

Tese de Doutorado

Comportamento de Vórtices em Cupratos
Supercondutores

e

Transição Tipo Supercondutor-Isolante em Grafite

José Henrique Spahn Torres

Orientador: Prof. Dr. Yakov Kopelevich

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

Campinas, SP, 23 de Agosto 2002

Dedicado à Christiane

Agradecimentos

Agradeço a todos os que me ajudaram no desenvolvimento desta tese.

Gostaria de agradecer à minha mulher, Christiane, pelo estímulo e incentivo incondicional.

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

Agradeço ao Prof. Dr. Sergio Moehlecke pelas discussões e sugestões que me ajudaram no desenvolvimento desta tese.

Agradeço aos amigos do Laboratório de Materiais e Dispositivos, Juan Carlos Paredes Campoy, Robson Ricardo da Silva e Cláudio Marques pela amizade e ajuda em vários momentos durante o desenrolar deste trabalho.

Gostaria de agradecer ao Prof. Dr. Pablo Esquinazi pela calorosa acolhida quando estive na Alemanha e pelas frutíferas discussões sobre este trabalho. Aos amigos Heiko Kempa e Falk Mrowka que me ajudaram com os equipamentos e com o desenvolvimento dos programas de computador.

Por fim, gostaria de agradecer à Unicamp e à Capes, pela bolsa de estudo concedida.

Resumo

Nesta tese de doutorado estudamos a dinâmica e as propriedades de aprisionamento de vórtices em supercondutores de alta temperatura crítica. Encontramos o desaparecimento com a diminuição do tamanho da amostra do efeito chamado segundo pico na magnetização, um aumento na largura do “loop” de magnetização em função do campo magnético aplicado. Mostramos que este efeito pode ser explicado pela teoria da instabilidade termo-magnética, onde o movimento tipo avalanche dos vórtices causa um aumento local da temperatura, que quando não dissipado, resulta em uma diminuição da magnetização irreversível.

Através de medidas de resistência não local identificamos correlações vórtice-vórtice acima da fronteira de transição de primeira ordem. Identificamos esta fronteira como uma transição de desancoramento da rede de vórtices da rede atômica, ou seja, uma transição entre um estado de vórtices menos ordenado e um estado mais ordenado dos vórtices. Identificamos também que a transição de fusão da rede de vórtices pode ocorrer bem acima da fronteira de transição de primeira ordem.

Medidas da magnetização e resistência basal em função da temperatura e campo magnético em grafite mostraram evidências da ocorrência de instabilidades supercondutoras. Transição induzida por campo magnético entre um comportamento tipo metálico para um comportamento tipo semicondutor da resistência basal acontece em um campo $H_c \sim 1 \text{ kOe}$ aplicado paralelo ao eixo-c cristalográfico. A análise dos dados usando uma teoria de escala revelou uma grande similaridade entre esta transição e a medida em filmes finos supercondutores e outros sistemas 2D, porém esta transição em grafite é observada em temperaturas duas ordens de grandeza maiores.

Abstract

In this thesis we have studied dynamics and pinning properties of the vortex matter in high temperature superconductors. It is found that the second magnetization peak (SMP) effect, an increase in the magnetization hysteresis loop width in Bi2212 single crystals vanishes with decreasing the crystal size. We showed that this effect is not related to the critical current enhancement but can be well explained within a framework of the thermomagnetic instability theory, where the avalanche-like motion of the vortices causes a local increase of the temperature, that if not dissipated, results in a decrease of the irreversible magnetization.

Through non-local in-plane resistance measurements we have concluded on vortex-vortex correlations above the first order transition (FOT) boundary. We identified the FOT with a decoupling transition of the flux line lattice from the atomic lattice, that is the transition from a relatively disordered vortex state to a more ordered vortex lattice state. Our results suggest also that the melting transition of the flux line lattice can occur well above the first order transition boundary.

Basal plane resistance $R_a(H, T)$ and magnetization $M(H, T)$ measurements performed on graphite provide evidence for superconductivity instability occurring in this material. In particular, we have found a magnetic-field-induced transition from metallic- to semiconductor-type resistance behavior. The analysis of the data using a scaling theory revealed a striking similarity between this transition and that measured in thin-film superconductors and other 2D systems. However, in contrast to those materials, the transition in graphite is observable at almost two orders of magnitude higher temperatures.

Sumário

Agradecimentos	v
Resumo	vii
Abstract	ix
Sumário	xi
Introdução Geral	1
I Comportamento de Vórtices em Cupratos Supercondutores	3
1 Introdução	5
1.1 Estado Misto de Supercondutores de Alta Temperatura Crítica (Cupratos)	5
1.2 Teoria elástica da rede de vórtices	7
1.3 Transporte em supercondutores do tipo II	16
1.4 Magnetização em supercondutores do tipo II	21
1.5 Evidências da fusão da rede de vórtices	24
1.6 Explicação alternativa para o salto da magnetização	30
1.7 Segundo pico na magnetização	33
1.8 Explicação alternativa para o SMP: instabilidade termomagnética	37
2 Métodos Experimentais e Amostras	41
2.1 Medidas Magnéticas	41
2.2 Medidas de Transporte	43

2.3	Medidas Não Locais	45
2.4	Programas Desenvolvidos	46
2.5	A técnica de van der Pauw modificada	48
2.6	Amostras Monocristalinas de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$	50
3	Resultados e Discussão	53
3.1	Instabilidade Termo-magnética e Segundo Pico na Magnetização	53
3.2	Rede de Vórtices em Bi2212 acima da linha “FOT”	71
4	Conclusão	85
 II Transição Tipo Supercondutor-Isolante Induzido por Campo Magnético em Grafite		 87
5	Introdução	89
5.1	Supercondutividade em Materiais Baseados em Carbono	89
5.2	Grafitização e Propriedades Físicas do Grafite	92
5.3	Transição Metal - Isolante em 2D	94
5.4	Transição tipo Supercondutor - Isolante	97
5.5	Catálise Magnética	104
6	Amostras, Resultados e Discussão	109
6.1	Amostras de Grafite	109
6.2	Transição do Tipo Supercondutor-Isolante em Grafite	110
7	Conclusão	127
Referências Bibliográficas		131

Introdução Geral

Esta tese de doutorado trata de assuntos que são pontos de muita discussão na comunidade científica atualmente. O primeiro é o estudo de transições de fase na rede de vórtices em supercondutores de alta temperatura crítica, enfocando principalmente a fusão da rede de vórtices e sua transição de desancoramento (“depinning”). O segundo tópico estudado é a possibilidade de correlações supercondutoras a altas temperaturas em grafite, um sistema bidimensional com elétrons fortemente correlacionados.

A tese está dividida em duas partes. A primeira parte trata do comportamento de vórtices em cupratos supercondutores enfocando a fusão da rede de vórtices. No capítulo 1 introduziremos os conceitos básicos necessários ao entendimento das transições de fase no estado de vórtices em supercondutores. No capítulo 2 descreveremos os métodos experimentais utilizados, os equipamentos de medidas, os programas desenvolvidos para o controle dos equipamentos e as amostras utilizadas nesta tese, o modo de preparo e suas caracterizações. No capítulo 3 apresentaremos e discutiremos os resultados obtidos e fechando a primeira parte, no capítulo 4 faremos a conclusão.

Na segunda parte trataremos da transição do tipo supercondutor-isolante no grafite. No capítulo 5 introduziremos as idéias básicas sobre a transição supercondutor-isolante. No capítulo 6 descreveremos as amostras de grafite utilizadas, apresentaremos os resultados obtidos e discutiremos suas possíveis interpretações. No capítulo 7 concluiremos esta parte.

Parte I

Comportamento de Vórtices em Cupratos Supercondutores

Capítulo 1

Introdução

1.1 Estado Misto de Supercondutores de Alta Temperatura Crítica (Cupratos)

Com a descoberta da supercondutividade de alta temperatura crítica em 1986 por Bednorz e Müller [1], novos fenômenos nos supercondutores do tipo II ficaram acessíveis a experimentação. Uma das principais características que distingue estes novos materiais dos convencionais é o possível surgimento de novas fases no estado de vórtices devido às altas temperaturas de transição, além da alta anisotropia destes materiais e o pequeno comprimento de coerência ξ . Transições de fases, tanto dinâmicas quanto estáticas, foram sugeridas para explicar as observações experimentais nesses novos materiais. Primeiro descreveremos as propriedades dos supercondutores convencionais e depois mostraremos as diferenças dos supercondutores de alta temperatura crítica (“High Temperature Superconductors”, HTS).

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.

Nos supercondutores do tipo I, por exemplo, alguns elementos puros, a supercondutividade desaparece quando submetidos a campos maiores que um campo crítico H_c , o campo crítico termodinâmico. Para os materiais do tipo II, por exemplo, alguns compostos e ligas,

alguns elementos puros e os supercondutores de alta temperatura crítica, quando submetidos a campos maiores que o chamado primeiro campo crítico, H_{c1} , o campo penetra no supercondutor na forma de fluxóides quantizados formando uma rede triangular com constante de rede $a_0 = 1.075(\Phi_0/B)^{1/2}$. Cada fluxóide, ou vórtice de fluxo magnético, carrega um quantum de fluxo magnético $\Phi_0 = hc/2e \approx 2 \times 10^{-7} Gcm^2$. Este estado é chamado de estado misto.

Estes vórtices têm a forma de cilindros orientados na direção do campo aplicado e 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 em um comprimento de penetração λ . A figura 1.1 mostra a estrutura de um vórtice isolado.

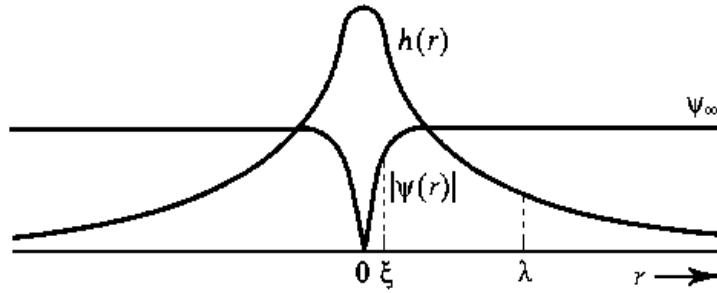


Figura 1.1: Estrutura de um vórtice isolado mostrando as definições do comprimento de coerência ξ e do comprimento de penetração λ .

Na figura 1.1 ψ é uma pseudo-função de onda, também conhecida como parâmetro de ordem de Ginzburg-Landau. 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 .

O diagrama de fases campo magnético - temperatura ($H - T$) dos supercondutores convencionais do tipo II de baixa temperatura de transição é bem descrito pela teoria de Abrikosov-Gorkov [2], que inclui a fase Meissner, caracterizada pela completa expulsão do campo magnético do interior do material para campos abaixo do campo crítico inferior H_{c1} , $H < H_{c1}$, e fase mista, na qual o campo magnético $H > H_{c1}$ penetra no material de forma quantizada, gerando linhas de fluxo, os chamados vórtices Abrikosov. Com o aumento do campo mag-

nético a densidade de vórtices aumenta até que seus núcleos se sobrepõem no campo crítico superior $H = H_{c2}$, quando então o material se torna um metal normal. Este diagrama de fases está mostrado na figura 1.2.

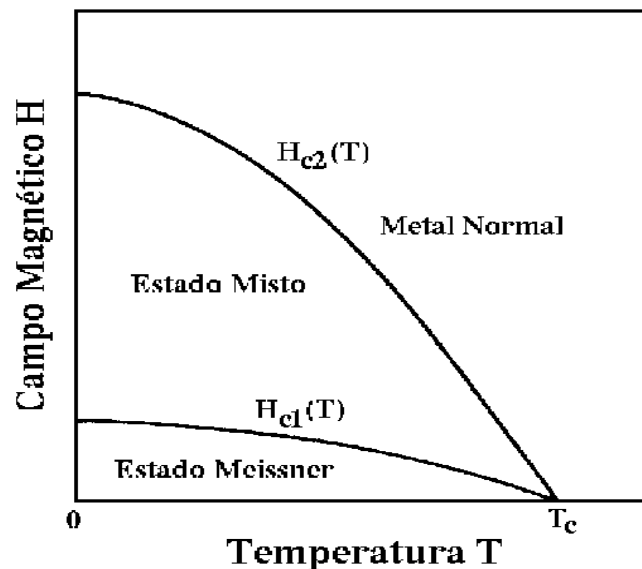


Figura 1.2: Diagrama de fases de um supercondutor convencional do tipo II.

1.2 Teoria elástica da rede de vórtices

A alta anisotropia devido a sua composição lamelar é uma das características que diferenciam os HTS dos supercondutores convencionais. Os dois compostos mais estudados são os cupratos a base de bismuto e ítrio, $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_{8+\delta}$ (Bi2212) e $\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$ (Y123). Nestes sistemas, os planos de óxido de cobre são um elemento estrutural comum, onde supõe-se ocorra a supercondutividade. Na figura 1.3 mostramos a estrutura cristalográfica destes compostos.

Devido a sua anisotropia, os supercondutores de alta temperatura crítica são caracterizados por dois comprimentos de penetração, λ_{ab} ao longo do plano ab , e λ_c ao longo do eixo c , assim como por dois comprimentos de coerência, ξ_{ab} e ξ_c . O parâmetro de anisotropia $\Gamma = \lambda_c/\lambda_{ab}$ é $\Gamma \approx 5$ para Y123 e $\Gamma > 150$ para Bi2212, ou seja, o Bi2212 é muito mais anisotrópico que o Y123. Neste caso, os vórtices são considerados como um empilhamento

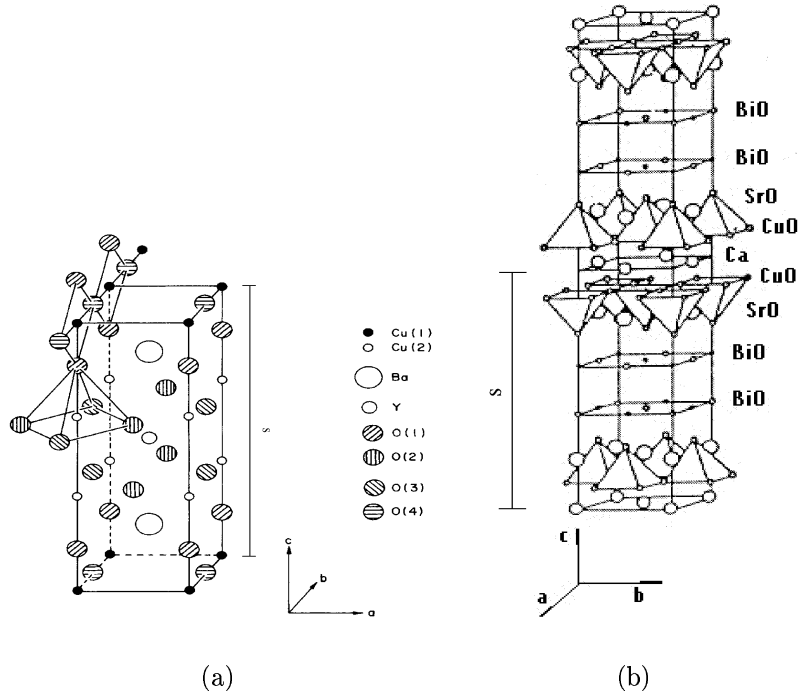


Figura 1.3: Estrutura cristalina dos cupratos supercondutores (a)Y123 e (b)Bi2212, conforme a ref. [3]. Os parâmetros de rede para o Y123 são: $a = b = 3,89\text{\AA}$ e $c = 11,65\text{\AA}$ e para o Bi2212: $a = b = 5,4\text{\AA}$ e $c = 30,8\text{\AA}$.

de panquecas de vórtices. O campo de uma panqueca de vórtice tem uma componente z simétrica e uma componente radial no plano [4]:

$$B_z(r) = (s\phi_0/4\pi\lambda_{ab}^2 r) \exp(-r/\lambda_{ab})$$

$$B_\perp(r) = (s\phi_0 z/4\pi\lambda_{ab}^2 r_\perp) [\exp(-|z|/\lambda_{ab})/|z| - \exp(-r/\lambda_{ab})/r]$$

Numa linha de fluxo, as componentes radiais da panqueca de vórtice se cancelam e somente a componente z se mantém. Uma panqueca de vórtice no plano $z = z_n$ contribui com um fluxo $\phi_0(z_n) = (\phi_0 s/2\lambda_{ab}) \exp(-|z|/\lambda_{ab})$ para o fluxo que passa pelo plano $z = 0$. Isto significa que o fluxo de uma panqueca de vórtice é muito menor que ϕ_0 , mas a soma de todos $\phi_0(z_n)$ ao longo do empilhamento resulta em ϕ_0 . Panquecas de vórtices no mesmo

plano se repelem enquanto que aquelas em diferentes planos se atraem. Esta é a razão pela qual uma rede regular de linhas de fluxo tem a menor energia.

