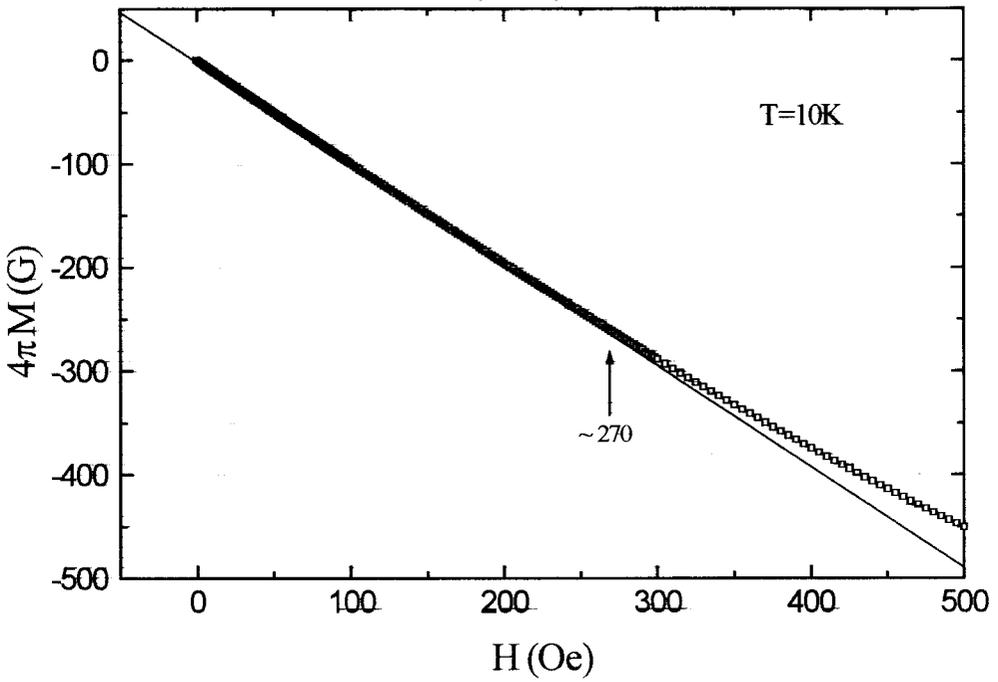


Figura 22: Magnetização para a amostra Bi(2223) PÓ para baixos campos a 10K.

Observa-se, do mesmo modo que para a amostra maciça, a penetração de campo dentro dos grãos. Neste caso não temos os vórtices Josephson nas regiões inter-grãos, mas somente os vórtices Abrikosov nas regiões intra-grãos.

Então, como dissemos anteriormente, medindo-se para a amostra maciça a magnetização para várias temperaturas e determinando os pontos em que ocorre a irreversibilidade, a primeira divergência da primeira reta e a divergência da segunda reta podemos montar um diagrama de fases para esta amostra. Observa-se três regiões distintas: a primeira, abaixo da linha de H_{c1J} é o chamado estado Meissner, a segunda, acima desta e abaixo da linha de H_{c1A} é a região onde existe somente os vórtices Josephson na região inter-grãos, a terceira região está acima de H_{c1A} onde existem os dois tipos de vórtices. Acima da linha de irreversibilidade (IL) os vórtices estão livres para se movimentarem. Este diagrama está mostrado na figura 23 abaixo.

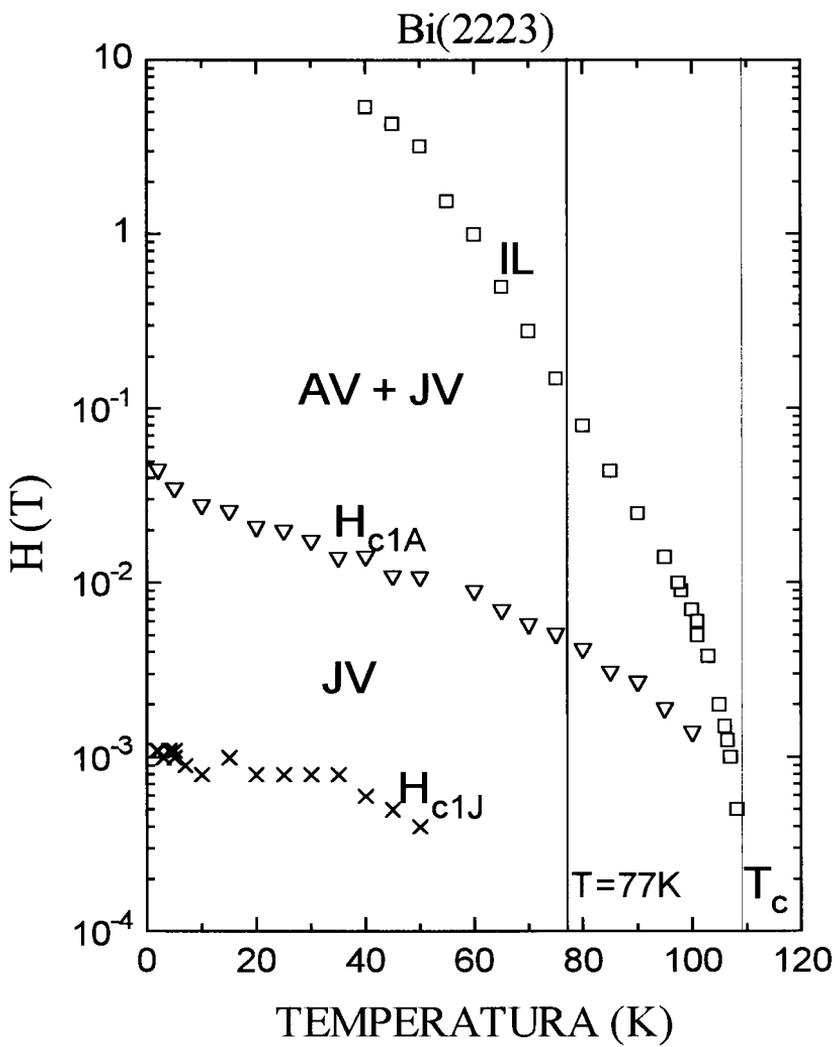


Figura 23: Diagrama de fases para a amostra Bi(2223)

Neste diagrama destacamos a linha $T=77K$ onde todas as medidas de transporte foram feitas. Observa-se que nesta temperatura o campo crítico de Abrikosov, H_{c1A} , onde fluxo magnético começa a penetrar no interior dos grãos, é aproximadamente 50 Oe.

4.1.2 Curvas Características I x V

Na figura 24 abaixo apresentamos as medidas das curvas características I x V em um gráfico linear para a amostra Bi(2223) com diferentes valores de campo magnético externo e com o campo magnético aplicado na direção paralela à corrente que passa ao longo da amostra que tem a forma de uma barra de $7 \times 0,9 \times 0,85 \text{ mm}^3$ com a distância entre os contatos de voltagem de 0,7mm. Veremos mais adiante que a orientação do campo magnético em relação a corrente não influencia muito os nossos resultados de medidas de transporte.

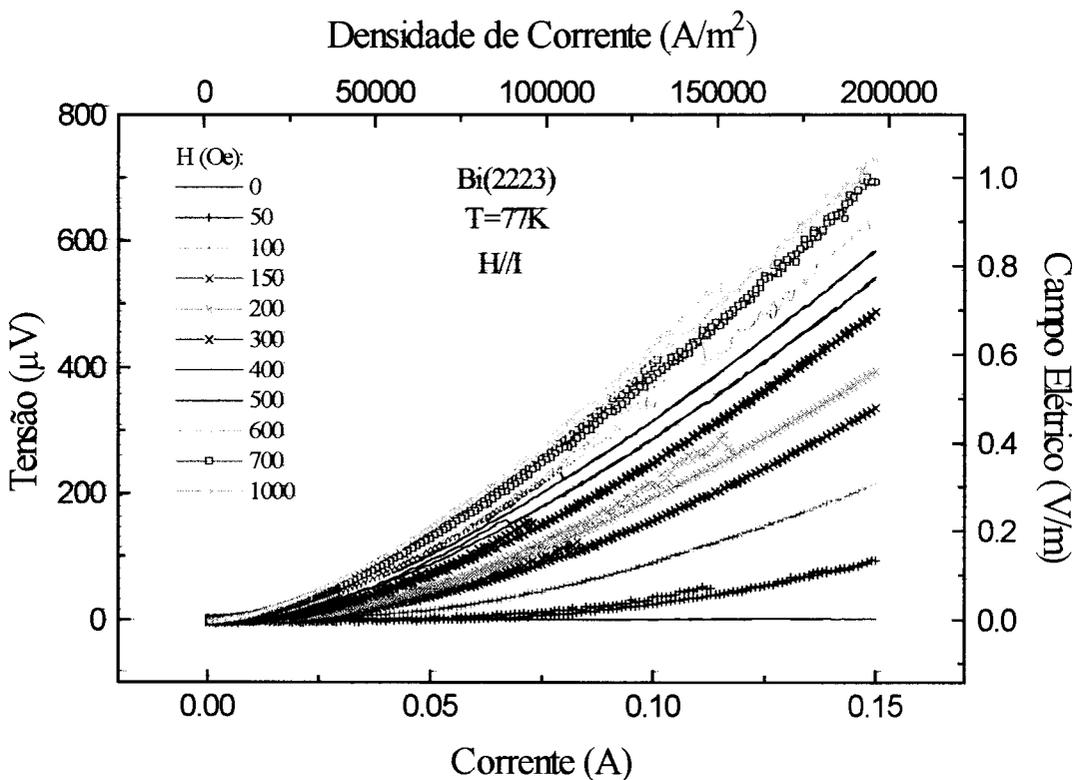


Figura 24: Curvas características para a amostra Bi(2223), T=77K.

Todas essas medidas foram feitas aumentando e diminuindo a corrente para um mesmo campo constante. Da figura 24 pode-se observar que para altas correntes estas curvas I x V são reversíveis mas para valores intermediários de I

($0,07\text{A} \leq I \leq 0,12\text{A}$) ocorre um salto quase descontínuo provocando uma diminuição da tensão com o aumento da corrente. Na figura 25 mostramos com mais detalhes este comportamento. A figura 25(a) mostra a curva $I \times V$ em escala linear para $H = 200 \text{ Oe}$ com a corrente aumentando e diminuindo, e a figura 25(b) mostra os mesmos dados em uma escala logarítmica, $\log I \times \log V$. Em ambas as figuras podemos observar o salto na tensão com o aumento da corrente (em $I=0,117 \text{ A}$).