Quando o campo é aplicado quase paralelo aos planos ab o núcleo do vórtice prefere ficar entre os planos de CuO. Quando o acoplamento dos planos é fraco, as linhas de fluxo entre planos ab são chamados de vórtices Josephson. Eles não tem núcleo normal como os vórtices Abrikosov. A corrente que circula o vórtice tem que tunelar através do espaço entre planos. A largura do núcleo do vórtice Josephson é $\lambda_J = \Gamma s$ e sua espessura é s (no Y123, s é o espaçamento entre planos de CuO, $s = 12\text{\AA}$ e no Bi2212 s é a separação entre diferentes conjuntos de biplanos de CuO, $s = 15\text{\AA}$, veja figura 1.3).

A teoria de Lawrence-Doniach [5] é a mais utilizada para descrever supercondutores lamelares quando a temperatura não está muito próxima de T_c . Este modelo define para cada plano supercondutor um parâmetro de Ginzburg-Landau bidimensional $\psi_n(x, y)$ (n = índice do plano, $z_n = ns$) e substitui o gradiente ao longo do eixo z por uma diferença finita. O funcional de energia livre é:

$$F\{\psi_n(r_\perp), A(r)\} = s \sum_n \int d^2r_\perp \left\{ -\alpha |\psi_n|^2 + \frac{\beta}{2} |\psi_n|^4 + \frac{\hbar^2}{2m} \left| (i\nabla + \frac{2e}{\hbar} A) \psi_n \right|^2 \right. \\ \left. + \frac{\hbar^2}{2Ms^2} |\psi_{n+1} - \psi_n \exp(iI_n)|^2 \right\} + \int \frac{B^2}{2\mu_0} d^3r \quad (1.1)$$

$$I_n(r_\perp) = \frac{2e}{\hbar} \int_{ns}^{ns+s} A_z(r_\perp, z) dz \approx \frac{2e}{\hbar} s A_z(r_\perp, ns) \quad (se\ s \ll \lambda). \quad (1.2)$$

Aqui $r_\perp = (x, y)$, $\alpha \propto T_c - T$, m e M são as massas efetivas dos pares de Cooper se movendo no plano ab e ao longo de c , $B = \nabla \times A$, $2e/\hbar = 2\pi/\phi_0$, $A_z = \hat{z}A$, e a integral (1.2) é calculada ao longo de uma linha reta. Tem-se $\xi_{ab}^2 = \hbar^2/2m\alpha$, $\xi_c^2 = \hbar^2/2M\alpha$, $\lambda_{ab}^2 = m\beta/4\mu_0 e^2 \alpha$, $\lambda_c^2 = M\beta/4\mu_0 e^2 \alpha$. Para $\xi_c \gg s$, a diferença em (1.1) pode ser substituída pelo gradiente $(\partial/\partial z - 2ieA_z/\hbar)\psi(x, y, z)$, e a teoria anisotrópica de Ginzburg-Landau é recuperada. No limite oposto, $\xi_c \ll s$, (1.1) descreve um supercondutor lamelar com fraco acoplamento Josephson entre planos.

Uma das características mais marcantes dos HTS é a possibilidade de ocorrer a fusão da rede de vórtices devido às flutuações térmicas em um campo magnético bem abaixo de H_{c2} [6, 7]. Devido a sua característica unidimensional, podemos calcular a distorção sofrida

por uma linha de fluxo usando a teoria da elasticidade. A energia linear elástica F_{elast} da rede de vórtices pode ser mais convenientemente expressa no espaço k . Os deslocamentos das linhas de fluxo $u_i(z) = r_i(z) - R_i = (u_{i,x}; u_{i,y}; 0)$ das posições ideais $R_i = (X_i; Y_i; z)$ são expressos pelos componentes de Fourier:

$$u_i(z) = \int_{BZ} \frac{d^3k}{8\pi^3} u(k) e^{ikR_i}, \quad u(k) = \frac{\phi_0}{B} \sum_i \int dz u_i(z) e^{-ikR_i} \quad (1.3)$$

e então a forma quadrática mais geral em $u(k) = (u_x; u_y; 0)$ é escrita

$$F_{elast} = \frac{1}{2} \int_{BZ} \frac{d^3k}{8\pi^3} u_\alpha(k) \Phi_{\alpha\beta}(k) u_\beta^*(k) \quad (1.4)$$

com $(\alpha, \beta) = (x, y)$. As integrais no espaço k , eqs. (1.3) e (1.4) são sobre a primeira zona de Brillouin (BZ) da rede de vórtices e sobre $-\xi^{-1} \leq k_z \leq \xi^{-1}$. O coeficiente $\Phi_{\alpha\beta}(k)$, chamado matriz elástica, é real, simétrico e periódico no espaço k . Dentro da teoria contínua deste meio elástico uni-axial, $\Phi_{\alpha\beta}$ está relacionado com o módulo elástico c_{11} de compressão uni-axial, c_{66} de cisalhamento e c_{44} de inclinação (“tilt”), por:

$$\begin{aligned} \Phi_{xx} &= c_{11}k_x^2 + c_{66}k_y^2 + c_{44}k_z^2 + \alpha_L(k) \\ \Phi_{yy} &= c_{66}k_x^2 + c_{11}k_y^2 + c_{44}k_z^2 + \alpha_L(k) \\ \Phi_{xy} &= \Phi_{yx} = (c_{11} - c_{66})k_xk_y \end{aligned} \quad (1.5)$$

Para complementação, o parâmetro de Labusch α_L foi adicionado e descreve a interação elástica da rede de vórtices com o potencial de aprisionamento causado por inomogeneidades no material. Para aprisionamento coletivo fraco [8] $\alpha_L(k)$ deve decrescer quando $k_\perp > R_c^{-1}$ ou $k_z > L_c^{-1}$ onde R_c e $L_c \approx (c_{44}/c_{66})^{1/2} R_c$ são o raio e o comprimento das regiões coerentes da rede aprisionada.

Para distorções uniformes, os módulos elásticos da rede triangular são:

$$\begin{aligned} c_{11} - c_{66} &= B^2 \partial^2 F / \partial B^2 = (B^2 / \mu_0) \partial B_a / \partial B \\ c_{44} &= B \partial F / \partial B = B B_a / \mu_0 \\ c_{66} &\approx (B \phi_0 / 16 \pi \lambda^2 \mu_0) (1 - \frac{1}{2\kappa^2}) (1 - b^2) (1 - 0,58b + 0,29b^2) \end{aligned} \quad (1.6)$$

com $b = B/B_{c2}$, $B_a = \mu_0 H_a$ onde H_a é o campo magnético aplicado, e $\kappa = \lambda/\xi$. Aqui $c_{11} - c_{66}$ é o módulo para compressão isotrópica e $B_a/\mu_0 = \partial F/\partial B$ é o campo aplicado que esta em equilíbrio com a rede de vórtices na indução B , onde F é o funcional de Lawrence-Doniach (1.1). A equação (1.6) mostra que o módulo de cisalhamento c_{66} tende a zero quando $\kappa = 1/\sqrt{2}$, quando $\lambda \rightarrow \infty$ (forte sobreposição dos campos dos vórtices) e quando $B \rightarrow B_{c2}$ (forte sobreposição dos núcleos dos vórtices).

Para materiais anisotrópicos os módulos (1.6) resultam em:

$$c_{11}(k) = \frac{B^2}{\mu_0} \frac{1 + \lambda_c^2 k^2}{(1 + \lambda_{ab}^2 k^2)(1 + \lambda_c^2 k_\perp^2 + \lambda_{ab}^2 k_z^2)} \quad (1.7)$$

$$c_{44}(k) = \frac{B^2}{\mu_0} \left[\frac{1}{1 + \lambda_c^2 k_\perp^2 + \lambda_{ab}^2 k_z^2} + \frac{f(k_z)}{\lambda_{ab}^2 k_{BZ}^2} \right] \quad (1.8)$$

$$f(k_z) = \frac{1}{2\Gamma^2} \ln \frac{\xi_c^{-2}}{\lambda_{ab}^{-2} + k_z^2 + \Gamma^2 k_0^2} + \frac{\ln [1 + k_z^2/(\lambda_{ab}^{-2} + k_0^2)]}{2k_z^2 \lambda_{ab}^2} \quad (1.9)$$

$$c_{66} \approx B\phi_0/(16\pi\lambda_{ab}^2\mu_0) \quad (1.10)$$

Estes resultados são válidos para $b = B/B_{c2} < 0,25$ e $\kappa = \lambda_{ab}/\xi_{ab} > 2$. Para estender estes resultados para $b > 0,5$ o módulo de cisalhamento c_{66} (1.6) deve ser usado com λ substituído por λ_{ab} ; λ_{ab}^2 e λ_c^2 em (1.7) e (1.8) devem ser divididos por $1 - b$, e o segundo termo dentro dos colchetes em (1.8) deve ser substituído por $(1 - b)/(\lambda_c^2 k_{BZ}^2) = (1 - b)\phi_0/(4\pi B\lambda_c^2)$. Note que o fator $1 - b$ leva todos os módulos a tenderem a zero para $B \rightarrow B_{c2}$.

Flutuações térmicas da rede de vórtices podem ser muito grandes em HTS devido as altas temperaturas de transição e a grande elasticidade que é causada pela maior penetração magnética e pronunciada anisotropia. O deslocamento quadrático médio das posições dos vórtices pode ser calculado da teoria elástica atribuindo para cada módulo elástico da rede uma energia média $k_B T/2$. Com (1.4) tem-se:

$$\langle u_\alpha(k) \Phi_{\alpha\beta}(k) u_\beta(k) \rangle / 2 = k_B T/2, \quad \text{assim} \quad \langle u_\alpha(k) u_\beta(k) \rangle = k_B T \Phi_{\alpha\beta}^{-1}(k), \quad (1.11)$$

onde $\Phi_{\alpha\beta}^{-1}(k)$ é a matriz elástica recíproca. Dos coeficientes de Fourier (1.11) a média térmica $\langle u^2 \rangle = \langle |u_\nu(z)|^2 \rangle$ é obtida como uma soma sobre todos $\langle |u_\nu(z)|^2 \rangle$. Fazendo $V \rightarrow \infty$ esta soma se torna uma integral sobre a zona de Brillouin e sobre todo k_z ,

$$\langle u^2 \rangle = \langle u_x^2 + u_y^2 \rangle = k_B T \int_{BZ} \frac{d^2 k_\perp}{4\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \frac{dk_z}{2\pi} [\Phi_{xx}^{-1}(k) + \Phi_{yy}^{-1}(k)]. \quad (1.12)$$

Com a aproximação contínua (1.5) para $\Phi_{\alpha\beta}$, que por consistência requer que se substitua a primeira zona de Brillouin hexagonal por um círculo de raio $k_{BZ} = (4\pi B/\phi_0)^{1/2} = (2b)^{1/2}/\xi$, e omitindo os modos de compressão pois $c_{11} \gg c_{66}$, temos explicitamente para $B \parallel c$,

$$\langle u^2 \rangle = \frac{k_B T}{2\pi^2} \int_0^{k_{BZ}} dk_\perp k_\perp \int_0^\infty \frac{dk_z}{c_{66}k_\perp^2 + c_{44}(k)k_z^2 + \alpha_L}. \quad (1.13)$$

A maior contribuição para esta integral vem dos grandes valores de $k_\perp \approx k_{BZ}$ devido ao fator $k_\perp$ no numerador. O módulo de inclinação (1.8) é então fortemente reduzido com respeito ao seu valor para esforço uniforme ($k = 0$). A dispersão de $c_{44}(k)$ aumenta a flutuação $\langle u^2 \rangle$ próximo de B_{c2} aproximadamente por um fator $k_{BZ}\lambda_c/2(1-b)^{1/2} = [b\kappa^2/2(1-b)]^{1/2}\Gamma = [B \ln \kappa/4B_{c1}(1-B/B_{c2})]^{1/2}\Gamma \gg 1$.

Uma boa aproximação que superestima ligeiramente $\langle u^2 \rangle$ (1.13) é a substituição de $k_\perp$ por k_{BZ} no módulo de inclinação $c_{44}(k)$ (1.8); a contribuição dominante para c_{44} então vem do segundo termo em (1.8). Notando que $k_{BZ}^2 = 4\pi B/\phi_0 = 2b/\xi_{ab}$ e $\ln(\xi_c^{-2}/\Gamma^2 k_{BZ}^2) \approx \ln(1/2b)$ (para $\kappa \gg 1$), tem-se a fórmula de interpolação $c_{44}(k_\perp = k_{BZ})/c_{44}(0) \approx (1-b)\ln[2 + (1/2b)^{1/2}]/(2b\kappa^2\Gamma^2)$ e $c_{66} \sim b(1-b)^2$ (1.6). Assim obtemos para $0 < b < 1$, $\kappa \gg 1$ e $B \parallel c$ as flutuações térmicas $\langle u^2 \rangle \approx (k_B T/4\pi)[k_{BZ} - (\alpha_L/c_{66})^{1/2}][c_{66}c_{44}(k_\perp = k_{BZ})]^{-1/2}$, explicitamente:

$$\langle u^2 \rangle \approx k_B T \left(\frac{16\pi\mu_0^2\lambda_{ab}^4\Gamma^2}{B\phi_0^3} \right)^{1/2} \left[(1-b)^3 \ln \left(2 + \frac{1}{\sqrt{2b}} \right) \right]^{-1/2} \left[1 - \left(\frac{2\epsilon}{b} \right)^{1/2} \right]. \quad (1.14)$$

A seguir, desconsideraremos a correção devido aos centros de aprisionamento $2\epsilon/b = \alpha_L/c_{66}k_{BZ}^2 = 4\alpha_L\lambda_{ab}^2\mu_0/B^2 \ll 1$. O resultado geral (1.14) é melhor expresso em termos do número de Ginzburg $Gi = \frac{1}{2}[k_B T_c \Gamma \mu_0/4\pi\xi_{ab}^3(0)B_c^2(0)]^2$, que determina a largura relativa do regime de flutuação de um supercondutor próximo a $B_{c2}(T)$:

$$\frac{\langle u^2 \rangle}{a^2} \approx \left(\frac{3Gi B}{\pi^2 B_{c2}(0)} \right)^{1/2} \frac{T}{T_c} \frac{\lambda_{ab}^2(T)}{\lambda_{ab}^2(0)} \left[(1-b)^3 \ln \left(2 + \frac{1}{\sqrt{2b}} \right) \right]^{-1/2}, \quad (1.15)$$

onde $a^2 = 2B/\sqrt{3}\phi_0$. As flutuações $\langle u^2 \rangle$ são muito amplificadas pela anisotropia e pela

criação e movimento de deslocções e outros defeitos estruturais na rede de vórtices.