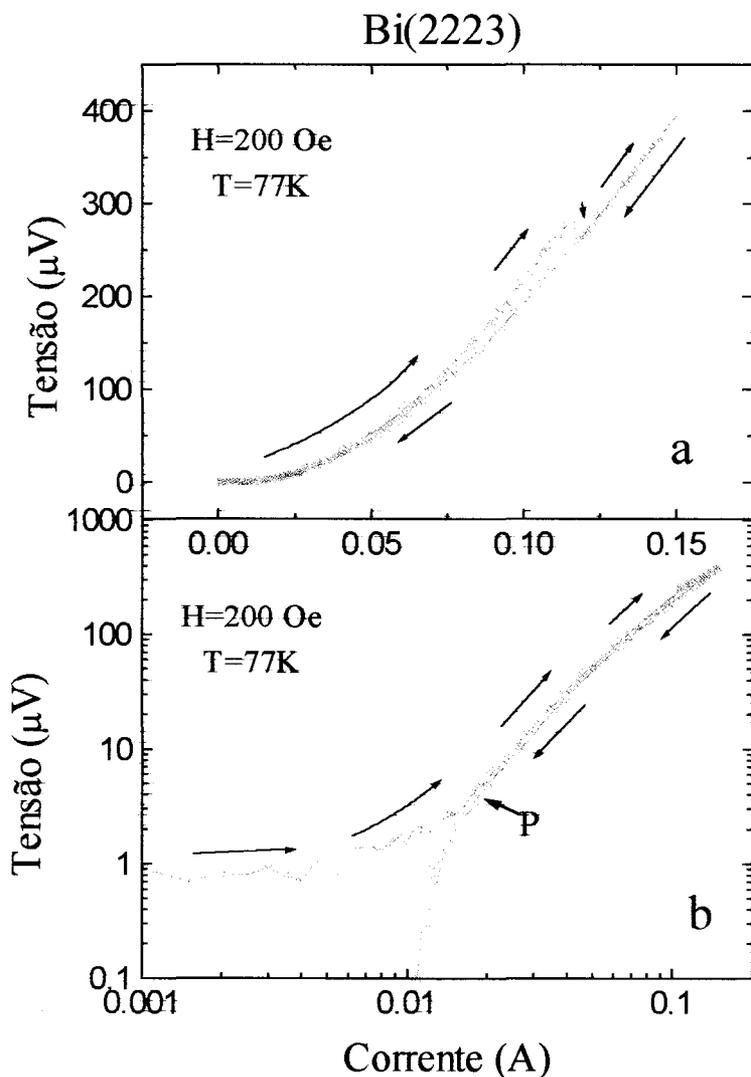


Figura 25: Característica $I \times V$ para $H = 200 \text{ Oe}$ para Bi(2223).

Por nosso conhecimento, um comportamento análogo não foi ainda reportado na literatura. Por outro lado, não acreditamos que o mesmo seja decorrente de algum artefato de medida uma vez que é reprodutível e não ocorre nas amostras de Y(123) medidas da mesma forma e com os mesmos equipamentos. Em todo caso um estudo mais detalhado e sistemático precisa ser realizado para esclarecer esta questão e/ou mesmo sua origem.

Na figura 26 mostramos os mesmos dados da figura 24, agora em um gráfico $\log V \times \log I$. Na escala logarítmica se observa mais claramente as variações nas curvas características $I \times V$. Na figura 26 podemos observar que na faixa de campo magnético aplicado na amostra Bi(2223) ($0 \leq H \leq 1000$ Oe) todas as curvas apresentam uma curvatura negativa.

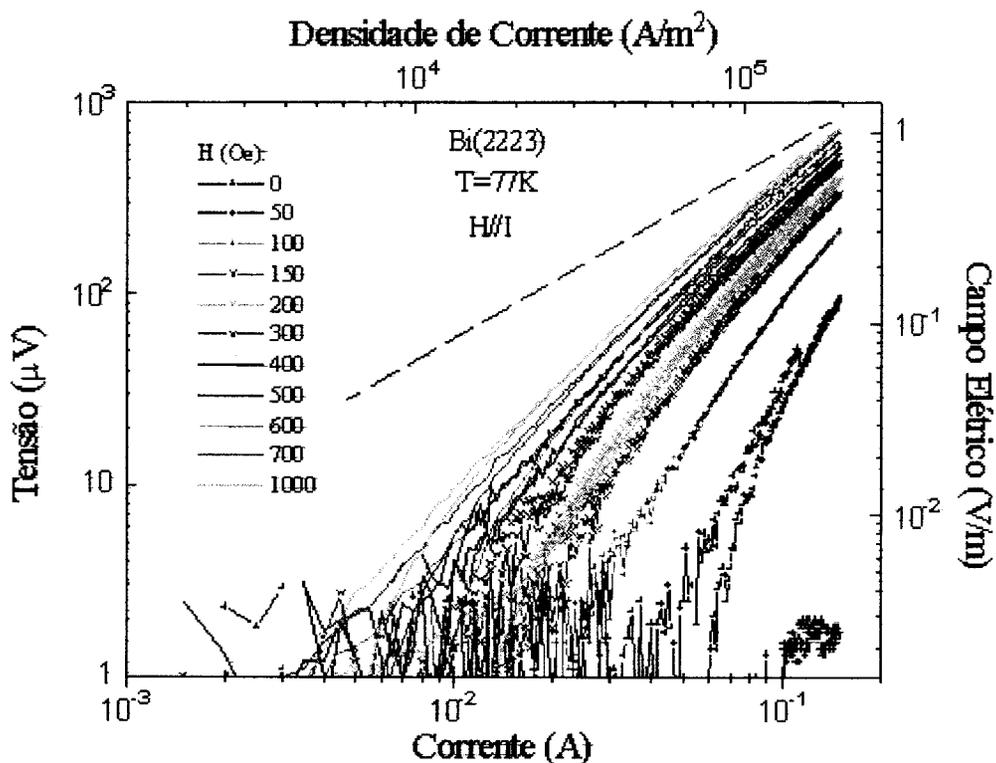


Figura 26: Característica $I \times V$ em escala log-log para a amostra Bi(2223).

Há, no entanto, uma clara diminuição desta curvatura negativa com o aumento do campo magnético, sugerindo talvez que, para campos um pouco

maiores que 1000 Oe, um comportamento linear e ohmico possa ocorrer (veja a linha reta de referência nesta figura, com inclinação =1). Cabe aqui lembrar que a linha de irreversibilidade desta amostra (figura 23) ocorre em $H_{irr} = 1500$ Oe para $T = 77K$.

Outro ponto que gostaríamos de mencionar aqui é com relação a sensibilidade das medidas em resolver valores para baixas correntes e tensões. Como se pode observar na figura 26, há um grande aumento do ruído nas medidas para baixas correntes e/ou tensões. Além deste aumento de ruído pode-se observar na figura 26, ou mais claramente na figura 25(b), que há uma aparente histerese em baixas tensões com o aumento e diminuição de I. Cabe aqui mencionar que este mesmo comportamento foi também observado nas amostras de Y(123) como veremos mais adiante. Até agora não entendemos a causa ou origem deste comportamento mas nos parece estar associado à falta de sensibilidade de nosso sistema de medidas (equipamentos e montagem). Assim, para a análise dos resultados e seus diferentes regimes dissipativos não levaremos em consideração os dados medidos de V e I onde temos este comportamento, ou seja, valores de V e I abaixo do ponto P da figura 25(b).

Para as medidas na amostra Bi(2223) utilizamos uma fonte 228A para passar corrente pela amostra e uma fonte HP modelo 6271B para gerar o campo magnético. Posteriormente a estas medidas descobrimos que a origem de boa parte do ruído se deve à fonte de corrente utilizada. Descobrimos que a fonte 228A gera interferência no nanovoltímetro via cabos de conexão com o microcomputador. Conseguimos minimizar o ruído eliminando a conexão entre as fontes 228A e o nanovoltímetro nas medidas de I x V para as amostras de Y(123), porém não houve tempo hábil para refazer as medidas para esta amostra.

4.1.3 Medidas de Magneto-resistividade

Na figura 27 abaixo está uma curva de magneto-resistividade, $V(H)$, para a amostra Bi(2223). O campo magnético aplicado foi aumentado e diminuído entre 0 e 1000 Oe com uma corrente aplicada de 90 mA. Observa-se a não ocorrência de histerese nesta amostra. Isto não nos permite identificar o tipo de vórtices (Josephson ou Abrikosov) que participam predominantemente neste processo dissipativo como tínhamos discutido no capítulo 2.

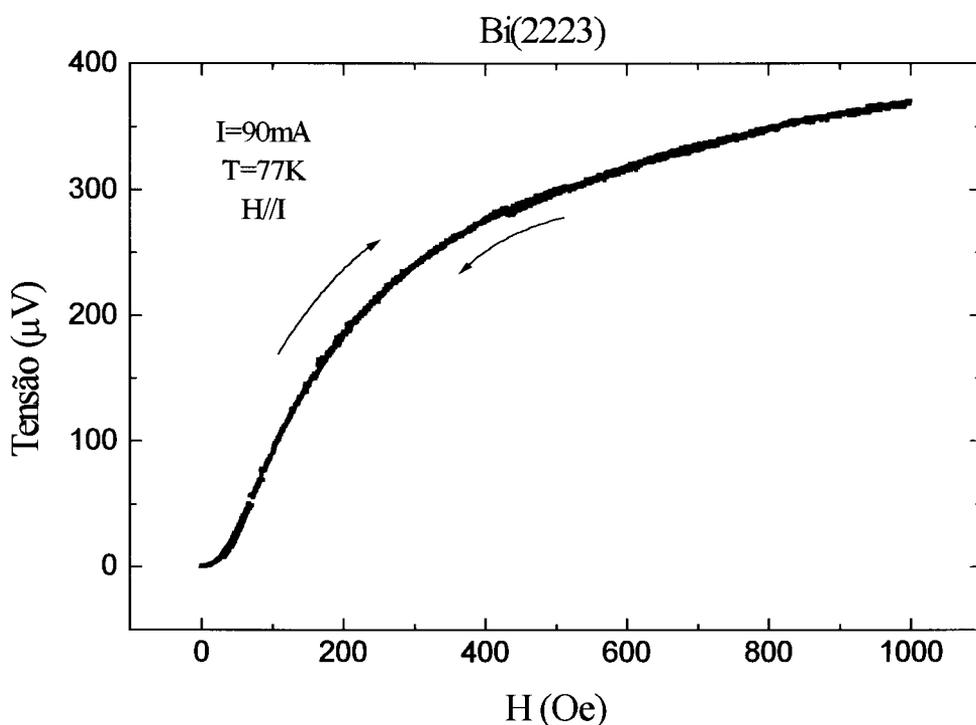


Figura 27: Magneto-resistividade para a amostra Bi(2223) a 90 mA

Também medimos $V(H)$ para diversos valores de corrente aplicada e todos apresentaram a mesma característica sem histerese.

Na figura 28 estão as medidas de $V(H)$ mudando-se a orientação da amostra em relação ao campo magnético. Não se observa uma variação significativa no sinal medido.

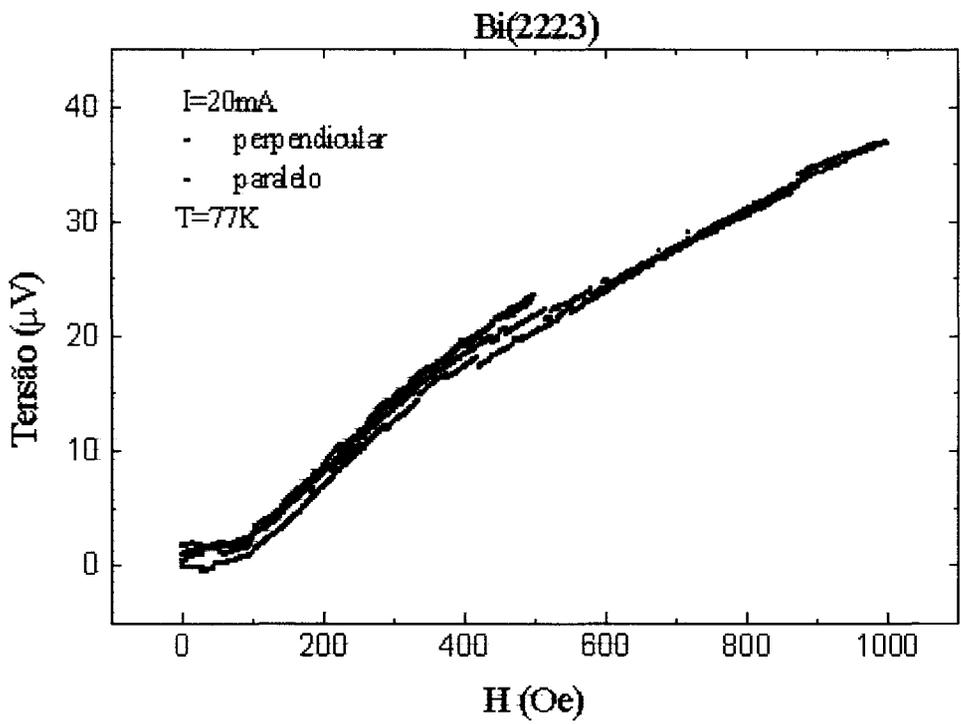


Figura 28: Magneto resistividade para a amostra Bi(2223) a 20 mA com a amostra paralela e perpendicular ao campo.

Os pequenos saltos nestas curvas $V(H)$ são devidos ao chaveamento automático da fonte 228A utilizada na geração do campo magnético.

Conforme indicado no capítulo 2, pela equação da força de Lorentz não se esperaria que houvesse dissipação quando o campo fosse paralelo à corrente aplicada. Entretanto, devido à natureza granular desse material, a corrente percola pelos grãos acoplados mais fortemente, e como isso ocorre aleatoriamente, temos a mesma possibilidade da corrente passar em direções perpendiculares e paralelas ao campo aplicado.

Portanto mesmo na amostra Bi(2223) com grãos orientados, a orientação macroscópica da amostra em relação ao campo magnético aplicado não tem grande influência nas medidas de transporte.

4.2 Amostra Y(123)P

A seguir apresentaremos os resultados obtidos para a amostra Y(123)P, de grãos pequenos. Eles incluem medidas de magnetização em função do campo aplicado, medidas de curvas I x V e magneto-resistividade.

4.2.1 Magnetização

Medimos a magnetização em função do campo magnético entre -1000 Oe e 1000 Oe a 77K para esta amostra, tanto na forma maciça como em pó. Estas curvas se mostraram bem simétricas em relação a inversão do campo e praticamente com o mesmo valor de histerese (ΔM) para a amostra maciça e em pó. Na figura 29 mostramos $M(H)$ ($0 \leq H \leq 1000$ Oe) para a amostra Y(123)P na forma de pó e também para a amostra Y(123)G em pó para comparação.

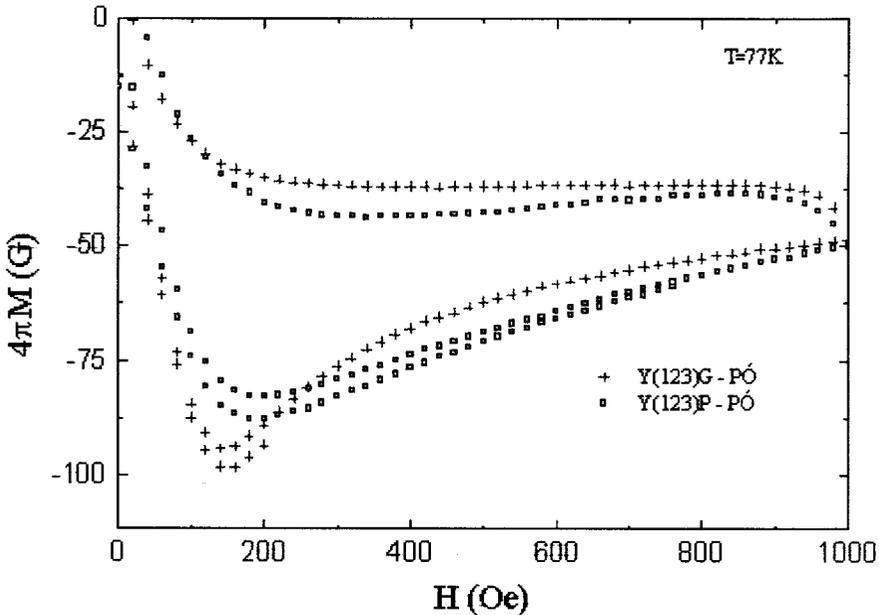


Figura 29: Magnetização em função do campo magnético para as amostras Y(123)G e Y(123)P.

Da figura 29 observa-se que a histerese na magnetização, ΔM , para as duas amostras Y(123)P e Y(123)G em pó são bem próximas, significando que as densidades de corrente crítica dos grãos, J_{cg} , para as duas amostras são praticamente iguais apesar dos grãos terem tamanhos diferentes.

Usando o modelo de Bean [36] podemos fazer uma estimativa da densidade de corrente crítica intragranular $J_{cg} = \Delta M/d$, onde ΔM é a diferença das magnetizações entre o ramo crescente e o decrescente do “loop” $M(H)$ para um mesmo H , e d é um comprimento de escala, isto é, a distância característica pela qual a corrente circula [37].

A determinação de d é incerta para amostras cerâmicas. Experimentos anteriores [38] mostraram que a magnetização era apenas fracamente dependente do tamanho da amostra e foi sugerido que o tamanho de grão seria mais apropriado como parâmetro de escala. No nosso caso, e em especial pelas amostras estarem na forma de pó, o tamanho de grão seria apropriado. No entanto, os resultados mostram praticamente os mesmos valores de ΔM em amostras com tamanhos de grãos distintos ($3\mu\text{m} \times 18\mu\text{m}$).

Por outro lado, observando as figuras 17 e 18 podemos notar que os grãos das amostras Y(123)P (figura 17) e Y(123)G (figura 18) apresentam uma distribuição de “twins” bem regular e quase idêntica dentro dos grãos de ambas as amostras, com uma distância média entre “twins” de $0,1\mu\text{m}$. Considerando esta distância como sendo o comprimento de escala para ambas as amostras e usando o valor medido de $\Delta M = 3375 \text{ A/m}$ para $H = 200 \text{ Oe}$ encontramos $J_{cg} = 3,2 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$, o que está em bom acordo com os valores da literatura.

Da figura 29 podemos observar também que até 1000 Oe ambas as amostras estão na região irreversível do diagrama $H \times T$, sendo esta região de campo magnético ($0 \leq H \leq 1000 \text{ Oe}$) em que as medidas de transporte foram realizadas.

Para a amostra Y(123)P, a esta temperatura, não foi possível distinguir o campo crítico Josephson, como mostrado abaixo. Conforme mostrado nas ref.[11,12] os valores para este campo são da ordem de 1 Oe mesmo para

temperaturas muito menores que T_c , ou seja, da ordem do valor do campo magnético da Terra.

Da curva de magnetização podemos determinar o campo crítico inferior para o grão, H_{c1A} . Observa-se o início da penetração do campo magnético no interior dos grãos para campos próximos de 18 Oe (figura 30).

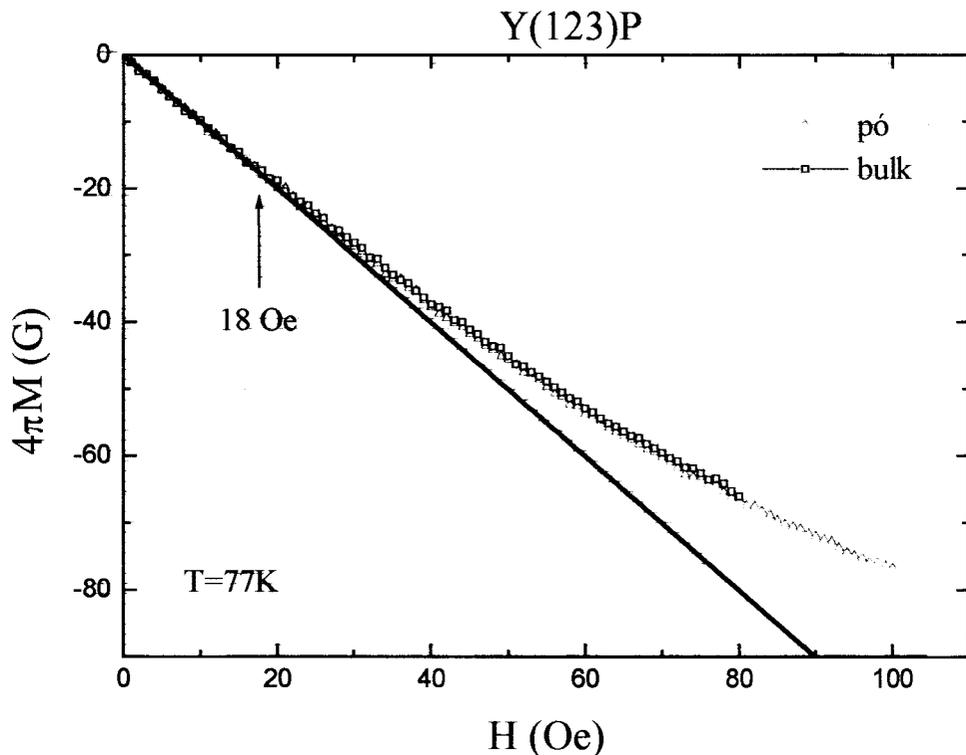


Figura 30: Curva de magnetização a baixos campos para a amostra Y(123)P.

4.2.2 Curvas Características I x V

Na figura 31 a seguir está o gráfico com as medidas das curvas I x V em escala logarítmica para a amostra Y(123)P. Nesta amostra (seção transversal $1,35 \times 0,75 \text{ mm}^2$ e distância entre contatos de tensão de 1 mm) medimos estas curvas I x V com o campo magnético paralelo à corrente.

Da figura 31 podemos observar que todas as curvas I x V apresentam uma curvatura negativa e que esta curvatura diminui com o aumento do campo magnético aplicado. Para $H = 500$ Oe temos um comportamento quase linear para altas correntes. Infelizmente, na época não medimos a curva I x V para o máximo campo de nosso magneto ($H = 1000$ Oe). Posteriormente realizamos esta medida manualmente (ponto a ponto) e pudemos verificar que esta é linear, mas não ôhmica, pelo menos para $I \geq 10^{-3}$ A (na figura 31 também mostramos a reta de referência com inclinação =1). Em todo caso, nesta amostra também não observamos curvas I x V com curvatura positiva na faixa de campo magnético disponível. No entanto, em princípio, é possível que isto venha a ocorrer para campos menores que a linha de irreversibilidade, como observado na literatura [7].