Em analogia com redes de cristais, uma temperatura de fusão T_m da rede de vórtices tridimensional pode ser estimada do critério de Lindemann para flutuações térmicas, $\langle u^2 \rangle^{1/2} = c_L a$, onde $c_L \approx 0,1 - 0,2$ e a é o espaçamento entre vórtices. Usando (1.15), $T_m = t_m T_c$ é dado implicitamente por:

$$c_L^4 = \frac{3Gi}{\pi^2} \frac{B}{B_{c2}(0)} \frac{\lambda_{ab}^4(T_m)}{\lambda_{ab}^4(0)} \frac{t_m^2}{(1-b)^3 \ln(2 + 1/\sqrt{2b})}. \quad (1.16)$$

Esta é uma estimativa geral das flutuações, porém, um pouco superestimada, pois $k_\perp \approx k_{BZ}$ foi assumido em $c_{44}(k)$. Para obtermos expressões explícitas assume-se $B_{c2}(T) \approx B_{c2}(0)(1-t)$ e $\lambda_{ab}(T) \approx \lambda_{ab}(0)/(1-t)^{1/2}$, com $t = T/T_c$, o que significa independência da temperatura para $\kappa = \lambda_{ab}/\xi_{ab}$. Escrevendo $B = bB_{c2}(T) = \tilde{b}B_{c2}(0)$, $1-b = 1-\tilde{b}/(1-t) = (1-t-\tilde{b})/(1-t)$, e $t_m = T_m/T_c$, obtemos:

$$c_L^4 \approx \frac{3Gi}{\pi^2} \frac{b}{(1-b)^3} \frac{t_m^2}{1-t_m} = \frac{3Gi}{\pi^2} \frac{\tilde{b}t_m^2(1-t_m)}{(1-t_m-\tilde{b})^3}. \quad (1.17)$$

Para baixa indução $b \ll 1$, a expressão explícita para o campo de fusão $B_m(T)$ fica:

$$B_m(T) = B_0 \left(\frac{1-t}{t} \right)^2 \ln \frac{1}{\sqrt{2b}}, \quad B_0 = \frac{c_L^4 \phi_0^5}{12\pi k_B^2 T_c^2 \Gamma^2 \mu_0^2 \lambda_{ab}^4(0)}. \quad (1.18)$$

Isto significa que $B_m(T) \propto (T_c - T)^2$ próximo a T_c e $B_m(T) \propto 1/T^2$ longe de T_c . A assim definida temperatura de fusão $T_m^{3D}(B)$ é baixa. Como dito acima, o amolecimento da rede de vórtices pelos defeitos estruturais diminui ainda mais T_m^{3D} . Para $T_m^{3D} \approx T_c$ tem-se:

$$T_m^{3D} = T_c \left[1 - \left(24\pi B / \ln \frac{1}{2b} \right)^{1/2} k_B T_c \mu_0 \Gamma \lambda_{ab}^2(0) / c_L^2 \phi_0^{5/2} \right]. \quad (1.19)$$

Devido a suas características lamelares, HTS podem exibir características bidimensionais. Quando a temperatura é diminuída desde T_c , uma transição de supercondutividade 3D para supercondutividade 2D é esperada quando o comprimento de coerência ao longo do eixo c , $\xi_c(T) \sim (T_c - T)^{-1/2}$, se torna menor que o espaçamento s entre os planos supercondutores [5]. Várias transições de fase foram previstas para este sistema quase 2D. Descreveremos a seguir as duas mais importantes para este trabalho, a transição de fusão 2D e a transição de desacoplamento dos planos supercondutores.

A transição de fusão 2D pode ser desenvolvida a partir de (1.19) tomando como base um filme fino de espessura d . Uma rede de vórtices 2D infinita livre de centros de aprisionamento é sempre instável pois sua energia livre pode ser reduzida por nucleações térmicas de deslocamentos (“edge dislocations”) mesmo quando $T \rightarrow 0$. Mas mesmo aprisionamentos fracos estabilizam a rede 2D¹. Isto pode ser visto da estimativa das flutuações 2D:

$$\langle u^2 \rangle_{filme} = k_B T \int_{BZ} \frac{d^2 k_{\perp} / 4\pi^2 d}{c_{66} k_{\perp}^2 + \alpha_L} = \frac{k_B T}{4\pi d c_{66}} \ln \left(1 + \frac{k_{BZ}^2 c_{66}}{\alpha_L} \right), \quad (1.20)$$

conforme (1.13) com $\int_{-\pi/d}^{\pi/d} dk_z = 1/d$ inserido. Assim para forças de restauração elástica grandes dos centros de aprisionamento, $\alpha_L \gg k_{BZ}^2 c_{66} = B^2 / (4\lambda^2 \mu_0)$, temos $\langle u^2 \rangle_{filme} = k_B T k_{BZ}^2 / (4\pi \alpha_L d) = k_B T B / (\phi_0 \alpha_L d) \approx k_B T / (\alpha_L d a^2)$, mas para α_L pequenos as flutuações divergem logaritmicamente com a diminuição de α_L ou d para filmes de tamanho infinito.

Na rede de vórtices 2D de um filme fino de espessura d e raio r , nucleação espontânea de deslocamentos na rede de vórtices com espaçamento a custa uma energia $U = (da^2 c_{66} / 4\pi) \ln(R/a)$ e aumenta a entropia em $S = k_B \ln(R/a)$, onde R^2/a^2 é o número de possíveis posições dos núcleos de deslocamentos. A energia livre $F = U - TS$ pode, portanto, ser diminuída pelas criações espontâneas de deslocamentos, levando a uma fusão mediada pelas deslocamentos em $T = T_m^{2D} = a^2 d c_{66} / (4\pi k_B)$. Para se obter a fusão para camadas de filmes ou planos, como nos HTS, deve-se substituir d pelo espaçamento entre planos s . Inserindo o módulo de cisalhamento c_{66} (1.10), temos explicitamente:

$$T_m^{2D} = \frac{a^2 s c_{66}}{4\pi k_B} = \frac{\phi_0^2 s}{64\pi^2 k_B \mu_0 \lambda_{ab}^2}. \quad (1.21)$$

Note que T_m^{2D} não depende de B .

Espera-se que panquecas de vórtices 2D em planos vizinhos separados por uma distância s se desacoplem quando a energia de cisalhamento típica da rede de vórtices $\frac{1}{2} k_{BZ}^2 c_{66}$ começa a exceder a energia de inclinação $\frac{1}{2} k_{BZ}^2 c_{44}(k)$ em $k_z = \pi/s$. Com os módulos elásticos de (1.8) a (1.10) esta estimativa fornece o campo de desacoplamento B_{2D} acima do qual os planos estão desacoplados e a rede 2D de panquecas de vórtices estão descorrelacionadas:

$$B_{2D} = (\pi \phi_0 / \Gamma^2 s^2) \ln(\Gamma s / \pi \xi_{ab}). \quad (1.22)$$

¹Giamarchi e Le Doussal [9,10] previram teoricamente a ocorrência de uma fase de vidro de Bragg (“Bragg glass”) ordenada a baixos campos que se transforma em um vidro de vórtices ou em um líquido a altos campos na presença de desordem. Não trataremos deste ponto.

As flutuações térmicas da rede de panquecas de vórtices nos planos supercondutores levam a um desalinhamento dos vórtices em planos adjacentes. Com um alinhamento perfeito, isto é, se as linhas de vórtices são retas e perpendiculares aos planos, a diferença de fase entre planos vizinhos é $\delta_n(r_\perp) = 0$. Com o aumento da temperatura, as médias temporais e espaciais $\langle \delta_n^2 \rangle$ aumentam, até que em $\langle \delta_n^2 \rangle \approx 1$, a coerência de fase entre planos é destruída e os planos então se desacoplam. Glazman e Koshelev [11] encontraram para esta transição de desacoplamento $T = T_{dec}^{GK} \approx a\phi_0^2(4\pi)^{-3/2}/(\mu_0 k_B \lambda_{ab} \lambda_c)$. Em termos da temperatura de transição de fusão 2D (1.21) pode-se escrever como:

$$T_{dec}^{GK} \approx T_m^{2D} (B_{cr}/B)^{1/2} \quad \text{com } B_{cr} \approx 64\pi\phi_0/\Gamma^2 s^2. \quad (1.23)$$

Assim, para campos suficientemente altos $B > B_{cr}$, desacoplamento dos planos deve ocorrer em T abaixo de T_m^{2D} .

Quando B é menor que B_{cr} , as forças de restauração inter-planos são mais importantes e a temperatura de fusão aumentará e se aproximará da dependência 3D. Combinando os resultados de 3D e 2D para materiais altamente anisotrópicos como o Bi2212 para $H \parallel c$, espera-se que a linha de fusão inicie-se próximo a T_c com B_m seguindo inicialmente como $(T_c - T)^2$ até que B_m atinja um valor $\sim B_{cr}$ em $T \sim T_m^{2D}$, após o que B_m aumenta quase verticalmente. Este cenário está exemplificado esquematicamente na figura 1.4(b) para um material altamente anisotrópico como o Bi2212.

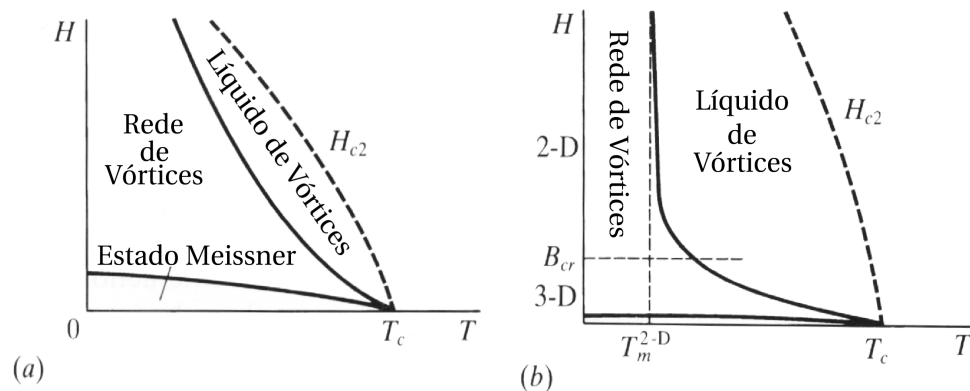


Figura 1.4: Diagrama de fases esquemático levando em consideração as flutuações térmicas, mostrando a linha de fusão da rede de vórtices (a) para um material com baixa anisotropia (como Y123) e (b) para um material lamelar, altamente anisotrópico (como Bi2212). Da referência [12].

Como vimos acima, na ausência de centros de aprisionamento a rede de vórtices passa por várias transições de fase e, como consequência das flutuações térmicas, o diagrama H-T se modifica, como mostrado na figura 1.4, onde estas fases são mostradas.

Com esta revisão da teoria das transições de fase no estado de vórtices na ausência dos centros de aprisionamento temos a base necessária para entendermos os resultados que apresentaremos no capítulo 4, porém para materiais reais a presença de centros de aprisionamento modifica o comportamento da rede de vórtices. Veremos a seguir como a presença de centros de aprisionamento modificam suas propriedades magnéticas e de transporte.

1.3 Transporte em supercondutores do tipo II

Quando uma densidade de corrente $\vec{j}$ é aplicada ao sistema de vórtices, as linhas de fluxo começam a se mover devido a força de Lorentz $\vec{F}_L = \vec{j} \times \vec{B}/c$. Esta força é compensada pela força de fricção $\vec{F}_\eta = -\eta \vec{v}$, onde $\vec{v}$ é a velocidade do sistema de vórtices no estado estacionário, $\vec{v} = \vec{j} \times \vec{B}/c\eta$ e η é o coeficiente de fricção. Com os vórtices em movimento surge um campo elétrico $\vec{E} = \vec{B} \times \vec{v}/c$ na mesma direção da densidade de corrente aplicada e observa-se então uma potência dissipada $P = (\vec{j} \times \vec{B})^2/c^2\eta$. Para que tenhamos novamente o estado supercondutor sem dissipação, as linhas de fluxo devem ficar presas e não se moverem, de modo que $\vec{v} = 0$ mesmo que $\vec{F}_L \neq 0$. Isto ocorre em materiais reais, onde existem defeitos (desordem) que prendem os vórtices. Esses defeitos, também chamados de centros de “pinning” ou aprisionamento, compensam a força de Lorentz, impedindo que se movam, $\vec{F}_L + \vec{F}_{pin} = 0$. Porém, aumentando a densidade de corrente j além da densidade de corrente crítica $j_c = cF_{pin}/B$ (supondo $\vec{j} \perp \vec{B}$) causa o chamado “depinning” ou desancoramento dos vórtices, condição em que eles se tornam livres para se mover e em consequência há dissipação de energia. Um modo de quantificar a intensidade dos centros de aprisionamento de um determinado material é calcular a razão j_c/j_0 , onde $j_0 = cH_c/3\sqrt{6}\pi\lambda$ é a densidade de corrente de desemparelhamento dos pares de Cooper e H_c é o campo crítico termodinâmico, o que dá uma estimativa da desordem no material. Como Larkin e Ovchinnikov [8, 13] demonstraram, a desordem destrói a ordem translacional de longa distância, com importantes consequências sobre o diagrama de fases H-T.

Outra forma de desordem são as induzidas por flutuações térmicas, que discutimos em detalhes anteriormente. Elas são responsáveis pelo movimento dos vórtices mesmo que $j < j_c$,

fazendo com que estes pulem as barreiras de potencial dos centros de aprisionamento, efeito conhecido como “flux creep” [14, 15], cujo efeito é equivalente a um movimento dirigido dos vórtices, gerando novamente dissipação e que veremos em detalhes mais adiante. A competição entre os efeitos da flutuação térmica e os defeitos causa outros fenômenos além do “creep”, o principal é uma diminuição da força de aprisionamento devido as oscilações na posição dos vórtices reduzindo assim a densidade de corrente crítica j_c do sistema. Este efeito é conhecido como “thermal depinning” ou desancoramento térmico. O parâmetro que governa as flutuações térmicas é o número de Ginsburg $Gi = [k_B T_c \Gamma / H_c^2(0) \xi^3(0)]^2 / 2$ que é a relação entre a energia térmica em T_c e a energia de condensação ($T=0$) dentro do volume de coerência ξ^3 .

Com estes dois parâmetros quantificando a intensidade da desordem (j_c/j_0) e as flutuações térmicas (Gi) podemos comparar de uma maneira bem sucinta os materiais supercondutores de alta temperatura crítica com os supercondutores convencionais. Nos supercondutores convencionais, o aprisionamento é muito forte, $j_c/j_0 \simeq 10^{-2} - 10^{-1}$, enquanto que as flutuações térmicas são fracas, $Gi \simeq 10^{-8}$. Nos supercondutores de alta temperatura o aprisionamento é fraco, $j_c/j_0 \simeq 10^{-3} - 10^{-2}$, enquanto as flutuações térmicas são enormes $Gi \simeq 10^{-2} - 1$.