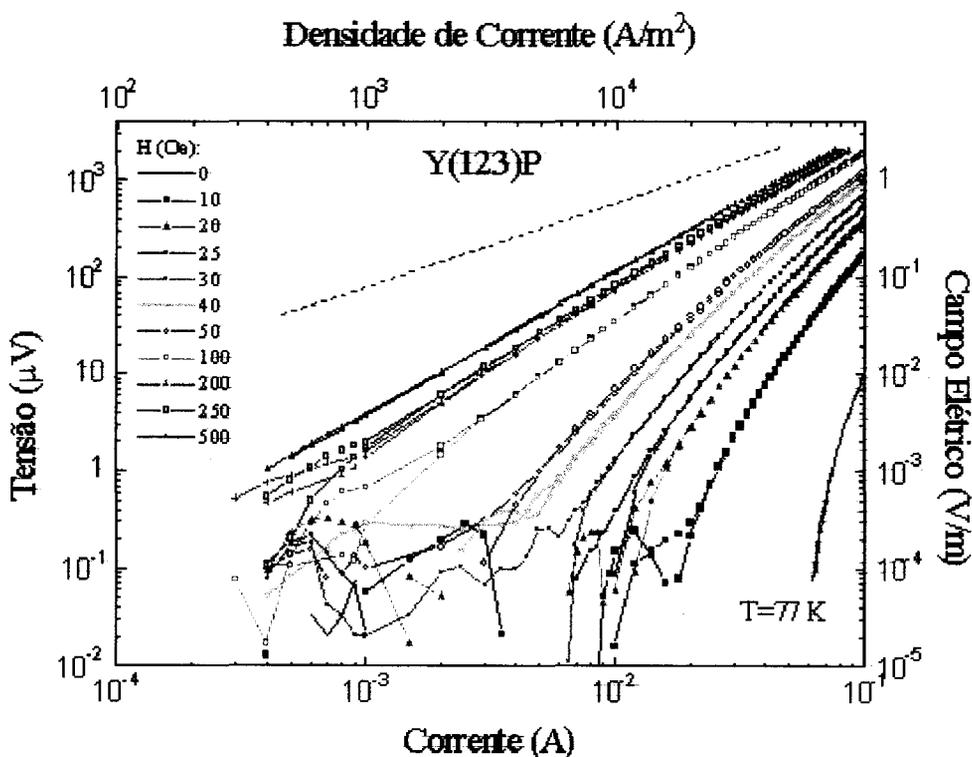


Figura 31: Característica IxV para a amostra Y(123)P.

Nestas medidas usamos uma fonte 228A para passar corrente pela amostra e outra fonte 228A, desconectada do nanovoltímetro, para gerar o

campo magnético. Diminuímos razoavelmente o ruído mas não foi possível eliminá-lo completamente. Na figura 31 pode observar-se também que para baixas correntes e tensões há a separação das curvas com o aumento e a diminuição da corrente, estes pontos que estão no limite de sensibilidade dos equipamentos também não foram considerados.

4.2.3 Medidas de Magneto-resistividade

A seguir (figura 32) está um gráfico da medida de magneto-resistividade para a amostra Y(123)P medindo-se “loops” completos ($-500 \text{ Oe} \leq H \leq 500 \text{ Oe}$) para várias correntes. As setas indicam o sentido (horário) das curvas com o aumento e a diminuição do campo magnético aplicado. Do exposto no capítulo 2 sobre as curvas de magnetização, podemos dizer que nesta amostra a dissipação ocorre principalmente no meio Josephson. Podemos observar também que estas curvas são todas praticamente simétricas com relação a $H=0$. Foram feitas medidas também para correntes mais baixas, até $100\mu\text{V}$, todas elas apresentando a mesma característica com loops no sentido horário.

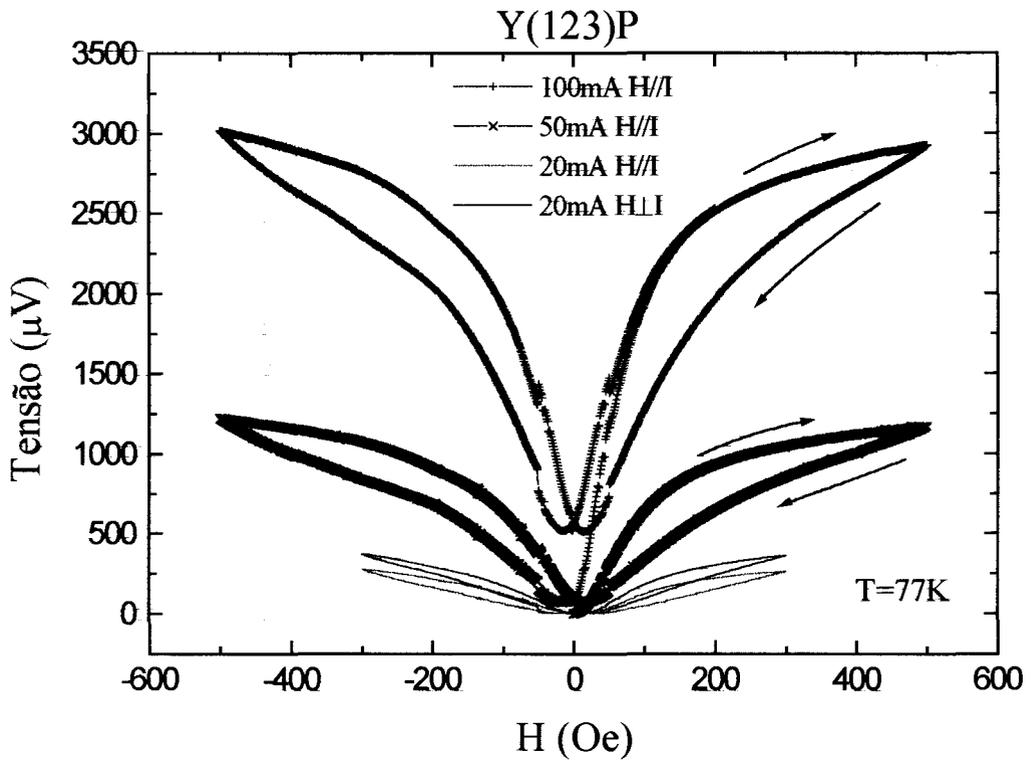


Figura 32: Magneto-resistividade para a amostra Y(123)P para várias correntes.

Observe que para campos paralelos e perpendiculares à amostra há uma variação pequena no sinal. Isso é devido provavelmente ao caminho percolativo e aleatório feito pela corrente no interior da amostra que resulta em uma força de Lorentz quase independente da direção do campo aplicado externamente, como explicado para a amostra Bi(2223).

4.3 Amostra Y(123)G

Nesta seção apresentaremos os resultados para as medidas de magnetização, curvas $I \times V$ e magneto-resistência na amostra de grãos grandes Y(123)G.

4.3.1 Magnetização

Como já mencionamos anteriormente, nesta amostra foram feitas medidas de magnetização ($-1000 \text{ Oe} \leq H \leq 1000 \text{ Oe}$) para a amostra maciça e na forma de pó. Na figura 29 já mostramos a curva de magnetização $M(H)$ na forma de pó para esta amostra e estimamos o valor da densidade de corrente crítica intragranular ($J_{cg} = 3,2 \cdot 10^6 \text{ A/cm}^2$).

Com as medidas de magnetização podemos também determinar quando se dá a penetração do campo magnético no interior dos grãos, H_{c1A} , conforme foi mostrado anteriormente. Para esta amostra isto ocorre em torno de 45 Oe, ver figura 33 abaixo, onde mostramos a curva de magnetização $M(H)$ para esta amostra na forma de pó e maciça.

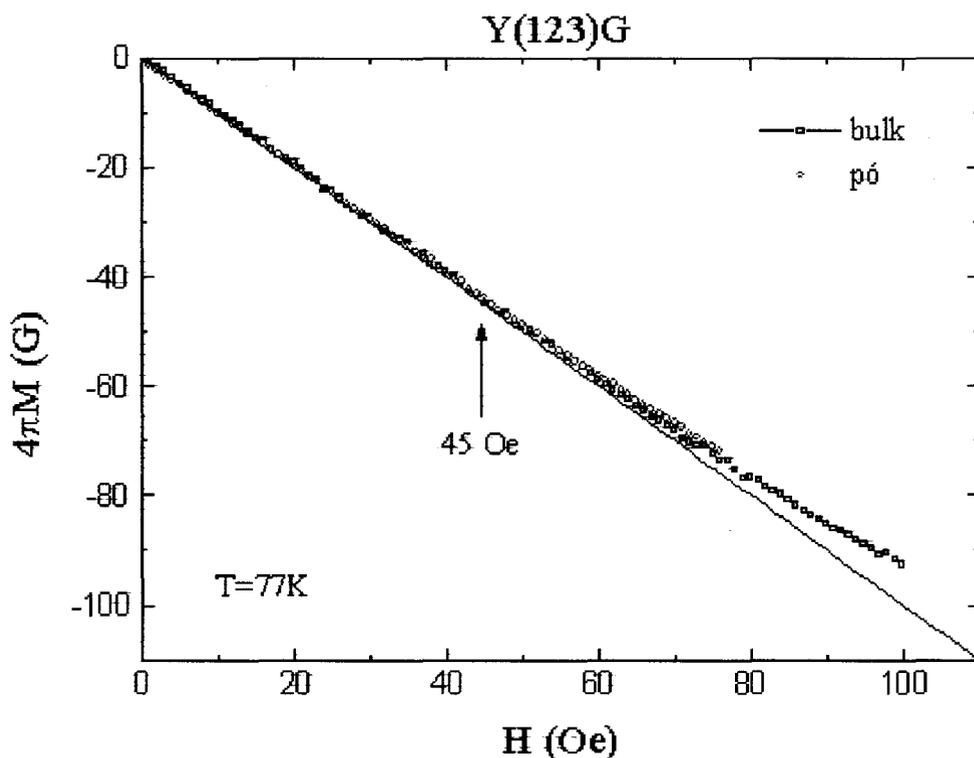


Figura 33: Curva de magnetização a baixo campo para amostra Y(123)G.

4.3.2 Curvas Características I x V

Na figura 34 abaixo estão as medidas das curvas I x V em escala logarítmica para a amostra Y(123)G (também incluímos a reta com inclinação =1 para referência). Esta amostra em forma de barra tinha uma seção transversal $1,0 \times 0,65 \text{ mm}^2$ e a distância entre os contatos de tensão era de 1,7 mm.

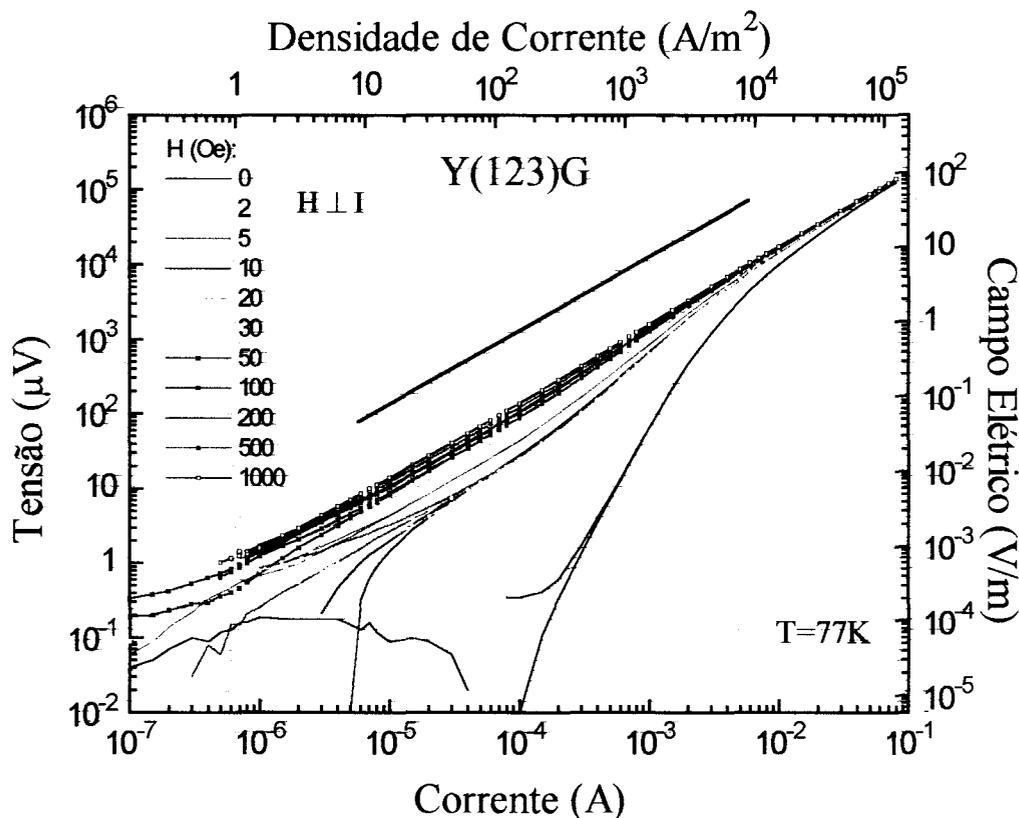


Figura 34: Característica IxV para a amostra Y(123)G.

Da figura 34 já podemos notar um comportamento distinto das curvas I x V em relação as até agora apresentadas. Observamos que para $H=0$ temos uma curvatura negativa até o limite de nossa sensibilidade de medida. Agora, já para $H=2 \text{ Oe}$ e valores maiores de campo magnético estas curvas mudam a curvatura e passam, para correntes menores ($I \leq 10^{-4} \text{ A}$), a apresentar um comportamento

linear e ôhmico (veja reta de referência). Para altas correntes ($I \geq 10^{-2}$ A) temos também um comportamento linear e ôhmico. Isto sugere que diferentes processos dissipativos estão ocorrendo para três regiões distintas. Em termos de corrente, temos um comportamento linear e ôhmico para $I \leq 10^{-4}$ A, uma região não-linear para 10^{-4} A $\leq I \leq 10^{-2}$ A e outra região linear e ôhmica para $I \geq 10^{-2}$ A. A identificação dos possíveis processos de dissipação em cada uma destas regiões será discutida no próximo capítulo.

Nesta amostra utilizamos as duas fontes 228A para gerar o campo magnético e a fonte manual 225 para passar corrente pela amostra. Observe que conseguimos reduzir ainda mais o ruído gerado pelas fontes 228A, mas ainda não eliminamos a bifurcação das curvas a baixas correntes e tensões.

4.3.3 Medidas de Magneto-resistividade

Abaixo está uma curva de magneto-resistividade para a amostra Y(123)G medida com uma corrente de 1 mA (figura 35).

Conforme indicado pelas setas, esta amostra também apresenta dissipação na região intergrãos devido ao movimento dos vórtices Josephson (sentido horário). Nesta figura há vários saltos descontínuos decorrentes dos problemas de medida que tínhamos inicialmente.

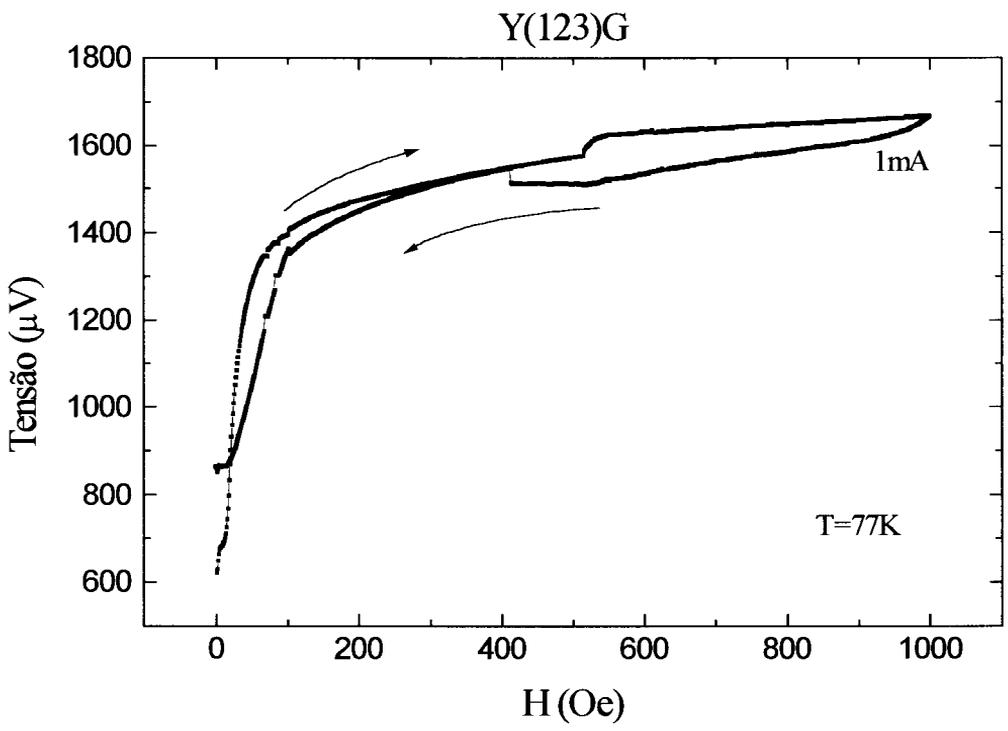


Figura 35: Magneto-resistividade para a Y(123)G a 1 mA

No capítulo seguinte discutiremos os resultados apresentados aqui e salientaremos as conclusões resultantes deste trabalho.

CAPÍTULO 5

ANÁLISES E CONCLUSÕES

Neste capítulo discutiremos os resultados apresentados no capítulo anterior. Começaremos com uma breve descrição dos resultados alcançados, um resumo das discussões na literatura sobre o estado de vortex glass e apresentaremos nossa interpretação para os fenômenos observados.

Devido a ausência de histerese nas nossas medidas de magneto-resistividade para a amostra Bi(2223), ficamos impossibilitados de fazer uma identificação do meio (Josephson ou Abrikosov) responsável pela dissipação. No entanto, resultados da literatura [39] mostram histerese na magneto-resistividade com sentido horário, ou seja, que nestas medidas a dissipação ocorreu devido ao meio Josephson no Bi(2223).

Em nosso caso, não é claro porque não observamos histerese em $V(H)$, mas provavelmente isto esteja relacionado com o fraco pinning dos vórtices em nossa amostra e as correntes utilizadas em $V(H)$, mesmo que pequenas, já sejam suficientes para liberá-los.

A nossa amostra de Bi(2223) possui uma densidade de corrente crítica de transporte $J_c(H=0, T=77K) \approx 10A/cm^2$ (usando o critério de $E=10\mu V/cm$, ver figura 26 do capítulo 4), o que corrobora o fraco pinning desta amostra. As medidas de $V(H)$ foram feitas para correntes na faixa de 1mA a 90mA e em todas não detectamos histerese dentro do limite de resolução de nossas medidas. Outra possibilidade é a de que esteja ocorrendo neste caso também uma compensação entre a indução do meio Josephson com a do meio

Abrikosov na diminuição do campo H , já que estes dois efeitos são opostos (ver figura 8), como já discutido na literatura [34]. Em todo caso, este comportamento bem como os saltos quase descontínuos observados nas curvas $I \times V$ desta amostra, requerem mais estudos para se obter uma conclusão efetiva. Como tínhamos como objetivo inicial estudar uma amostra que apresentasse histerese em $V(H)$ tanto horária como anti-horária dependendo dos valores de corrente, campo magnético e temperatura, optamos por procurar este comportamento em outras amostras de $Y(123)$ que possuíamos.

Como mostrado no capítulo 4 a dissipação para as amostras de $Y(123)$ também ocorre na região intergrãos com o movimento dos vórtices Josephson para $0 \leq H \leq 1000$ Oe, $T=77K$ e as correntes utilizadas.

As medidas de magnetização, $M(H, T=77K)$, foram feitas para se determinar o campo magnético onde ocorre a penetração do fluxo magnético no interior dos grãos, H_{c1A} . Acima deste campo nós temos a coexistência de vórtices Abrikosov e Josephson no interior do material.

Nas medidas de magneto-resistividade ou $V(H)$ mostramos que a orientação da amostra com relação ao campo magnético não apresenta grande diferença quando a amostra está paralela ou perpendicular ao campo devido ao efeito aleatório de percolação da corrente através da amostra.

A seguir vamos discutir as medidas das curvas características $I \times V$ das amostras $Y(123)$. Antes porém vamos fazer um resumo das discussões que ocorrem na literatura a respeito da existência ou não do estado de vortex glass.

Vários grupos tem observado indícios de transição do tipo vortex glass-vortex liquid para supercondutores na forma de filmes finos, monocristais e policristais. Os filmes finos tem apresentado características de policristais, como um agrupamento de pequenos monocristais depositados com o eixo c perpendicular ao plano do substrato mas com orientação aleatória no plano $a-b$ [13]. Os monocristais apresentam “twin bondaries”, ou seja, mudanças na orientação cristalográfica nos planos $a-b$ em intervalos ~ 1000 Å [12]. Os policristais apresentam orientação aleatória dos grãos.

Em todas essas situações temos um enfraquecimento significativo da supercondutividade na região onde esses defeitos ocorrem. Então podemos dizer que mesmo em filmes finos e monocristais nós podemos ter vórtices Josephson nas regiões em que há o enfraquecimento da supercondutividade, ou seja, todos esses materiais podem ser considerados “granulares”.

Segundo a teoria da transição vortex glass - vortex liquid desenvolvida por Fisher [2], na temperatura de transição de fase, T_g , as curvas $I \times V$ devem obedecer uma lei de potência, $E \propto J^{(z+1)/2}$, onde o expoente crítico z deve estar entre 4 e 6. Acima de $T_g(H)$ deve existir uma região de característica ôhmica para baixas correntes. A resistividade nesta região deve ir a zero em $T_g(H)$ seguindo a relação $\rho \propto t^{v(z-1)}$ onde $t = |T - T_g| / T_g$. O expoente v é esperado estar entre 1 e 2. Abaixo de $T_g(H)$ a voltagem deve ir a zero exponencialmente com a corrente, $E \propto e^{-(J_t/J)^\mu}$ com o expoente μ devendo ficar entre 0 e 1.

Nas figuras 36 e 37 abaixo mostramos curvas $I \times V$ medidas em filme fino de Y(123) feitas por Koch et al. [6] e medidas em policristal de Y(123) com grãos de tamanho $\sim 5 \mu\text{m}$ feitas por Worthington et al. [9].