Como dito acima, as linhas de fluxo são aprisionadas por defeitos no material que impedem seu movimento, porém quando temos uma corrente aplicada ao supercondutor maior que j_c , de modo que a força de Lorentz é maior que a força de aprisionamento, o vórtice então se movimenta sem sentir a presença dos centros de aprisionamento. Este efeito é chamado de “flux flow”. No entanto, estes vórtices livres não estão só sob a ação da força de Lorentz, pois 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 $\vec{F} = -\eta \vec{v}$, onde η é o coeficiente de viscosidade. Igualando a força de viscosidade à força de Lorentz temos a relação dos módulos dada por:

$$J \frac{\phi_0}{c} = \eta v \quad (1.24)$$

Como isso representa um comportamento ôhmico ($J \propto v \propto E$) podemos escrever

$$\rho_{ff} = \frac{E}{J} = B \frac{\phi_0}{c^2 \eta}. \quad (1.25)$$

Assim, se η é independente de B , ρ_{ff} , a resistividade de “flow”, é proporcional a B . Então o problema se reduz a achar η , que pode ser expresso em termos de potência dissipada na

forma $W = -\vec{F} \cdot \vec{v} = \eta v^2$. η pode ser encontrado utilizando-se um modelo desenvolvido por Bardeen e Stephen [16] onde o núcleo do vórtice é considerado como uma região normal de raio ξ . Como resultado temos [12]:

$$\eta = \frac{\phi_0 H_{c2}}{c^2 \rho_n}, \quad (1.26)$$

e substituindo na equação para a resistividade “flow” (eq. 1.25) chegamos a:

$$\rho_{ff} = \rho_n \frac{H}{H_{c2}}. \quad (1.27)$$

onde tomamos $H \approx B$.

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 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 [14, 15]. Não havendo corrente elétrica fluindo no supercondutor, a probabilidade de um vórtice saltar de um centro de aprisionamento para outro vizinho é igual para todas as direções considerando centros idênticos (ver figura 1.5(a)).

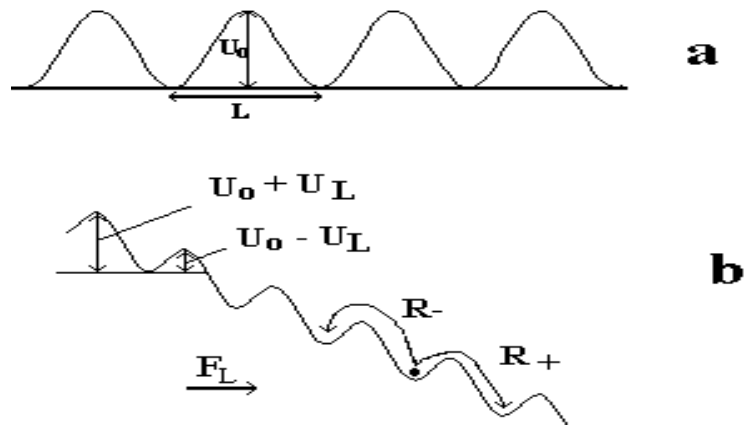


Figura 1.5: Potenciais dos centros de aprisionamento sem corrente aplicada (a) e com corrente aplicada (b).

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 (1.5(b)). Chamando a probabilidade de saltos a favor da força de Lorentz de R_+ e contra a força de Lorentz de R_- podemos escrever:

$$\begin{aligned} R_+ &= \omega_0 \exp[-(U_0 - U_L)/kT] \\ R_- &= \omega_0 \exp[-(U_0 + U_L)/kT] \end{aligned} \quad (1.28)$$

onde ω_0 é uma frequência característica de vibração da linha de fluxo e k é a constante de Boltzmann. Aqui definimos $U_L = (\vec{j} \times \vec{B})r_p V_c$ e $U_0 = (\vec{j}_c \times \vec{B})r_p V_c$, onde r_p é o alcance do potencial de aprisionamento, 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 $\vec{j}_c$ é a corrente crítica de desancoramento definida como o prolongamento da região linear de “flux flow” até $E = 0$ numa curva $E \times J$ (figura 1.6). U_0 é chamada de energia de ativação e U_L é a energia associada à força de Lorentz. Com isso podemos calcular a taxa líquida de salto:

$$R_{eff} = R_+ - R_- = 2\omega_0 \exp(-U_0/kT) \sinh(U_L/kT) \quad (1.29)$$

Escrevendo a velocidade média dos vórtices como $v = R_{eff}L$, onde L é a distância média entre centros de aprisionamento (ver figura 1.5), já que os centros de aprisionamento tem uma distribuição aleatória; temos então que o campo elétrico gerado pelos saltos é:

$$E = \frac{2\omega_0 BL}{c} \exp(-U_0/kT) \sinh(U_L/kT) \quad (1.30)$$

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

$$E \propto j \exp(-U_0/kT) \quad (1.31)$$

o que nos dá uma relação linear e ôhmica 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 $\exp$):

$$E \propto \exp(j) \quad (1.32)$$

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

O gráfico abaixo (figura 1.6) 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 ôhmica 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 ôhmico.

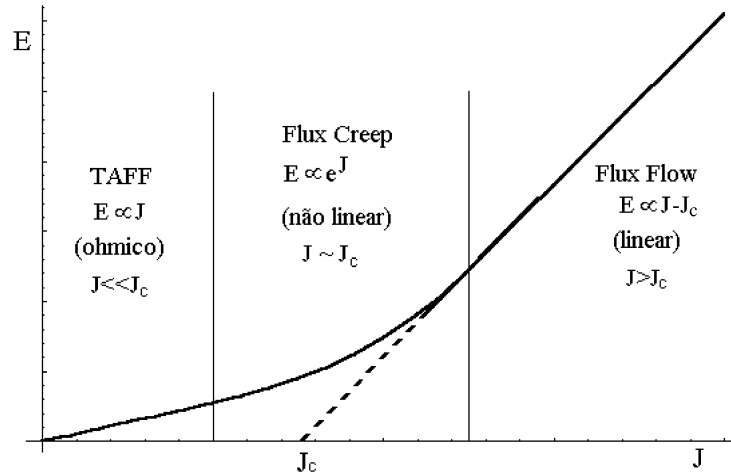


Figura 1.6: Característica de uma curva $E \times J$ para uma ampla faixa de corrente.

Teorias de “creep” coletivo ampliam o modelo de Anderson e predizem que o volume termicamente ativado V_c depende da densidade de corrente J e se torna infinito para $J \rightarrow 0$. Com isso a energia de ativação também diverge, $U \propto V_c \propto 1/J^\alpha$ com $\alpha > 0$. Como consequência a resistividade $\rho(J, T) \sim \exp[-U(J)/kT]$ vai realmente a zero para $J \rightarrow 0$. Qualitativamente o mesmo resultado é obtido pela teoria de “vortex glass” [17, 18]. A idéia básica do comportamento vítreo é que se existe uma transição de fase de segunda ordem para este estado de “vortex glass” similar às teorias de “spin glass”, então o comprimento de correlação característico ξ_g e o tempo de relaxação τ_g das flutuações do parâmetro de ordem

do estado vítreo devem divergir na temperatura de transição para o estado vítreo T_g ,

$$\begin{aligned}\xi_g(T, B) &= \xi_g(B) |1 - T/T_g|^{-\nu} \\ \tau_g(T, B) &\simeq \tau_g(B) |1 - T/T_g|^{-\nu z}\end{aligned}\tag{1.33}$$

O modelo de “vortex glass” prevê leis de escala, isto é, o campo elétrico deve escalar como $E\xi_g^{z-1} = f_{\pm}(J\xi_g^{D-1})$ onde $z \approx 4$, D é a dimensão espacial e $f_{\pm}(x)$ são funções de escala para as regiões acima e abaixo de T_g . Para $x \rightarrow 0$ tem-se $f_+(x) = \text{const}$ e $f_-(x) \rightarrow \exp(-x^{-\mu})$. Em T_g uma lei de potência para a curva corrente por voltagem ($I \times V$) é esperada, $E \propto J^{(z+1)/(D-1)}$, assim

$$\rho \propto J^{(z+1)/(D-1)-1} \text{ para } T = T_g \tag{1.34}$$

$$\rho \propto \exp[-(J_2/J)^{\alpha}] \text{ para } T < T_g, \tag{1.35}$$

onde J_2 é uma densidade de corrente característica dependente da temperatura [4].

Na teoria de “creep” coletivo não há uma temperatura de “glass” explícita mas o modelo é semelhante pois o “creep” coletivo só ocorre abaixo da temperatura de fusão T_m acima da qual a rede de vórtices perde sua rigidez. Assim T_m tem um significado semelhante a T_g .

1.4 Magnetização em supercondutores do tipo II

Nas propriedades magnéticas os centros de aprisionamento também causam modificações. Na ausência de centros de aprisionamento, a rede de vórtices pode sempre alcançar seu estado termodinâmico de equilíbrio. A magnetização neste caso é reversível, ou seja, não depende da história termo-magnética da amostra. Os centros de aprisionamento possibilitam um estado de não equilíbrio ou uma distribuição espacial não uniforme dos vórtices, que são estabilizados, pelo menos temporariamente, nos centros de aprisionamento. Neste caso as propriedades magnéticas são irreversíveis.

No estado de não equilíbrio, um gradiente de densidade de vórtices corresponde a um gradiente de campo, que através da lei de Ampere, $\nabla \times \vec{H} = (4\pi/c) \vec{J}$, deve corresponder a uma corrente volumétrica. Assim o aprisionamento não uniforme das linhas de fluxo dentro

de um supercondutor na fase mista é a base para a circulação de correntes supercondutoras. A corrente ao redor dos vórtices distribuídos não uniformemente através do material cria um momento de dipolo magnético que pode ser medido. Este momento pode ser diamagnético (negativo) ou paramagnético (positivo), dependendo da história magnética da amostra, como veremos a seguir.

Para quantificar o comportamento de supercondutores, uma relação deve ser estabelecida entre a magnetização irreversível M_{irr} e a densidade de supercorrente J . Isto é feito através do modelo de estado crítico de Bean [19]. Este modelo é baseado em duas hipóteses simples, a primeira de que a densidade de supercorrente J é dada pela densidade de corrente crítica J_c , a segunda de que qualquer mudança na distribuição de fluxo é introduzida pela superfície da amostra, desprezando-se efeitos de desmagnetização referentes a geometria da amostra.

A relação específica entre M_{irr} e J_c depende da geometria da amostra. Aqui descreveremos o caso mais simples, uma placa de espessura L , submetida pelos dois lados a um campo magnético H aplicado paralelo aos planos. Começaremos de $H = 0$ e procederemos considerando o “loop” de histerese completo, positivo e negativo, e voltando a zero. Será ignorado a magnetização reversível e consideraremos J_c independente de B . O “loop” de histerese resultante está ilustrado na figura 1.7, junto com os perfis de fluxo através da espessura da placa para vários pontos do “loop”.

Inicialmente o fluxo penetra pelas superfícies, com um gradiente $(4\pi/c)\vec{J}$ dado pela equação de Ampere. As fronteiras de fluxo, esboçadas para o ponto 1 da figura 1.7, penetram uma distância $cH/4\pi J_c$ dentro da placa. A magnetização, dada por $4\pi M = B - H$ é agora

$$4\pi M = (cH^2/4\pi J_c L) - H. \quad (1.36)$$

Quando as fronteiras de fluxo atingem o centro, em $H = 2\pi J_c L/c$, a magnetização atinge seu máximo valor diamagnético,

$$M = -J_c L/4c. \quad (1.37)$$

Este é o famoso resultado do modelo de Bean do estado crítico, mostrando que a magnetização aumenta linearmente com a dimensão L da amostra. Resultados similares às equações (1.36) e (1.37) para magnetização podem ser derivados para diferentes pontos ao redor do “loop” de histerese. Uma previsão notável é que a magnetização muda de sinal na parte em que se decresce o campo e se torna paramagnético (positivo). Assim, comportamento dia-

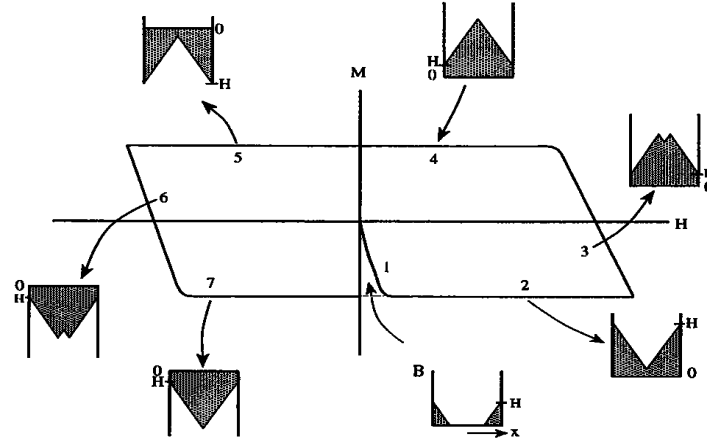


Figura 1.7: Ilustração do “loop” de histerese para uma placa de espessura L , submetida pelos lados a um campo magnético H paralelo ao seu plano, com os perfis de fluxo através da espessura mostrado para vários pontos do “loop”. As áreas sombreadas representam regiões de penetração do fluxo. Da referência [20].

magnético (exclusão de fluxo) e paramagnético (concentração de fluxo) é possível no estado de não equilíbrio.

Quando o campo é reduzido para zero depois de um aumento inicial para um valor positivo, o fluxo é preso no interior da amostra, resultando no que é chamado de magnetização remanente.

Os centros de aprisionamento também influenciam a magnetização de equilíbrio como mostrado experimentalmente por van der Beek et al. [21] e Puzniak et al. [22] e teoricamente por Bulaevskii et al. [23].

A densidade de energia livre F no regime de magnetização reversível usando a aproximação de London é dada por [24]:

$$8\pi F = B^2 + \frac{B\Phi_0}{4\pi\lambda_{ab}^2} \ln \frac{\eta H_{c2}}{B}. \quad (1.38)$$

onde η é um fator da ordem da unidade, que depende do arranjo da rede de vórtices. A configuração dos vórtices pode ser afetada pela presença de centros de aprisionamento no material, e diferentes configurações dos vórtices resultam em diferentes valores de η . Usando a relação $-4\pi M = H - B$ e sabendo que $H = 4\pi \partial F / \partial B$, e supondo que a influência dos centros de aprisionamento sobre η depende do campo magnético B e da linha de irreversibilidade

B_{irr} (B_{irr} é o campo que separa a região reversível da região irreversível da magnetização), temos que a dependência da magnetização com o campo é dada por [22]:

$$M(H) = -\frac{\Phi_0}{32\pi^2\lambda_{ab}^2(T)} \left(\ln \frac{\eta(B - B_{irr})H_{c2}}{H} + B \frac{\partial\eta(B - B_{irr})/\partial B}{\eta(B - B_{irr})} \right). \quad (1.39)$$

O segundo termo no lado direito de (1.39) difere de zero na região reversível próxima a linha de irreversibilidade e é devido a influência dos centros de aprisionamento na configuração dos vórtices. Porém, bem acima da linha de irreversibilidade, o efeito dos centros de aprisionamento sobre a distribuição dos vórtices é desprezível e a derivada $\partial\eta(B - B_{irr})/\partial B$ vai a zero.

Agora que sabemos como se comporta a rede de vórtices e a influência que os centros de aprisionamento tem sobre as propriedades de transporte e magnética dos supercondutores, veremos como está sendo identificada a transição de fusão em HTS.

1.5 Evidências da fusão da rede de vórtices

Vários trabalhos tentaram encontrar esta transição de fusão prevista. Um dos primeiros experimentos interpretados como dando evidências diretas de uma transição de fusão da rede de vórtices foram os experimentos de “vibrating reed” de Gammel et al. [25] com amostras de Y123 e Bi2212 em campo magnético. Eles encontraram um pico estreito no amortecimento do movimento oscilatório numa temperatura dependente do campo $T_m(H)$ para campos entre 2T e 5T e interpretaram como uma transição de fusão.