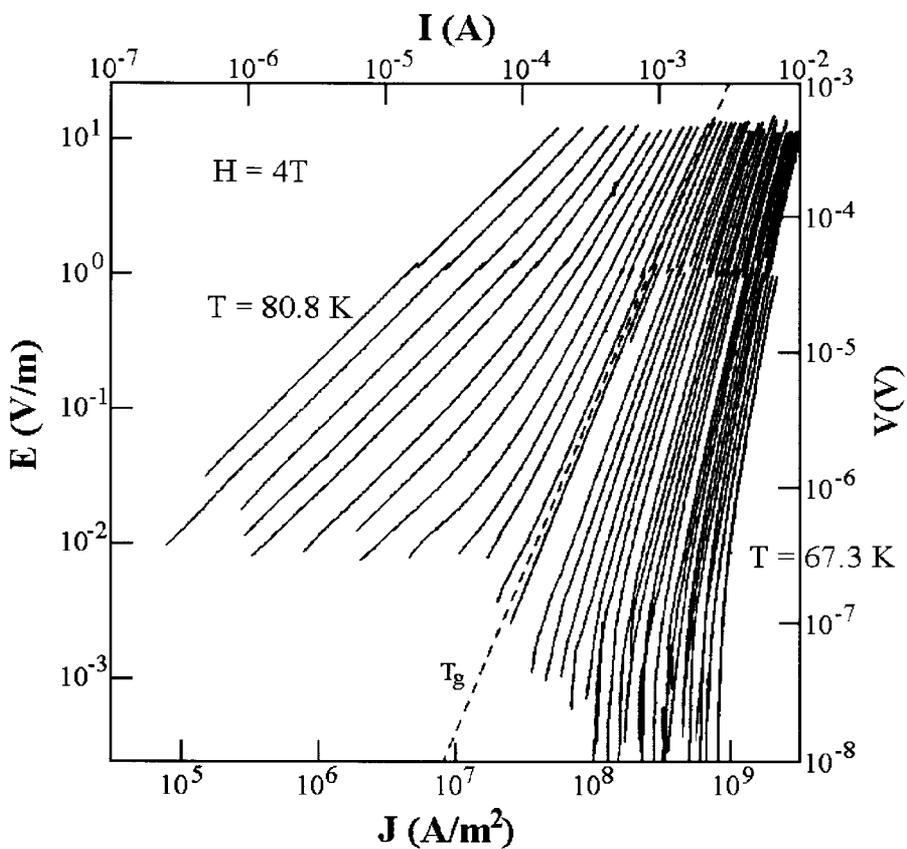


Figura 36: Curvas $I \times V$ medidas em filme fino de Y123 [6] em campo magnético de 4T. As curvas diferem em intervalos de temperatura de 0,3K de 67,3 à 80,8K [6].

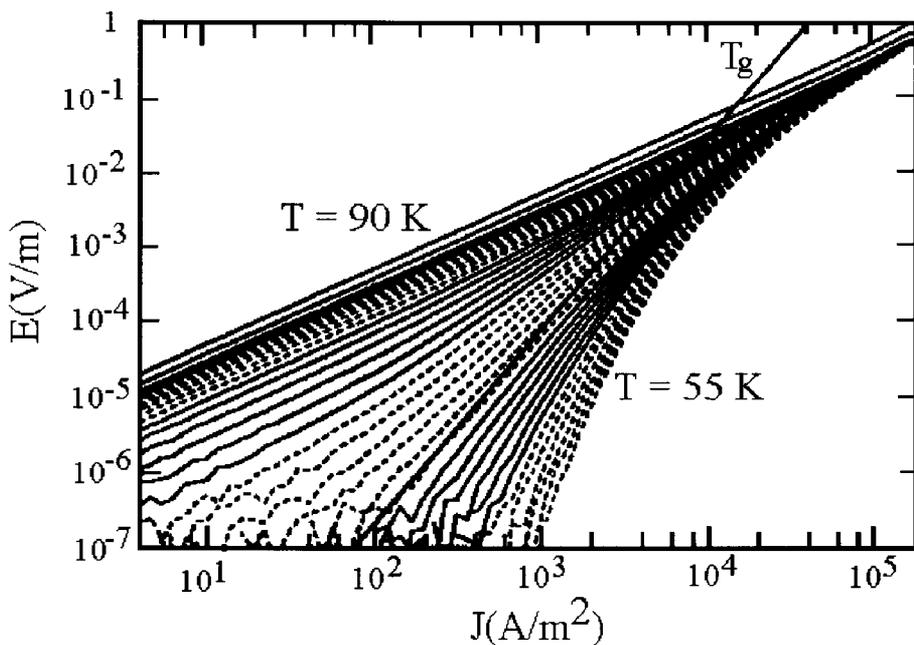


Figura 37: Curvas $I \times V$ para policristal de Y123 com campo magnético de 1,5T, perpendicular à corrente. São 36 curvas com intervalos de 1K de 90 a 55K [9].

A teoria da transição vortex glass prevê uma transição de fase de segunda ordem em T_g . Uma indicação desta transição é o scaling das curvas características I x V. Abaixo mostramos os scaling feitos por Kock [6] em filme fino (figura 38) e Worthington [9] em policristal (figura 39).

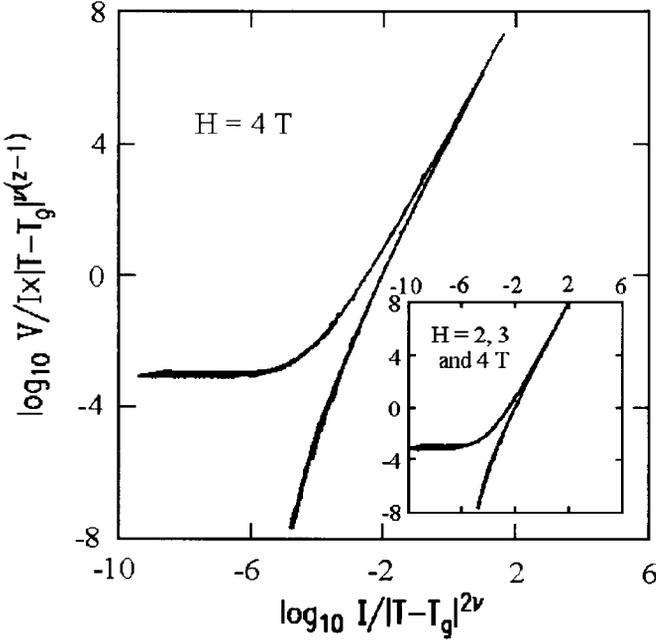


Figura 38: Scaling das curvas IxV da figura 36. Inset: Superposição dos scaling para 2, 3 e 4 T [6].

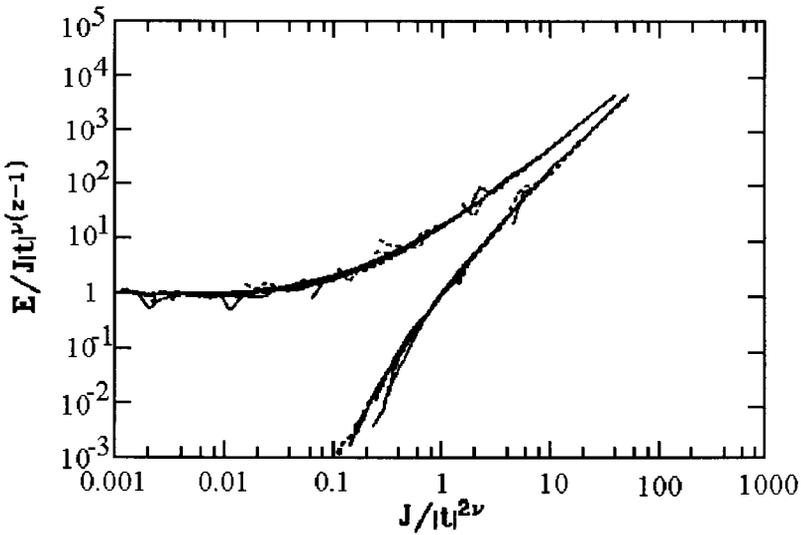


Figura 39: Scaling das curvas IxV da figura 37 a 1,5 T [9].

O scaling colapsa todas as curvas $I \times V$ com curvatura negativa na curva inferior e todas as curvas $I \times V$ com curvatura positiva na curva superior, como mostrado nos gráficos anteriores. Os valores para z ($z=4,6$ para policristal, $z=4,8$ para filme fino) e ν ($\nu=1,1$ para policristal, $\nu=1,7$ para filme fino) resultantes deste scaling estão em bom acordo com os previstos pelo modelo ($4 \leq z \leq 6$, $1 \leq \nu \leq 2$). Gammel et al. [26] fizeram medidas semelhantes em um monocristal de Y(123) e concluíram também que ocorre uma transição de fase como previsto pelo modelo ($z=4,3 \pm 1,5$ e $\nu=2 \pm 1$), mas observaram certa discrepância na forma das curvas de scaling entre monocristais e filmes finos.

Com relação ao meio (Josephson ou Abrikosov) em que ocorre esta transição, Koch et al. se referem aos vórtices de Abrikosov já Worthington et al. dizem que a transição ocorre no meio Josephson. Nestes dois trabalhos as medidas foram feitas até 4 Tesla mas não são apresentadas curvas de magnetoresistividade com histerese ou outra forma que possa identificar claramente o meio em que está ocorrendo esta transição.

Por outro lado, existe um grande número de modelos teóricos [5,40-42] que descrevem estas mesmas curvas $I \times V$ em termos de diferentes extensões do modelo tradicional de Flux Creep, ou seja, não consideram que esteja ocorrendo uma transição de fase. Recentemente [34], foi sugerido que esta “transição” é apenas um crossover entre um estado de resistência não-linear associado ao movimento dos vórtices Josephson e outro estado caracterizado por uma resistência linear causada pelo movimento dos vórtices Abrikosov.

Deste modo, pode-se verificar que não existe um consenso em relação a ocorrência ou não de uma transição de fase ou mesmo ainda com relação ao meio em que este fenômeno está ocorrendo.

Em nossas medidas nas amostras de Y(123) verificamos que a dissipação se deve principalmente ao movimento dos vórtices Josephson. Isto foi verificado através do sentido horário da histerese nas curvas de magnetoresistência, $V(H)$. Observamos este comportamento nas amostras Y(123)P e Y(123)G na faixa de correntes entre $100\mu A \leq I \leq 100mA$. Cabe aqui mencionar

que a construção de curvas $V(H)$ a partir das curvas $I \times V$ para uma corrente fixa concordam muito bem com os resultados das medidas diretas de $V(H)$ com campo magnético crescente.

Nossas medidas das curvas características $I \times V$ foram feitas a uma temperatura constante ($T=77K$) e variando o campo magnético aplicado, como o modelo da transição VG-VL não apresenta scaling em função do campo magnético não podemos fazer esta análise com os nossos dados.

Nossas medidas das curvas $I \times V$ para a amostra Y(123)P (figura 31) não apresentam uma mudança da curvatura de negativa para positiva com o aumento de H , pelo menos na faixa de campo magnético que tínhamos disponível. Por outro lado, foi observado [7] que a ocorrência desta mudança de curvatura com H depende de amostra para amostra, o que é conflitante com a universalidade do modelo de VG-VL.

Em nossas medidas das curvas $I \times V$ para a amostra Y(123)G (figura 34) observamos um comportamento distinto em relação aos até agora apresentados. Destas curvas observamos que para $H=0$ (mais o campo magnético da Terra $\sim 0,5$ Oe) temos uma curvatura negativa, no entanto, já para $H = 2$ Oe esta apresenta um comportamento bem diferente onde a curvatura negativa passa para positiva e depois fica linear e ohmica. Com o aumento de H esta região linear fica mais evidente e claramente tende para uma única reta com inclinação $=1$, como é de se esperar para o estado normal. Deste modo esta amostra não apresenta uma transição de fase VG - VL. Em princípio, se poderia supor que entre $H=0$ e $H = 2$ Oe estivesse ocorrendo uma transição de fase devido as mudanças de curvaturas destas curvas $I \times V$. No entanto, não acreditamos que isto esteja ocorrendo pois a faixa de campo magnético, $\Delta H = 2$ Oe, é muito estreita para que ocorra uma transição de segunda ordem, que é gradual. Na literatura [7,8], esta mudança de curvatura com H tem sido observada para um $\Delta H \sim 100$ Oe. Por outro lado, estas mudanças de curvaturas também não estão associadas a um crossover entre um meio Josephson e Abrikosov [34] pois o H_{c1A} desta amostra Y(123)G ocorre para um valor de H bem mais alto, $H_{c1A} \approx$

45 Oe (veja figura 33). O que acreditamos estar ocorrendo, pelo menos até agora, é simplesmente que não temos sensibilidade suficiente em nossas medidas para observar que a menores corrente e tensão a curva $I \times V$ para $H=0$ passará para uma curvatura positiva e depois ficará linear como as curvas para $H \geq 2$ Oe.

Como já mencionamos anteriormente, na amostra Y(123)G para $H \geq 2$ Oe podemos identificar claramente três diferentes regiões ou processos dissipativos. Para correntes menores que $\sim 10^{-4}$ A nós temos uma região linear e ohmica. Para correntes 10^{-4} A $\leq j \leq 10^{-2}$ A temos uma região não linear e, para correntes maiores que 10^{-2} A temos novamente um região linear. Esta primeira região, para $I \leq 10^{-4}$ A, linear e ohmica sugere que o processo dissipativo seja o TAFF, como descrito no capítulo 2. Para se verificar isto plotamos E/J ($=\rho$ quando a região for ohmica) em função da densidade de corrente para a amostra Y(123)G (figura 40). Desta figura observamos que a região abaixo de 3×10^2 A/m² tende a valores constantes de E/J e independentes da corrente, esta é a característica do regime TAFF, ou seja, a resistividade ρ é finita e independente de J .

Deve-se mencionar aqui que a existência de um regime TAFF (no meio Josephson) é conflitante com a hipótese do modelo VG-VL sobre a existência de um verdadeiro estado supercondutor ($\rho \equiv 0$), no limite de baixas correntes.

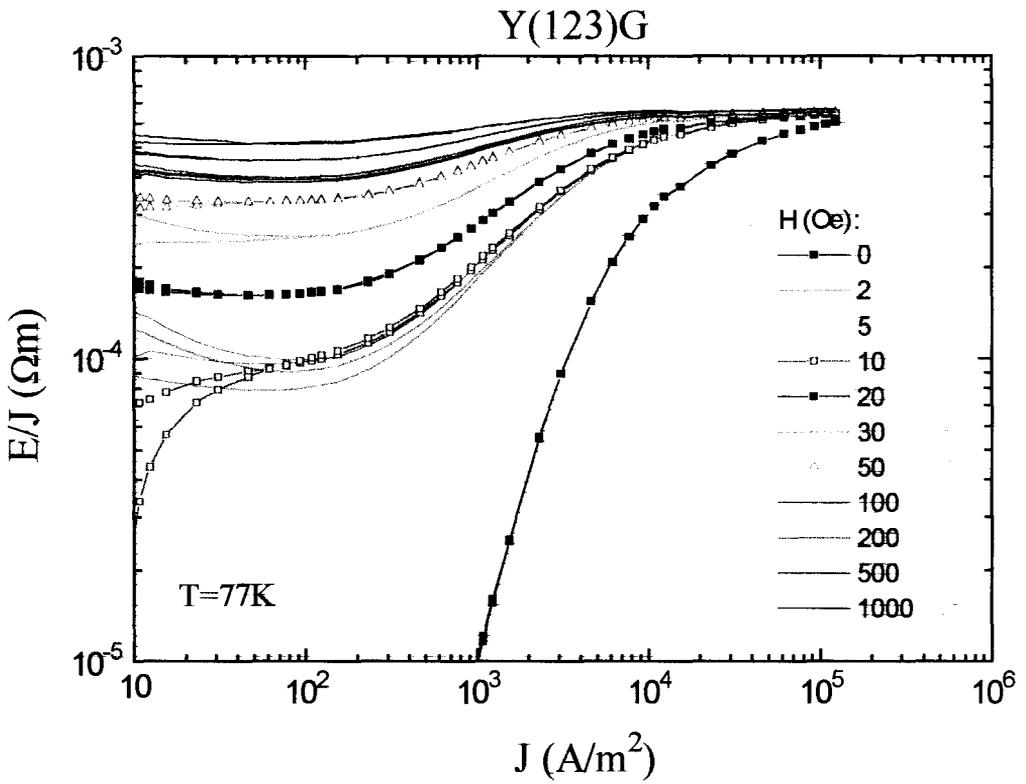


Figura 40: Curva E/J em função de J para a amostra Y(123)G.

Desta figura podemos extrair os valores de $\rho_{TAFF}=E/J$ em função do campo magnético e fazer uma estimativa do valor da energia de ativação ou mesmo analisar sua dependência com o campo aplicado utilizando-se a equação

(2.12):
$$U_0(H, T) = kT \ln\left(\frac{\rho_{FF}}{\rho_{TAFF}}\right)$$
. Para $H=0$ estimamos $U_0(0, 77K) \sim 15meV$,

este valor é coerente com os valores mencionados na literatura para Y(123) obtidos através de medidas de relaxação magnética. Na figura 41 apresentamos o gráfico da energia de ativação em função do campo magnético aplicado.

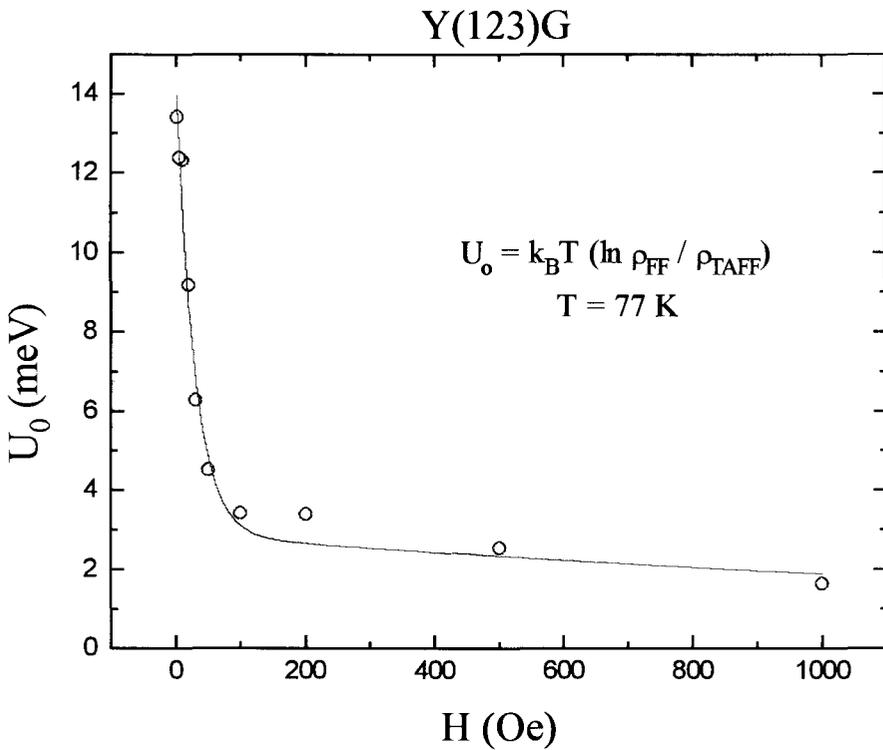


Figura 41: Energia de ativação em função do campo aplicado para a amostra Y(123)G.

Podemos ver que a energia de ativação diminui rapidamente com o aumento do campo magnético aplicado e para $H \geq 100$ Oe, U_0 permanece quase constante. Blinov et al. [25] observaram um comportamento semelhante para $U_0(H)$ em policristais de Y(123) devido aos vórtices Josephson com medidas de relaxação. Assim mostramos que esta amostra de Y(123)G parece ter um regime TAFF para $I \leq 10^{-4} \text{ A}$ e não ocorre uma transição do tipo VG-VL no limite de baixas correntes. Este tratamento clássico das curvas $I \times V$ pode ser também utilizado para identificar as outras duas regiões desta amostra Y(123)G. Para correntes entre $10^{-4} \text{ A} \leq I \leq 10^{-2} \text{ A}$ temos uma região não-linear correspondente ao regime de flux creep, como descrito no capítulo 2. Para $I \geq 10^{-2} \text{ A}$ temos uma região linear correspondente ao regime de flux flow (ver figura 34).

Vários autores [7,30-32] verificaram experimentalmente que as curvas $I \times V$ podem ser descritas por uma lei de potência do tipo: $V \sim (I - I_c)^n$, onde para o regime TAFF esta relação fica do tipo $V \sim I$ (ohmica), para o regime de flux flow $V \sim (I - I_c)$ (linear) e no regime de creep (não linear) a dependência com o campo magnético e temperatura estão em $n(H, T)$. Para mostrar que esta lei de potência também descreve nossos resultados, mostramos na figura 42 esta relação aplicada às curvas $I \times V$ da amostra Y(123)P. Observa-se que as curvas com curvatura negativa se transformam em retas com inclinação n .

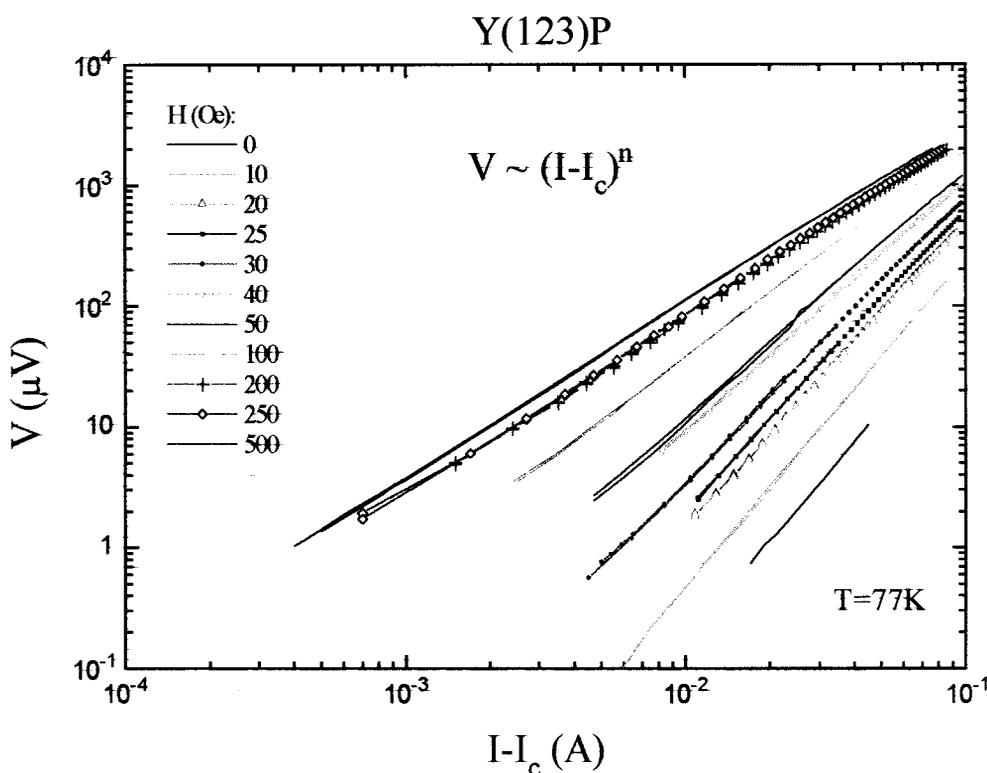


Figura 42: Curvas $I \times V$ da amostra Y(123)P plotados como $V \sim (I - I_c)^n$.