Mais recentemente, medidas de magnetização mostraram saltos na magnetização de equilíbrio na região reversível em cristais de Bi2212 para campos $H \sim 500$ Oe medidos tanto por micro-sensores Hall [26] (como exemplo veja a figura 1.15(a) e (b)) como por magnetômetros “SQUID” (“Superconducting Quantum Interferometer Device”) [27]. Este salto foi interpretado como indicação de uma transição de fase de primeira ordem (“First Order Transition”, FOT) entre um estado sólido e um estado líquido de vórtices. Medidas calorimétricas [28] e magnéticas [29] também mostraram a existência de uma possível transição de primeira ordem no sistema de vórtices em Y123, porém para Bi2212 medidas calorimétricas não mostraram nenhuma indicação desta transição [30]. Atualmente acredita-se que esta transição de fase de primeira ordem está relacionada à transição de fase de fusão da rede de vórtices.

Na figura 1.8 mostramos os pontos experimentais dos trabalhos de Gammel et al. [25] e

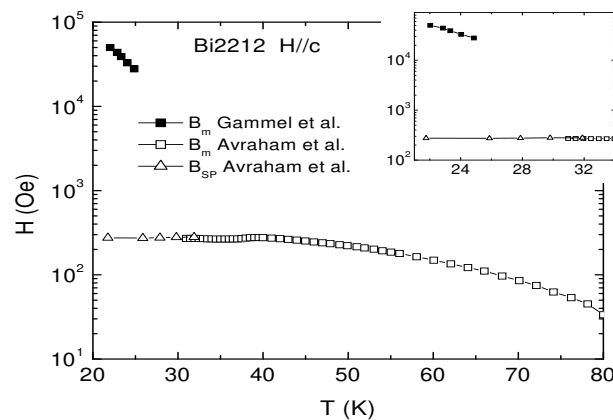


Figura 1.8: Diagrama H-T com os dados experimentais para a linha de fusão da rede de vórtices para Bi2212. Os pontos de Gammel et al. [25] foram obtidos através da técnica de “vibrating reed” enquanto os pontos de Avraham et al. [31] foram obtidos por magnetização local. O “inset” mostra uma ampliação para a região de baixa temperatura.

Avraham et al. [31] em um mesmo gráfico. Estes resultados são de cristais de Bi2212 com características semelhantes. Como se pode observar há uma grande diferença com relação ao campo magnético em que se define a ocorrência da transição de fusão da rede de vórtices.

Vamos relembrar o que é uma transição de fase de primeira ordem. Suponha que tenhamos algum tipo de líquido em um cilindro, tal que podemos comprimí-lo pressionando um pistão e queremos determinar como a pressão varia com o volume mantida a temperatura constante, ou seja, determinaremos a linha isotérmica no diagrama P-V. O líquido no cilindro está em equilíbrio com seu gás. Se aplicarmos pressão suficiente, a substância condensará em líquido. Agora se pressionarmos ainda mais, o volume mudará muito pouco e a linha isotérmica aumentará rapidamente com a diminuição do volume, como mostrado na figura 1.9.

Se aumentarmos o volume puxando o pistão, a pressão diminui até que se atinja o ponto em que o líquido começa a ferver, e então vapor começa a se formar. Se puxarmos o pistão ainda mais, mais líquido será vaporizado para manter a pressão constante. Na parte plana da curva na figura 1.9 a pressão não muda e seu valor é chamado pressão de vapor a temperatura T. Continuando a puxar o pistão, chegaremos num ponto em que não haverá mais líquido para evaporar. Neste ponto, expandindo mais o volume, a pressão diminuirá, como mostrado

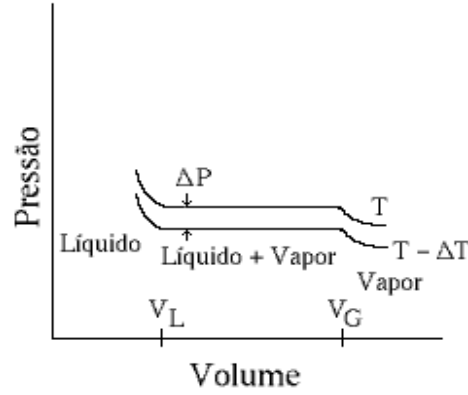


Figura 1.9: Linhas isotérmicas para um vapor comprimido em um cilindro. Na esquerda ($V < V_L$), a substância está na fase líquida. Na direita ($V > V_G$), ela está na fase de vapor. No meio, líquido e vapor estão presentes no cilindro.

no diagrama P-V. A curva de baixo na figura 1.9 é uma linha isotérmica numa temperatura um pouco menor $T - \Delta T$. A pressão na fase líquida é um pouco reduzida pois o líquido se expande com o aumento da temperatura (para a maioria das substâncias) e, portanto, a pressão de vapor é menor para temperaturas menores.

Faremos agora um ciclo das duas linhas isotérmicas conectando-as por processos adiabáticos nos finais da seção plana usando o argumento de Carnot que nos diz que o calor adicionado na mudança de líquido para vapor está relacionado com o trabalho feito pela substância durante o ciclo. Vamos chamar de ΔQ o calor necessário para vaporizar a substância no cilindro. O trabalho $\Delta Q(\Delta T/T)$ é igual a área do ciclo, que podemos aproximar por $\Delta P(V_G - V_L)$, onde ΔP é a diferença na pressão de vapor entre as duas temperaturas, T e $T - \Delta T$, V_G é o volume do gás e V_L é o volume do líquido, ambos medidos na pressão de vapor. Igualando estas duas quantidades temos $\Delta Q \Delta T/T = \Delta P(V_G - V_L)$, ou

$$\frac{\Delta Q}{T(V_G - V_L)} = (\partial P_{vap}/\partial T). \quad (1.40)$$

Esta equação relaciona a taxa de mudança da pressão de vapor com a temperatura com a quantidade de calor requerida para evaporar o líquido. Esta relação foi deduzida por Carnot, mas é mais conhecida como equação de Clausius-Clapeyron. Apesar de ter sido deduzida

para um gás condensando em líquido, esta equação se aplica para qualquer mudança de estado. Lembrando que a entropia $\Delta S = \Delta Q/T$, podemos reescrever 1.40 como:

$$\Delta S = \frac{\partial P}{\partial T}(V_G - V_L). \quad (1.41)$$

Voltando ao nosso sistema de vórtices, o salto na magnetização ou na indução magnética pode ser relacionado diretamente ao salto na entropia da transição de fase através da equação de Clausius-Clapeyron:

$$\Delta S = -\frac{1}{4\pi} \frac{dH_m}{dT} \Delta B, \quad (1.42)$$

onde H_m é o campo em que ocorre o salto na magnetização e ΔB é o respectivo salto na indução magnética.

Hetzel et al. [32] usando simulações por Monte Carlo mostraram que na fusão da rede de vórtices, a entropia apresenta um salto de $0,3k_B$ por vórtice por plano supercondutor. O primeiro trabalho experimental a observar o salto na magnetização foi feito por Pastoriza et al. [27] em cristais de Bi2212. Eles calcularam o salto na entropia de $0,06k_B$ por vórtice por plano supercondutor. Dodgson et al. [33] desenvolveram um modelo para tentar explicar o salto da magnetização baseado na teoria da fusão da rede de vórtices na ausência de centros de aprisionamento e usando a equação de Clausius-Clapeyron. Partindo do funcional da energia livre efetiva na aproximação de London, eles calcularam a função de partição do sistema, cuja derivada com relação a temperatura é a entropia e encontraram a relação

$$S = S_0 \left(1 - \frac{T}{\epsilon_0} \frac{d\epsilon_0}{dT} \right) + \frac{T}{\epsilon_0} \frac{d\epsilon_0}{dT} \frac{F}{T}, \quad (1.43)$$

onde F é a energia livre que se mantém contínua na transição de fase enquanto que a entropia exibe um pulo, $\epsilon_0 = (\Phi_0/4\pi\lambda)^2$, com a dependência da temperatura dada por $\lambda^2(T) = \lambda_0^2/[1 - (T/T_c)^2]$. De 1.43, eles inferiram a relação entre o salto na entropia e sua parte configuracional ΔS_0 :

$$\frac{\Delta S}{\Delta S_0} = \left(1 - \frac{T}{\epsilon_0} \frac{d\epsilon_0}{dT} \right) = \frac{1 + (T_m/T_c)^2}{1 - (T_m/T_c)^2}. \quad (1.44)$$

A parte configuracional do salto da entropia é escrita como:

$$\Delta S_0 = \eta k_B \frac{V}{V_{edf}}, \quad (1.45)$$

com $V_{edf} = \epsilon a_0^3$, $\epsilon^2 = m/M < 1$ é o parâmetro de anisotropia, V é o volume do sistema e $\eta \approx 0,16$. Combinando estas duas equações eles chegaram ao salto na entropia por vórtice por plano supercondutor:

$$\Delta S_d \approx 2\eta \frac{d}{\epsilon a_0} \frac{k_B}{1 - (T_m/T_c)^2}, \quad (1.46)$$

com d o espaçamento entre planos de CuO . Para determinar o salto na indução ΔB , temos que encontrar a inclinação $\partial B_m / \partial T$ da linha de fusão. Usando $B_m(T) \approx \frac{\Phi_0}{\lambda^2} 4\pi c_L^4 \frac{\epsilon^2 \epsilon_0^2 \lambda^2}{(k_B T)^2} \propto (1 - T^2/T_c^2)^2$ [33], temos

$$\frac{dB_m}{dT} = -\frac{2B_m}{T_m} \left(1 - \frac{T}{\epsilon_0} \frac{d\epsilon_0}{dT} \right).$$

Assim a expressão final para o salto na indução ΔB usando a equação de Clausius-Clapeyron e o salto na entropia calculado acima fica:

$$\Delta B \approx \mu \frac{k_B T_m}{\Phi_0 \epsilon a_0} \approx 6 \times 10^{-4} \frac{\Phi_0}{\lambda^2 (T_m)}, \quad (1.47)$$

com $\mu = 2\pi\eta \approx 1$.

Este resultado, apesar de não incluir o efeito dos centros de aprisionamento, apresenta uma boa concordância com os resultados experimentais de Schilling et al. [28] como mostrado na figura 1.10 para um cristal de Y123. Enquanto esta aproximação obtém êxito quando aplicada a um supercondutor anisotrópico contínuo como o Y123, há a necessidade de se reconsiderar a situação para materiais lamelares como o Bi2212. Nestes materiais, a linha de fusão é puxada para campos baixos $B_m(T) < B_\lambda(T) = \Phi_0/\lambda^2$. A interação dominante no sistema de vórtices é a eletromagnética, neste caso a linha de fusão tem o seguinte comportamento:

$$B_m^{em}(T) \approx \frac{\Phi_0}{\lambda^2} \frac{c_L^2}{2} \frac{\epsilon_0 d}{k_B T} \propto \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2} \right)^2. \quad (1.48)$$

Próximo a T_c as interações Josephson se tornam relevantes e a linha de fusão apresenta o seguinte comportamento [34]:

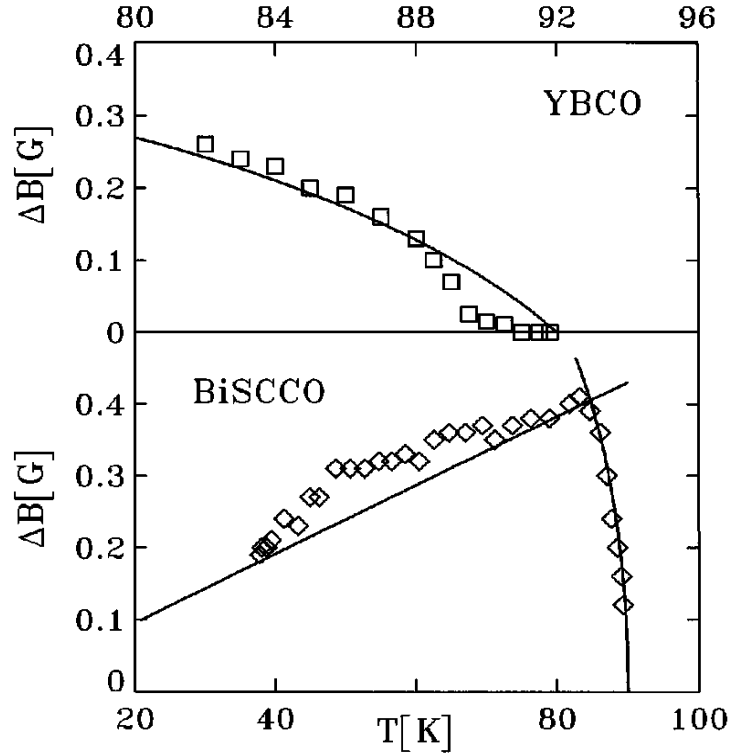


Figura 1.10: (acima) Salto na indução ΔB em função da temperatura T medido em um cristal de Y123 [28] e calculado da expressão (1.47) (linha contínua). (abaixo) Mesmo salto para um cristal de Bi2212 [26], cuja linha é calculada da expressão (1.50). Da referência [33].

$$B_m^{em,J}(T) \approx \frac{\Phi_0}{\lambda^2} \frac{\pi c_L^2}{4} \frac{\epsilon \epsilon_0 \lambda}{k_B T} \propto \left(1 - \frac{T^2}{T_c^2}\right)^{3/2}. \quad (1.49)$$

Eles chegaram então no comportamento do salto da indução magnética ΔB para materiais lamelares:

$$\Delta B \approx \begin{cases} \mu' \frac{k_B T_m}{\Phi_0 d}, & T_m < T^{em}, \\ \mu' \frac{k_B T_m}{\Phi_0 \epsilon \lambda_0} \sqrt{1 - (T_m/T_c)^2}, & T^{em} < T_m. \end{cases} \quad (1.50)$$

com $\mu' \approx \mu$.

Este resultado descreve as observações experimentais do salto da indução magnética em cristais de Bi2212 razoavelmente bem, apesar de não considerar os centros de aprisionamento, como, por exemplo, os medidos por Zeldov et al. [26] e mostrado da figura 1.10. Para

baixas temperaturas, $T_m < T_c - 7\text{ K}$, o salto ΔB aumenta linearmente com a temperatura. Ao redor de 7 K antes da transição, ΔB decresce rapidamente e desaparece em T_c . Este comportamento pode ser explicado em termos de um crossover em T^{em} , onde o acoplamento Josephson entre planos se torna relevante e interrompe o aumento das flutuações.

1.6 Explicação alternativa para o salto da magnetização

Uma explicação alternativa para o salto da magnetização é possível. Já foi mostrado tanto experimentalmente [21] quanto teoricamente [23] que a interação dos vórtices com os centros de aprisionamento aumenta o valor absoluto da magnetização de equilíbrio $|M_{eq}(T, H)|$, indicando claramente a influência dos centros de aprisionamento nas propriedades de equilíbrio e termodinâmicas dos supercondutores. Se o desancoramento da rede de vórtices é abrupto, então pode-se esperar uma mudança abrupta na magnetização de equilíbrio $|\Delta M_{eq}(T, H)| = |M_{eq}^{dis}(T, H) - M_{eq}(T, H)|$ ao longo da fronteira $H_j(T)$. Aqui $|M_{eq}^{dis}(T, H)| > |M_{eq}(T, H)|$ é a magnetização de equilíbrio absoluta na presença de desordem que é medida logo abaixo de $H_j(T)$. A magnetização de equilíbrio de uma rede de vórtices ordenada e desancorada no regime de London ($H \ll H_{c2}$) e desconsiderando flutuações é dado por [35]:

$$M_{eq} = -\frac{\phi_0}{2(4\pi\lambda)^2} \ln(\eta H_{c2}/H), \quad (1.51)$$

onde $\lambda(T) \equiv \lambda_{ab}(T)$ é o comprimento de penetração de London no plano e η é um parâmetro análogo a razão $\beta_A = \langle |\Psi|^4 \rangle / \langle |\Psi|^2 \rangle^2$ (Ψ é o parâmetro de ordem supercondutor) que depende da estrutura da rede de vórtices e que dá uma estimativa da desordem do material. Kopelevich e Esquinazi [36] sugeriram que ΔM_{eq} resultaria de uma variação no parâmetro η devido a mudanças na rede de vórtices causadas pela interação da rede com os centros de aprisionamento. O salto na magnetização pode ser então escrito como [36]:

$$\Delta M_{eq} = \frac{\phi_0}{2(4\pi\lambda)^2} \ln(\eta^{dis}/\eta_0), \quad (1.52)$$

onde o parâmetro $\eta^{dis} \geq \eta_0$ está relacionado com a intensidade de desordem e η_0 se aplica para a rede acima de $H_j(T)$. Eles sugeriram que η^{dis} é proporcional a densidade de corrente crítica $j_c(T, H)$ que é uma medida da força de aprisionamento dos vórtices. Eles sugeriram também

uma relação empírica para η^{dis} : $\eta^{dis} = \eta_0[1 + aj_c(T, H)] = \eta_0[1 + aj_{c0}(1 - T/T_0)^n/(H^\alpha + H_0)]$, onde T_0 corresponde a temperatura em que $j_c = 0$ e a , j_{c0} , H_0 são constantes e n e α são expoentes relacionados aos centros de aprisionamento. Esta expressão é geral e reflete o fato experimental de que a densidade de corrente crítica diminui com a temperatura e com o aumento do campo. Eles usaram este modelo para descrever o salto na magnetização medido em cristais de Bi2212 e Y123. A figura 1.11 mostra salto na indução ΔB e na magnetização de equilíbrio $4\pi\Delta M$ em função da temperatura para estes materiais medidos ao longo da fronteira $H_j(T)$.

A diferença no comportamento de $\Delta M_{eq}(T, H)$ para Bi2212 e Y123 pode ser entendido se notarmos que $H_j(T) < H^* = \phi_0/\lambda^2$ para Bi2212 enquanto que $H_j(T) \gg H^*$ para Y123. Para campos $H < H^*$ o módulo de cisalhamento da rede de vórtices diminui exponencialmente com o campo, $c_{66} \simeq (\epsilon_0/\lambda^2)(H\lambda^2/\phi_0)^{1/4} \exp[-(\phi_0/H\lambda^2)^{1/2}]$, enquanto que para $H > H^*$ o módulo é proporcional ao campo, $c_{66} \simeq (\epsilon_0/4\phi_0)H$, onde $\epsilon_0 = (\phi_0/4\pi\lambda)^2$ [37].

A diminuição exponencial de c_{66} com a diminuição de H_j e o aumento de T_j no caso do Bi2212 implica num aumento da interação entre os vórtices e os centros de aprisionamento, o que leva a um aumento de ΔM_{eq} . Com a temperatura se aproximando de T_c , o aprisionamento dos vórtices diminui. Assim, acima de uma certa temperatura, $\Delta M_{eq}(T, H)$ diminui com a temperatura e tende a zero.

No caso do Y123, contudo, devido a sua fraca dependência de c_{66} com o campo ao longo de $H_j(T)$, a redução da eficiência dos centros de aprisionamento com a temperatura é o efeito dominante que explica o decréscimo monotônico de $\Delta M_{eq}(T, H)$ com a temperatura. A tendência do desaparecimento do salto na magnetização para $T_0 \simeq 90 K$, aproximadamente 3K abaixo de $T_c = 92,9 K$ [29], pode ser explicada pelo efeito das flutuações térmicas que diminuem a força de aprisionamento. Por outro lado, a teoria da fusão da rede de vórtices [33] prediz $\Delta M_{eq} \sim \phi_0/\lambda^2(T)$ que implica que ΔM_{eq} vai a zero em T_c . A linha pontilhada na figura 1.11(b) mostra este comportamento.

Podemos pensar então que o salto na magnetização esteja conectado com uma transição de desancoramento da rede de vórtices da matriz cristalina do material [36]. Além disso, foi proposto a mais de vinte anos atrás por Nelson e Halperin [38] a ocorrência de uma fase sólida flutuante da rede de vórtices situada entre um sólido de vórtices aprisionados e um estado líquido dos vórtices.

Gotcheva e Teitel [39] detectaram, através de simulações por Monte Carlo, uma transição de primeira ordem de desancoramento entre um estado ancorado e um estado desancorado

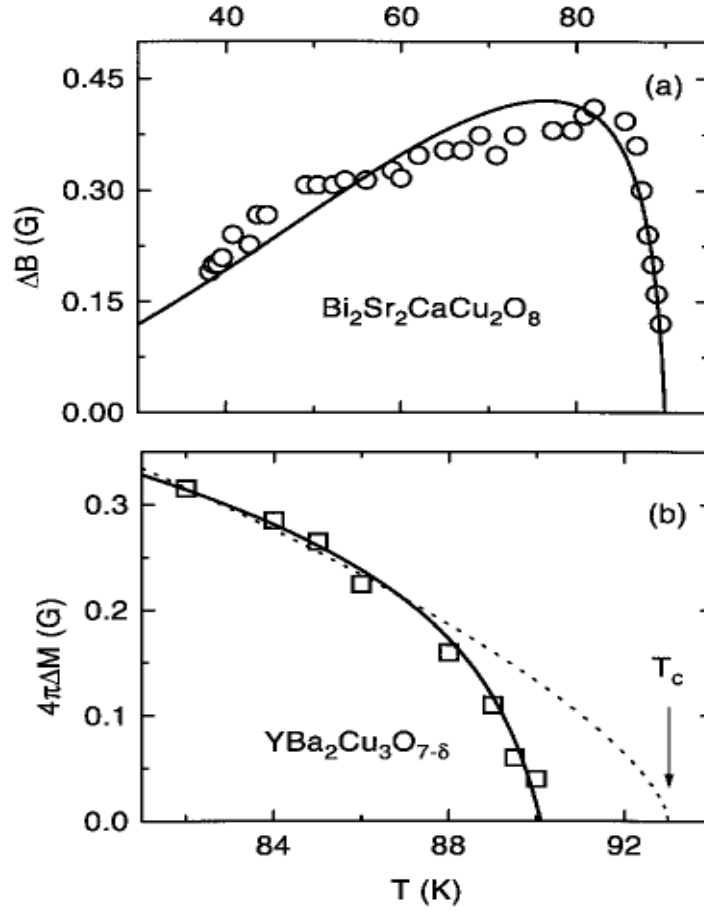


Figura 1.11: Salto na indução magnética ΔB (a) e na magnetização de equilíbrio $4\pi\Delta M$ (b) em função da temperatura para cristais de Bi2212 e Y123. Os pontos experimentais são das referências [26] (Bi2212) e [29] (Y123). As linhas sólidas foram obtidas da eq. 1.52 com os parâmetros de ajuste: $n = 1$, $\alpha = 1,8$, $H_0 = 200 \text{ Oe}^{1,8}$, $T_0 = 90 \text{ K}$, $aj_{c0} = 9,3 \times 10^4 \text{ Oe}^{1,8}$ e $\lambda(T) = 250(1 - T/T_c)^{-1/3} \text{ nm}$, $T_c = 90 \text{ K}$ para Bi2212 e $n = 1$, $\alpha = 1$, $H_0 = 3,5 \times 10^3 \text{ Oe}$, $T_0 = 90,1 \text{ K}$, $aj_{c0} = 2,6 \times 10^5 \text{ Oe}$ e $\lambda(T) = 140(1 - T/T_c)^{-1/3} \text{ nm}$, $T_c = 92,9 \text{ K}$ para Y123. A linha pontilhada em (b) corresponde a equação $4\pi\Delta M = 1,32(1 - T/T_c)^{2/3}$ da teoria de fusão da rede [33]. Da referência [36].

mais ordenado da rede de vórtices. As simulações indicaram um salto na entropia do sistema de $\Delta S \simeq 0,60$ por vórtice por plano supercondutor, valor similar ao encontrado por outros trabalhos que interpretam esta transição como uma fusão da rede de vórtices [27, 32].

1.7 Segundo pico na magnetização

Até agora descrevemos os efeitos observados sobre a rede de vórtices para temperaturas relativamente altas onde a força dos centros de aprisionamento é relativamente fraca. Por outro lado, para temperaturas mais baixas, onde a força de aprisionamento dos vórtices é importante, observa-se uma anomalia nas curvas de magnetização em função do campo magnético aplicado, $M(H)$, em vários supercondutores, incluindo os de alta temperatura crítica como monocristais tanto de Y123 como de Bi2212. A figura 1.12(b) mostra esta anomalia para um cristal de Bi2212. Observa-se uma modificação no “loop” de histerese magnética quando comparada com um “loop” comum (figura 1.12(a)).

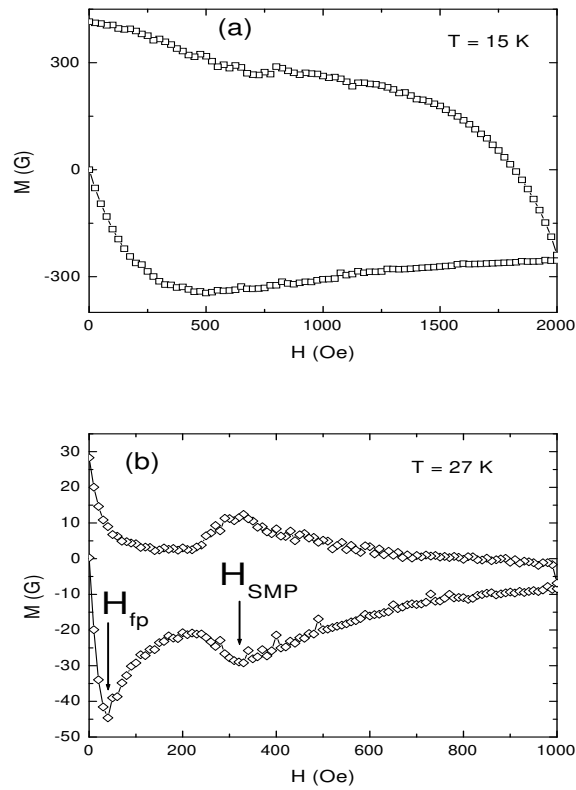


Figura 1.12: (a) “Loop” de histerese de magnetização “normal” para um cristal de Bi2212 em $T=15\text{K}$. (b) Anomalia no “loop” de histerese de magnetização em função do campo magnético aplicado para um cristal de Bi2212 em $T=27\text{K}$.

Esta modificação se apresenta como um segundo máximo local devido a um aumento na largura do “loop” de histerese. Quando se calcula dessas curvas a densidade de corrente crítica utilizando-se o modelo de Bean [19], obtém-se um pico na curva densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado, porém bem abaixo de H_{c2} . Este efeito relembra o chamado “Peak Effect” [40] que ocorre próximo a $H_{c2}(T)$ em supercondutores convencionais. Nestes materiais um pico na curva de densidade de corrente crítica $j_c(H, T)$ em função do campo magnético aplicado e da temperatura é observado próximo a $H_{c2}(T)$ e foi explicado [40] como sendo devido a um aumento da eficiência dos centros de aprisionamento devido a diminuição da rigidez da rede de vórtices que ocorre próximo a H_{c2} . Isto permite que a rede se ajuste mais facilmente a configuração dos centros de aprisionamento de modo que a densidade de corrente crítica aumenta. Um exemplo de “Peak Effect” em supercondutores convencionais está mostrado na figura 1.13, onde apresentamos uma curva de magnetização em função do campo magnético aplicado em que ocorre um aumento da magnetização próximo a H_{c2} .

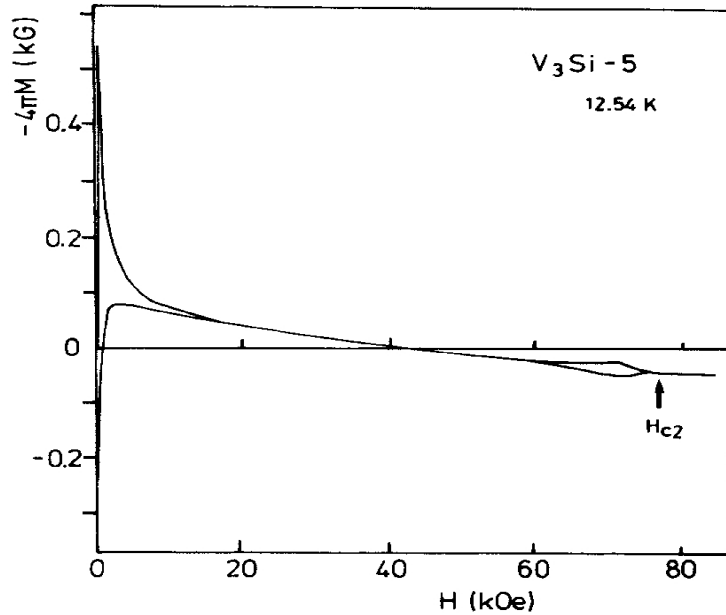


Figura 1.13: Curva de magnetização em uma amostra cristalina de V_3Si medida em $T = 12,54 K$ onde se observa o efeito de “Peak Effect” logo abaixo de H_{c2} , que está indicado pela seta. Da referência [41].

Nos supercondutores de alta temperatura crítica, porém, esta anomalia é conhecida como segundo pico na magnetização (“Second Magnetization Peak”, SMP). Este aumento na

largura do “loop” de magnetização com o aumento do campo magnético tem sido atribuído a inúmeros efeitos, tais como: barreira de superfície [42], mudança de ancoragem de superficial para volumétrica [43], inomogeneidades da amostra [44], efeitos dinâmicos [45, 46], transições 3D para 2D [47, 48] (ver fig. 1.4) especificamente para Bi2212 e aumento da desordem da rede de vórtices induzida pelo campo magnético [49–51]. Uma observação interessante é que em todos os trabalhos publicados foram usados sempre monocristais com tamanho típico da ordem $\sim 1\text{ mm} \times 1\text{ mm}$.

Recentemente Sarkar et al. [52] observaram a ocorrência simultânea destes dois efeitos (segundo pico na magnetização e “Peak Effect”) em monocristais de Y123 e $\text{Ca}_3\text{Rh}_4\text{Sn}_{13}$ (CaRhSn), um supercondutor isotrópico de baixa temperatura crítica. A figura 1.14 mostra os “loops” de magnetização em função do campo magnético aplicado para cristais de Y123 e CaRhSn.