No gráfico abaixo (figura 43) plotamos o expoente n e a corrente crítica, I_c , em função do campo aplicado. Observa-se que não há descontinuidade no expoente n , indicando que não há uma transição de fase.

Na ref. [32] foi sugerido que uma relação do tipo $V \sim (I - I_c)^n$ pode ser derivada para um sistema de vórtices fazendo-se uma analogia com a teoria de

“charge density wave” (CDW) [33]. Com isso não é necessário introduzir a teoria de vortex-glass para explicar as características das curvas I x V.

Por outro lado, pode ser que a teoria de vortex-glass produza uma relação semelhante mas em todo caso é necessário ainda mais trabalhos teóricos e experimentais para se verificar a generalidade desta relação.

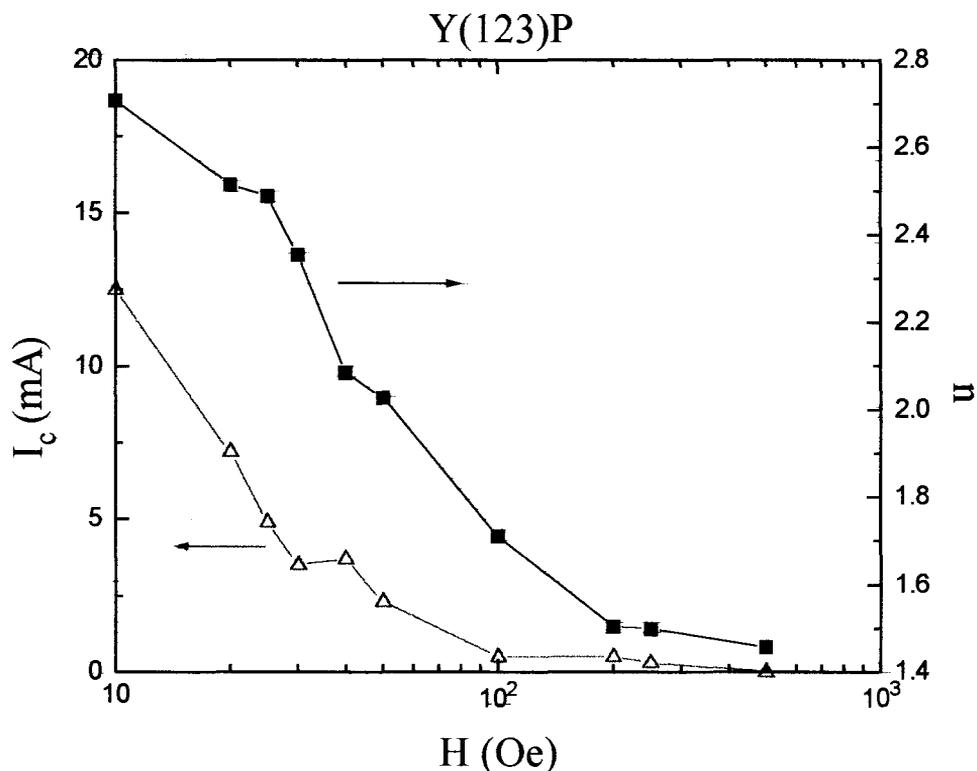


Figura 43: Comportamento de I_c e expoente n em função do campo aplicado.

Conclusões finais:

Construímos um diagrama $H \times T$ para a amostra Bi(2223) usando medidas de magnetização e mostramos que a granularidade do material influencia as características supercondutoras.

Através de medidas de transporte mostramos o comportamento granular em medidas de resistência em função da temperatura para diferentes correntes para a amostra Bi(2223).

Para as amostras de Y(123) utilizando medidas de magneto-resistividade ou $V(H)$ mostramos que a dissipação ocorre no meio intergranular pelo movimento dos vórtices Josephson.

Para a amostra Y(123)G observamos curvas $I \times V$ que apresentam características dos processos dissipativos TAFF, flux creep e flux flow. Determinamos a energia de ativação $U_0(H,T)$ em função do campo aplicado a uma temperatura de 77K, e mostramos que para a amostra Y(123)P as curvas $I \times V$ que podem ser descritas usando-se a relação $V \sim (I - I_c)^n$ com $I_c \neq 0$.

Como sugestão de trabalhos futuros, pode-se estudar como o tamanho dos grãos influencia as características das medidas de transporte (curvas $I \times V$). Efetuar medidas em outras temperaturas também seria importante para se confirmar a validade da relação $V \sim (I - I_c)^n$.

Medidas mais precisas usando-se lock-in eliminaria o ruído e possibilitaria medidas com correntes mais baixas ainda ajudando a determinar a existência ou não do estado vortex-glass.

Referências

- [1] G. Blatter, M.V. Feigel'man, V.B. Geshkenbein, A.I. Larkin and V.M. Vinokur, *Rev. Mod. Phys.* **66**, 1125 (1994)
- [2] M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1415 (1989)
- [3] D.S. Fisher, M.P.A. Fisher and D.A. Huse, *Phys. Rev. B*, **43**, 130 (1991)
- [4] T. Nattermann, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2454 (1990)
- [5] M.V. Feigel'man, V.B. Geshkembein, A.I. Larkin and V.M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 2303 (1989)
- [6] R.H. Koch, V. Foglietti, W.J. Gallagher, G. Koren, A. Gupta and M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **63**, 1511 (1989); R.H. Koch, V. Foglietti and M.P.A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2586 (1990)
- [7] Ya.V. Kopelevich, V.V. Lemanov and V.V. Makarov, *Sov. Phys. Solid State* **32**, 2095 (1990)
- [8] Y. Zhao, B. Chen, C.C. Sorrell, Z.L. Chen, Y.Y. He and X.B. Zuge, *Physica C* **248**, 328 (1995)
- [9] T.K. Worthington, E. Olsson, C.S. Nichols, T.M. Shaw and D.R. Clarke, *Phys. Rev. B* **43**, 10538 (1991)
- [10] Shi Li, M. Fistul, J. Deak, P. Metcalf and M. McElfresh, *Phys. Rev. B* **52**, R747 (1995)
- [11] J.R. Clem, *Physica C* **153-155**, 50 (1988)
- [12] M. Tinkham and C.J. Lobb, "Physical Properties of new Superconductors" in H. Ehrenreich and D. Turnbull (eds.), *Solid State Phys.* **42**, 91 (1989)
- [13] G. Koren, A. Gupta, E.A. Gless, A. Segmüller and R.B. Laibowitz, *Appl. Phys. Lett.* **54**, 1054 (1989)
- [14] C. Namgung, E.E. Lachowski, J.T.S. Irvine and A.R. West, *Powder Diffraction* **7**, 49 (1992)

- [15] Q. Li, M. Suenaga, T. Hikata and K. Sato, *Phys. Rev. B* **46**, 5857 (1992)
- [16] R. Hergt, R. Kiergeist, J. Taubert, H.W. Neumueller and G. Ries, *Phys. Rev. B* **47**, 5405 (1993)
- [17] Y. Kopelevich, S. Moehlecke and J.H.S. Torres, *Phys. Rev. B* **49**, 1495 (1994)
- [18] S. Moehlecke and Y. Kopelevich, *Physica C* **222**, 149 (1994)
- [19] *Introduction to Superconductivity*, Michael Tinkham, 2nd edition, McGraw-Hill, 1996
- [20] P.W. Anderson, *Phys. Rev. Lett.* **9**,309 (1962); P.W. Anderson and Y.B. Kim, *Rev. Mod. Phys.* **36**, 39 (1964)
- [21] J. Bardeen and M.J. Stephen, *Phys. Rev.* **140**, A1197 (1965)
- [22] F. Shi, T.S. Rong, S.Z. Zhou, X.F. Wu, J. Du, Z.H. Shi, C.G. Cui, R.Y. Jin, J.L. Zhang, Q.Z. Ran and N.C. Shi, *Phys. Rev. B* **41**, 6541 (1990)
- [23] H.R. Wenk and D.S. Phillips, *Physica C* **200**, 105 (1992)
- [24] A. Maeda, M. Hase, I. Tsukada, K. Noda, S. Takebayashi and K. Uchinokura, *Phys. Rev. B* **41**, 6418 (1990)
- [25] E.V. Blinov, E. Lähderanta, R. Laiho and Yu. P. Stepanov, *Physica C* **199**, 201 (1992)
- [26] P.L. Gammel, L.F. Schneemeyer and D.J. Bishop, *Phys. Rev. Lett.* **66**, 953 (1991)
- [27] S.N. Coppersmith, M. Inui and P.B. Littlewood, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2586 (1990)
- [28] R. Griessen, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1674 (1990)
- [29] W. Wong-Ng et al., *Powder Diffraction Journal* **2**, 192 (1987)
- [30] F. de la Cruz, J. Luzuriaga, E.N. Martinez and E.J. Osquiguil, *Phys. Rev. B* **36**, 6850 (1987)
- [31] D. López and F. de la Cruz, *Phys. Rev. B* **43**, 11478 (1991)
- [32] P. Berghuis and P.H. Kes, *Phys. Rev. B* **47**, 262 (1993)
- [33] D.S.Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **50**, 1486 (1983)
- [34] V.V Makarov and Y. Kopelevich, *Phys. Rev. B* **54**, 84 (1996)

- [35] J.E. Evetts and B.A. Glowacki, *Cryogenics* **28**, 641 (1988)
- [36] C.P.Bean, *Phys. Rev. Lett.* **8**, 250 (1962)
- [37] D.P. Hampshire, X. Cai, J. Servtjens and D.C. Larbalestier, in *Proc. Critical Currents in High-T_c Superconductors*, p. 12 (1988)
- [38] M. Suenaga and A. Ghosh, *IEEE Trans. Magn. Mag.* **21**, 1122 (1985)
- [39] J.S. Xia, S.F. Sun, T. Zhang, L.Z. Cao, Q.R. Zhang, J. Chen and Z.Y. Chen, *Physica C* **158**, 477 (1989)
- [40] C.W. Hagen and R. Griessen, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2857 (1989)
- [41] E. Zeldov, N.M. Amer, G. Koren, A. Gupta, M.W. McElfresh and R.J. Gambino, *Appl. Phys. Lett.* **56**, 680 (1990)
- [42] D.R. Nelson and H.S. Seung, *Phys. Rev. B* **39**, 9153 (1989)