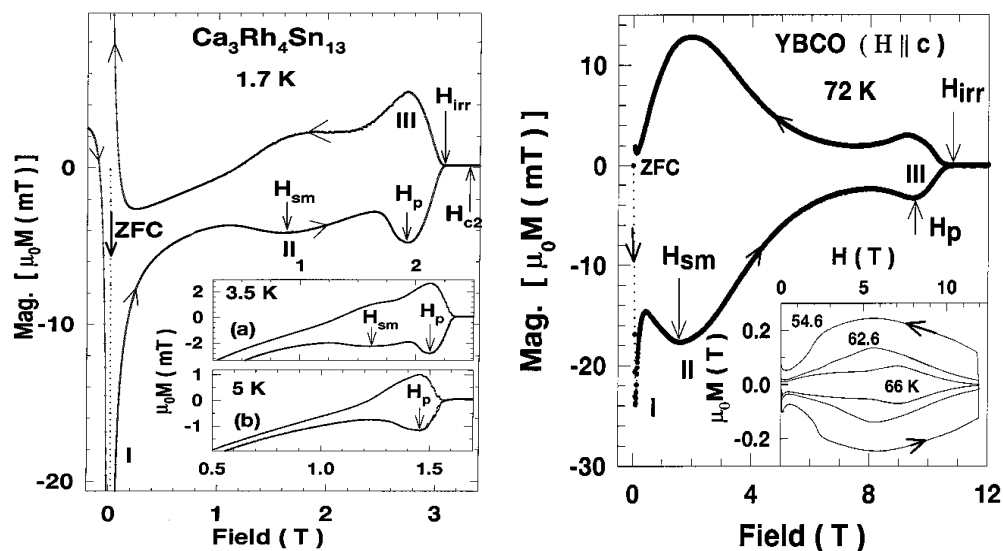


Figura 1.14: Esquerda: “Loop” M-H para um monocristal de CaRhSn onde se observa o segundo pico na magnetização e o “Peak Effect” indicados por H_{SM} e H_p , respectivamente. Direita: Mesma medida para um cristal de Y123. Da referência [52].

Por outro lado, trabalhos experimentais mostraram que a linha $H_j(T)$ onde ocorre o salto na magnetização e a linha $H_{SMP}(T)$ onde ocorre o segundo máximo na largura dos “loops” de magnetização formam uma fronteira comum no diagrama de fases H-T tanto para Bi2212 [53] como para Y123 [54]. Também é importante ressaltar aqui que a linha $H_{SMP}(T)$ termina

em aproximadamente $T = 20\text{ K}$ para Bi2212 e em $T \approx 45 - 50\text{ K}$ para Y123. A figura 1.15 mostra como esta fronteira aparece em monocristais de Bi2212 [53]. Na figuras 1.15(a) e (b) observamos um salto na magnetização reversível em função da indução magnética para cristais de Bi2212. A figura 1.15(c) mostra um “loop” de histerese da magnetização em função da indução magnética onde se observa a ocorrência do segundo pico na magnetização. Na figura 1.15(d) observa-se que as linhas $H_j(T)$ e $H_{SMP}(T)$ formam uma fronteira comum para um mesmo cristal.

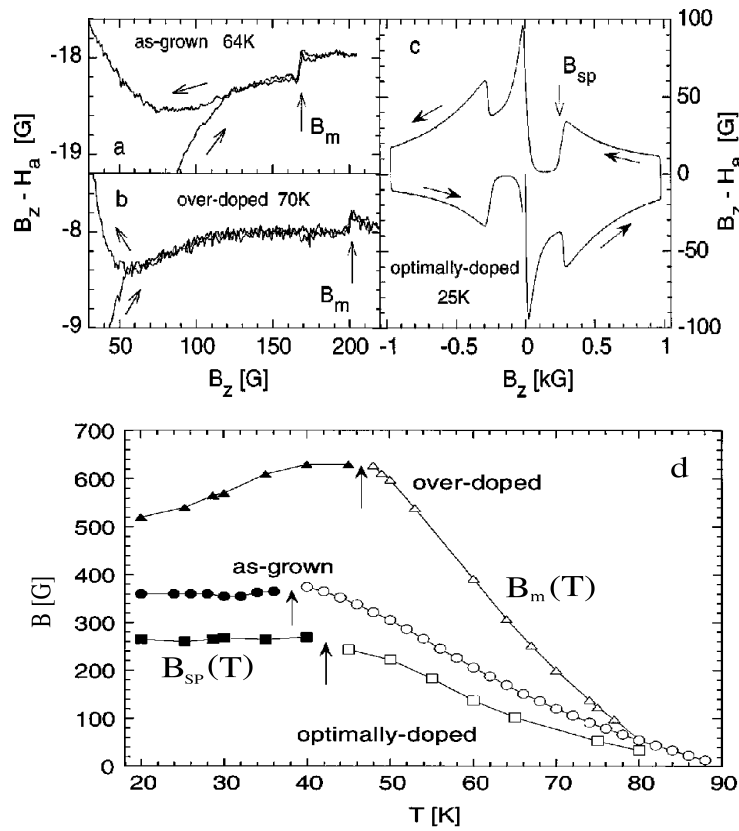


Figura 1.15: “Loops” de magnetização local em cristais de Bi2212 onde se observa a ocorrência de (a,b)salto na magnetização $B_m(T)$ (descrito como $H_j(T)$ no texto) e (c) segundo pico da magnetização $B_{SP}(T)$ (descrito como $H_{SMP}(T)$ no texto). (d) mostra a linha $B_m(T)$ (símbolos vazios) junto $B_{SMP}(T)$ (símbolos cheios) para vários cristais de Bi2212 [53].

Portanto, atualmente, o salto na magnetização está sendo interpretado como assinatura

da transição de fusão e o segundo pico na magnetização está sendo visto como resultado do aumento da densidade de corrente crítica devido à transição das linhas de fluxo de um estado relativamente ordenado para um estado de vórtices desordenado.

Todavia, experimentos de difração de nêutrons a baixos ângulos (“Small Angle Neutron Scattering”, SANS) mostraram [55] a formação de uma rede de vórtices bem ordenada acima de $H_{SMP}(T)$ e em temperaturas intermediárias para cristais de Bi2212. Medidas de difração SANS de alta resolução [56] também mostraram para Y123 uma rede de vórtices bem definida para campos de até 4T e baixas temperaturas, ou seja, bem acima de $H_{SMP}(T)$.

1.8 Explicação alternativa para o SMP: instabilidade termomagnética

Uma explicação alternativa é possível para o segundo pico na magnetização (SMP). Recentemente [57] foi encontrado em filmes finos de Nb a ocorrência do SMP em um campo dependente da temperatura $H_{SMP}(T) \ll H_{c2}(T)$. Estudos detalhados mostraram [57–59] que o efeito observado não está associado a um aumento da corrente crítica, mas sim resulta do efeito do salto das linhas de fluxo magnético por instabilidade termo-magnética [60].

A figura 1.16 apresenta medidas dos “loops” de histerese $M(H)$ para várias temperaturas obtidas para um filme fino de Nb com dimensões $0,885 \times 0,87 \times 0,00012 \text{ mm}^3$ e $T_c = 9,2 \text{ K}$ [57]. Para baixas temperaturas (Figs. 1.16(a)-(d)) a ocorrência do SMP é observado. O campo $H_{SMP}(T)$ correspondente ao SMP está indicado por setas. $H_{SMP}(T)$ marca um máximo na largura dos “loops” de histerese e também separa a região de saltos para $H < H_{SMP}(T)$ da região suave para $H > H_{SMP}(T)$. Para temperaturas mais altas, $T > 4,5 \text{ K}$, um salto único foi observado no ramo ascendente do “loop” de histerese (Fig. 1.16(e)) e nenhum salto no ramo descendente. Aumentando mais a temperatura, não se observa saltos na magnetização e nem indicação do SMP (Fig. 1.16(f)).

Os saltos na magnetização, sua evolução com a temperatura e sua dependência com a taxa de variação do campo já foram observados tanto em supercondutores convencionais [61] como de alta temperatura [62, 63] e podem ser entendidos dentro do escopo da teoria da instabilidade termo-magnética [60, 64].

Consideremos, por exemplo, um plano semi-infinito em um campo magnético externo paralelo à superfície. No momento inicial o campo é uniforme e igual a H_0 , logo após

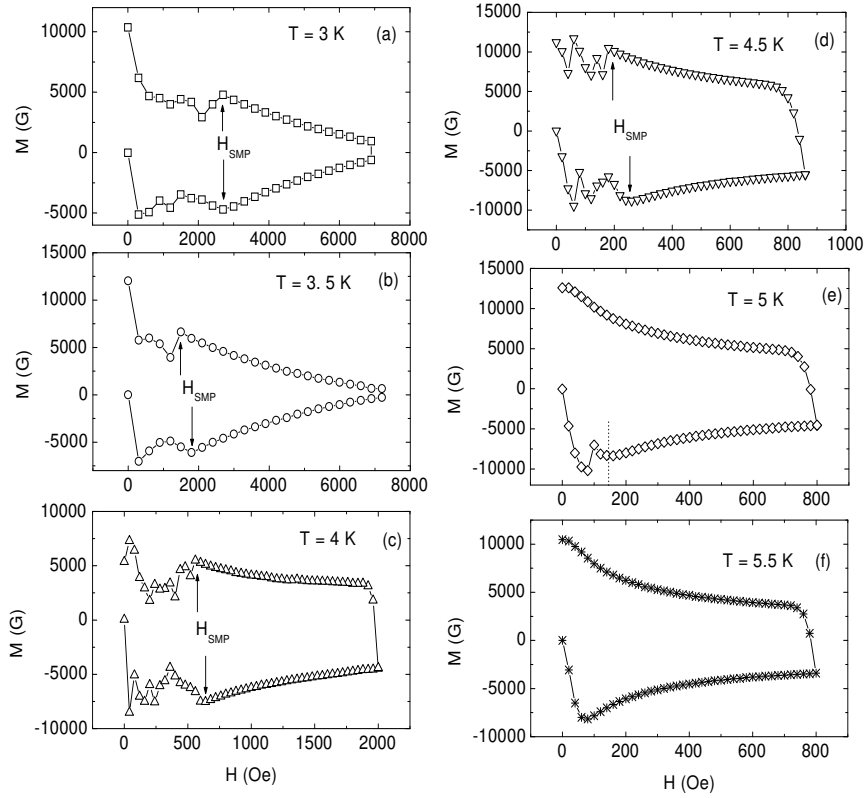


Figura 1.16: "Loops" de histerese de magnetização $M(H)$ com $\theta = 60^\circ$ entre o campo magnético aplicado e a superfície do filme de Nb para várias temperaturas. H_{SMP} marca o segundo pico na magnetização. $T_c = 9,2 K$. Da referência [57].

o campo é aumentado para H_a . Com o aumento do campo, fluxo magnético penetra na amostra. O movimento do fluxo causa um campo elétrico que gera correntes persistentes próximo a superfície do supercondutor, e de acordo com o conceito de estado crítico, tem uma densidade j_c . Como resultado, uma diferença de campo magnético $\Delta H = H_a - H_0$ existe numa região do plano $0 < x < l$, enquanto $\partial H / \partial x \propto j_c$. Agora, se a temperatura aumenta como resultado de alguma perturbação, j_c diminui. Com a diminuição de j_c , o fluxo magnético penetra mais na amostra, mais calor é liberado pelo movimento das linhas de fluxo e assim por diante. Em certas condições, esta perturbação pode aumentar na forma de avalanches e causar uma diminuição da corrente crítica, ou seja, a largura do "loop" de histerese diminui, ou até mesmo o colapso do estado supercondutor pode ocorrer.

Há duas aproximações usadas para descrever a instabilidade termo-magnética, a adiabática e a dinâmica. No limite adiabático o tempo de difusão magnético $\tau_m = \mu_0/\rho$ é muito menor que o tempo de difusão térmico $\tau_T = C/\kappa$, e no limite dinâmico $\tau_T \ll \tau_m$. Aqui ρ é a resistividade no estado normal ou misto, C e κ são o calor específico e a condutividade térmica da amostra, respectivamente. Em outras palavras, no regime adiabático não há tempo para redistribuir e remover o calor gerado na amostra pelo rápido movimento dos vórtices. No regime dinâmico o gradiente de densidade de fluxo permanece inalterado durante o rápido aquecimento. A condição de estabilidade ocorre para uma amostra com dimensão efetiva $s < s_{crit}$, onde s_{crit} pode ser encontrado de uma das equações:

$$(\mu_0/3C) |dj_c/dT| j_c s_{crit}^2 \simeq 1 \quad (\tau_m \ll \tau_T) \quad (1.53)$$

$$(\rho/\kappa) |dj_c/dT| j_c s_{crit}^2 \simeq 1 \quad (\tau_m \gg \tau_T) \quad (1.54)$$

De acordo com a teoria [60, 64] o valor crítico da geometria efetiva da amostra acima do qual a instabilidade termo-magnética causa saltos das linhas de fluxo, no regime adiabático, pode ser escrito como:

$$s_{crit} = \left(-\frac{10^2 \pi C}{16 j_c \partial j_c / \partial T} \right)^{1/2}. \quad (1.55)$$

A geometria efetiva da amostra s_{crit} coincide com o tamanho de metade da espessura da amostra ($d/2$, d é a espessura) quando o campo magnético é aplicado paralelo a sua maior superfície. Por outro lado, quando o campo magnético é aplicado perpendicular à sua maior superfície e para uma amostra fina ($d \ll l, w$ onde l é o comprimento e w é a largura) a geometria efetiva pode ser aproximada por [65, 66]

$$s \sim (wd/2)^{1/2}. \quad (1.56)$$

O valor do campo magnético no qual ocorre o primeiro salto é dado por

$$H_{fj} = \left(-\frac{\pi^3 C j_c}{\partial j_c / \partial T} \right)^{1/2}. \quad (1.57)$$

Em geral, o critério de instabilidade, como por exemplo $s > s_{crit}$, é somente um parâmetro de limite. Além disso, $j_c \propto 1/H$, o que implica em uma dependência de s_{crit} com o campo. Esta dependência é a razão de não se observar saltos para $H > H_{SMP}$ [59], veja figura 1.16.

Veremos nos capítulos a seguir que o segundo pico na magnetização que observamos pode ser bem explicado pela teoria da instabilidade termo-magnética.

Em resumo, mostraremos que o segundo pico nas curvas de magnetização em supercondutores de alta temperatura pode ser explicado através da teoria de instabilidade termo-magnética e também que é possível explicar o salto na magnetização de equilíbrio na região reversível como uma transição que desancora a rede de vórtices dos centros de aprisionamento, fazendo com que se tenha uma rede mais ordenada.

Capítulo 2

Métodos Experimentais e Amostras

No desenvolvimento desta tese utilizou-se vários métodos experimentais e equipamentos. Neste capítulo descreveremos os métodos experimentais, os aparelhos utilizados e suas características. Separaremos os equipamentos em categorias: equipamentos para medidas magnéticas e equipamentos para medidas de transporte e descreveremos os programas desenvolvidos em LabVIEW para o controle dos equipamentos nas medidas de transporte.

2.1 Medidas Magnéticas

Para as medidas magnéticas utilizamos magnetômetros SQUID e convencional por bobinas, equipamentos comerciais fabricados pela Quantum Design. Os magnetômetros SQUID utilizados foram os modelos MPMS5 e MPMS7 (“Magnetic Properties Measurement System”) de 5T e 7T de campo magnético máximo, respectivamente. O magnetômetro convencional é a opção de medidas magnéticas do PPMS (“Physical Properties Measurement System”) da Quantum Design cujo campo magnético máximo é de 9T.

O suporte de amostra para medidas magnéticas consiste de um tubo de plástico onde a amostra é introduzida e fixada por pressão contra as paredes do tubo, veja figura 2.1. Quando a amostra é muito menor que o diâmetro do tubo utilizamos uma base feita de teflon sobre a qual se prende a amostra com graxa de vácuo ou graxa Apiezon sendo então introduzida no tubo. Após as medidas, o sinal da base de teflon e do tubo plástico é subtraído do sinal medido resultando somente o sinal da amostra. Usamos estes equipamentos para as medidas de magnetização dos cristais de Bi2212 e das amostras de grafite.

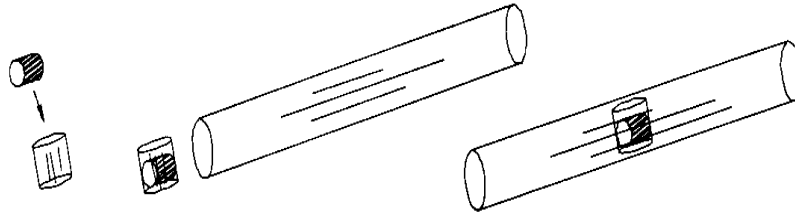


Figura 2.1: Montagem da amostra no tubo de plástico para medidas de magnetização.

O processo de medida consiste em mover a amostra repetidamente no interior das bobinas e ler a voltagem no detector SQUID. Lendo a voltagem para várias posições obtém-se uma varredura. A voltagem pode ser plotada em função da posição da amostra, como mostrada na figura 2.2(a). A forma da curva é função da geometria das bobinas de detecção usadas no sistema MPMS. As bobinas estão enroladas na configuração de segunda derivada, na qual as bobinas superior e inferior estão enroladas no sentido contrário ao das bobinas centrais. Esta configuração rejeita as interferências devido a fontes magnéticas próximas, aumentando a sensibilidade do equipamento.

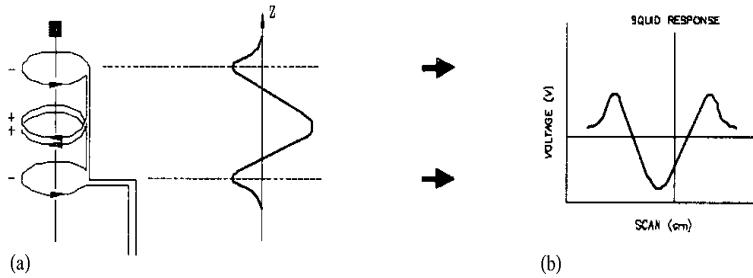


Figura 2.2: Sinal do sensor SQUID em função da posição da amostra.

Antes de iniciarmos as medidas devemos centrar a amostra para que o sinal seja simétrico no comprimento de varredura. A figura 2.2(b) mostra a resposta de uma varredura para uma amostra fora de centro. Isto deve ser corrigido subindo ou descendo a amostra em relação à bobina central. Uma vez com a amostra centrada podemos iniciar as medidas. Este magnetômetro permite medir na faixa de temperatura entre 2K e 350K e com campo magnético até 5T (MPMS5) ou 7T (MPMS7).

O mesmo procedimento de montagem da amostra e de centralização é válido também para o sistema PPMS. Neste sistema a faixa de temperatura possível é entre 2K e 300K com campo magnético até 9T.

2.2 Medidas de Transporte

Para as medidas de transporte utilizamos dois diferentes sistemas: a opção de resistividade AC do PPMS e um criostato comercial de He fabricado por Janis Inc. que utilizamos para medidas de efeito Hall, magnetorresistência e resistência DC.

A opção de medidas de transporte AC do PPMS consiste de um suporte de amostra onde são soldados os fios para os contatos da amostra. Este suporte está mostrado na figura 2.3, a seguir. Ele utiliza a configuração de 4 pontas para a medida de resistividade, o que permite eliminar os efeitos da resistência dos contatos na medida da resistividade da amostra.

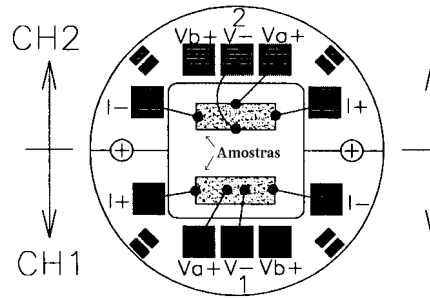


Figura 2.3: Suporte de amostra para medidas de transporte no PPMS. CH1 mostra a configuração para medida de resistividade e CH2 a configuração para medida de efeito Hall.

A superfície do suporte é recoberta de ouro, o que permite um bom contato térmico, sendo a amostra presa através de graxa Apiezon ou verniz GE 701. O sistema tem uma fonte de corrente AC com resolução de $0,02\mu A$ e corrente máxima de 2A com a capacidade de fornecer corrente com frequência entre 1Hz e 1kHz.

O criostato comercial da Janis Research, Inc. usado foi o modelo “Supervaritemp”, mostrado na figura 2.4. O sistema consiste de um “dewar” externo com super-isolamento que é evacuado até a pressão de $10^{-6} Torr$ em cujo interior fica o reservatório de hélio líquido, o magneto supercondutor e o “insert” com o suporte de amostras. A amostra é isolada do reservatório de hélio pelo “insert” que tem paredes duplas e cujo espaço entre as paredes é

evacuado independentemente do “dewar” externo. O magneto supercondutor é constituído por um enrolamento multifilamentar de NbTi e imerso em hélio líquido.

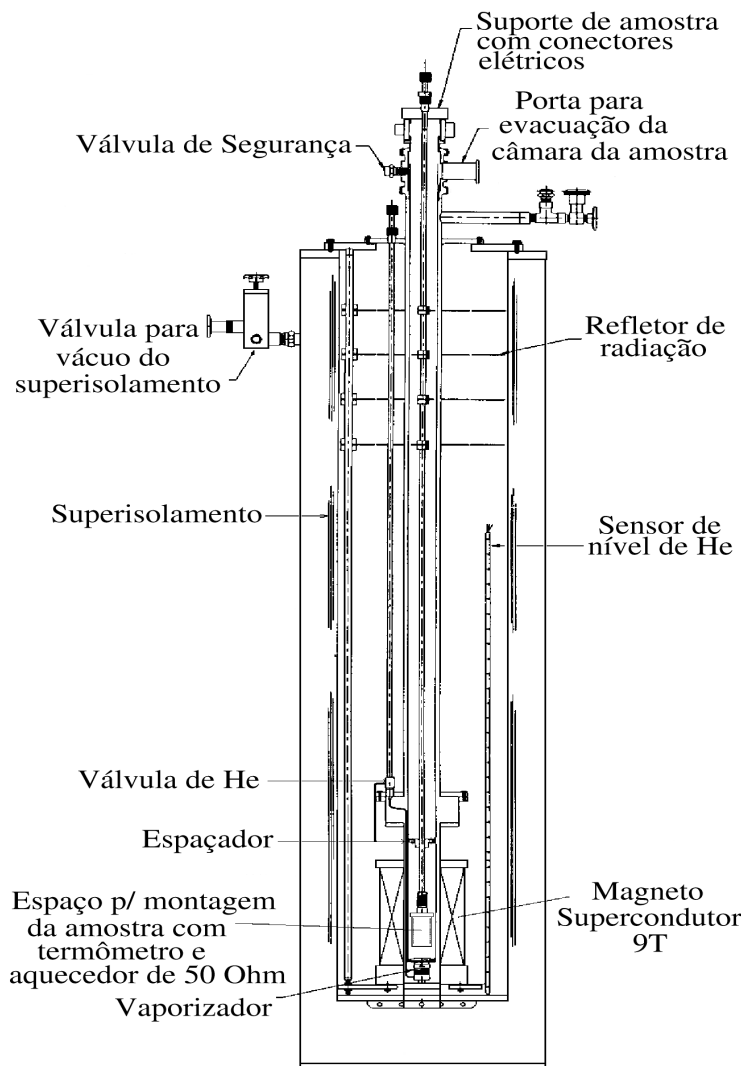


Figura 2.4: Esquema do criostato “Supervaritemp” fabricado por Janis Inc.

A fonte de corrente utilizada para o magneto é o modelo 622 da LakeShore que permite a aplicação de campo magnético entre -9T e 9T. O controle da temperatura na câmara da amostra entre 2K e 300K é feita por um controlador de temperatura Conductus modelo LTC-20 juntamente com a abertura ou fechamento manual da válvula de hélio. Esta válvula permite a entrada de hélio líquido no interior da câmara da amostra. O controlador de

temperatura lê a temperatura de um sensor “cernox” próximo a amostra e controla a corrente aplicada a uma resistência de $50\ \Omega$ no suporte onde a amostra é montada para manter a temperatura estável com uma precisão de 0,020K.

Neste sistema a corrente a ser aplicada na amostra é fornecida por uma fonte de corrente DC Keithley modelo 224 e a voltagem é medida por um multímetro Keithley modelo 2002. Como este sistema permite até 19 contatos de medida, usamos um multiplexador Keithley 7001 para o chaveamento dos contatos. Todos os equipamentos são controlados por computador via placa controladora GPIB com programas desenvolvidos em LabVIEW. Há ainda a possibilidade de expansão futura do sistema para a realização de medidas magnéticas usando sensores Hall. Com este sistema fizemos medidas de resistividade e curvas $I \times V$ em função da temperatura, magnetorresistência e efeito Hall nas amostras de grafite.

2.3 Medidas Não Locais

Podemos monitorar diretamente a rigidez de cisalhamento da rede de vórtices para determinar a ocorrência do seu desacoplamento da rede cristalina e de sua fusão através de medidas de resistividade não-local [67]. O módulo de cisalhamento c_{66} é uma grandeza que nos diz quão forte o cristal de vórtices está coeso. O significado de não-local neste contexto pode ser vista da expressão, geral, que conecta a densidade de corrente local no material, $\vec{J}$, com o campo elétrico local, $\vec{E}$, no regime linear (Ôhmico):

$$J_\mu(\vec{r}) = \int \sigma_{\mu\nu}(\vec{r}, \vec{r}') E_\nu(\vec{r}') d\vec{r}'. \quad (2.1)$$

Quando a condutividade $\sigma_{\mu\nu}(\vec{r}, \vec{r}')$ é diferente de zero para $\vec{r} \neq \vec{r}'$, então é não local.

Todos materiais exibem propriedades de transporte não local em alguma escala de comprimento. Nos metais normais este comprimento é da ordem ou menor que o livre caminho médio eletrônico. Em supercondutores do tipo II no estado misto, as interações entre vórtices em diferentes posições causam o aparecimento da tensão não-local. A figura 2.5 mostra uma geometria de contatos em que se pode implementar as idéias de medidas não-locais. Geometria semelhante foi reportado para medidas não-locais na ausência de campo magnético [68]. Se aplicarmos a corrente entre, por exemplo, os contatos 1 e 4 e medirmos as tensões entre os contatos locais 2 e 3 e entre os contatos não-locais 5 e 6, 6 e 7, etc. podemos correlacionar a tensão local (V_{23}) com as tensões não-locais (V_{56} , V_{67} , ...) e assim determinar a ocorrência

da fusão da rede de vórtices, como mostraremos no capítulo 3.

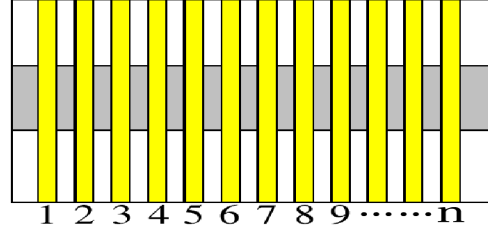


Figura 2.5: Desenho esquemático da configuração dos contatos sobre uma amostra para medidas não locais.

Se o módulo de cisalhamento é finito, as voltagens medidas nas partes local e não-local devem estar correlacionadas. Porém se $c_{66} = 0$ não deve haver correlação entre as voltagens e assim podemos detectar a fusão da rede de vórtices.

2.4 Programas Desenvolvidos

Optou-se por desenvolver os programas em LabVIEW por ser esta uma linguagem simples porém poderosa para o controle de equipamentos com interface IEEE-488. Com uma interface gráfica simples ela permite o desenvolvimento de programas complexos com rapidez e facilidade.

A idéia principal é que o programa de medida leia um arquivo com as informações de cada ponto a ser medido, tais como temperatura, campo magnético, corrente aplicada e número de pares de contato onde a voltagem será medida. Este arquivo de pontos é criado por um programa em LabVIEW cuja interface gráfica é mostrada na figura 2.6.

O programa de medida manda a informação sobre temperatura para o controlador de temperatura e espera pela estabilização. Com a temperatura estabilizada no valor desejado dentro de uma faixa de erro ajustável (nós utilizamos 20mK para o sistema Janis), aplica-se o campo magnético programado e então aplica-se a corrente desejada, quando então o programa entra num “loop” sobre o número de pares de contatos a serem medidos. Para cada par de contato de tensão aplica-se a corrente desejada, primeiro num sentido, mede-se a voltagem, inverte-se a polaridade da corrente, mede-se a voltagem novamente. No caso de medidas multi-terminais, a voltagem é medida entre os pares de contato de modo seqüencial, sendo chaveada por um multiplexador. Por exemplo, aplica-se a corrente entre os contatos

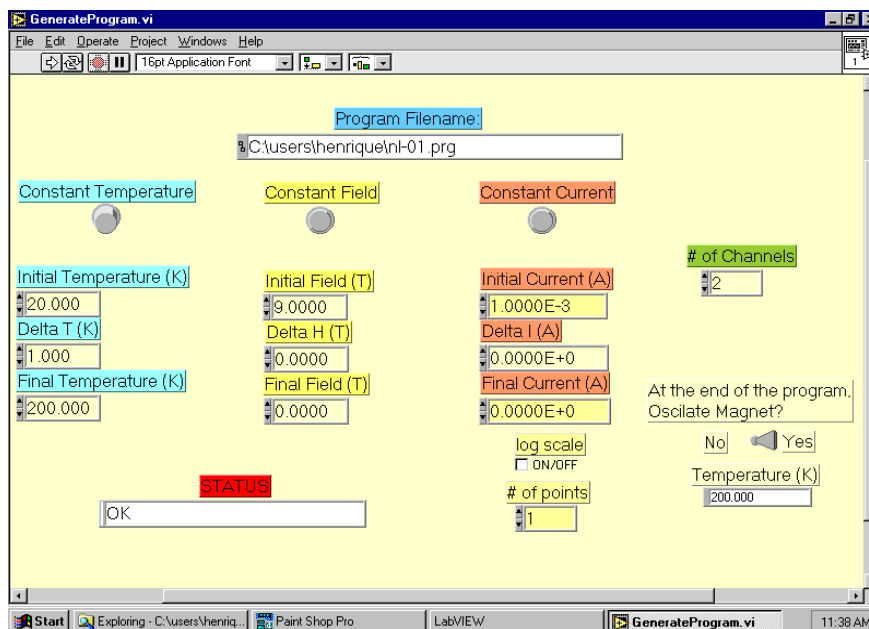


Figura 2.6: Interface gráfica do programa que gera o arquivo com os pontos a serem lidos pelo programa de medida.

1 e 4 e mede-se a voltagem entre os pares 2-3, 5-6, 6-7, etc. (veja, por exemplo, figura 2.5). Para medidas usuais, isto é, somente dois contatos de tensão, o programa mede somente o primeiro par de contatos. A figura 2.7 mostra a interface gráfica do programa de medida.

O valor apresentado da voltagem é calculado subtraindo-se da voltagem medida com a corrente positiva (V_+) a voltagem medida com a corrente negativa (V_-) e dividindo-se este resultado por dois ($V = [V_+ - V_-]/2$). Com este método evitamos os problemas devido a efeitos termo-elétricos, tais como termopar, Peltier e outros [69].

Com pequenas modificações neste programa podemos medir efeito Hall usando a técnica de van der Pauw modificada, onde a geometria da amostra não precisa ser bem definida contanto que os contatos estejam no mesmo plano e nas bordas da amostra (veja figura 2.8). As modificações consistem em medir somente um par de contatos de tensão e fazer um chaveamento nos contatos de corrente como veremos mais adiante.

Voltando à descrição do programa, quando o “loop” sobre o número de contatos termina, o programa lê a próxima linha do arquivo com os pontos a serem medidos e o ciclo se repete até que não haja mais pontos a serem medidos, quando então o programa de medida se encerra. Com esse algoritmo podemos medir curvas $I \times V$, resistividade, magnetorresistividade e

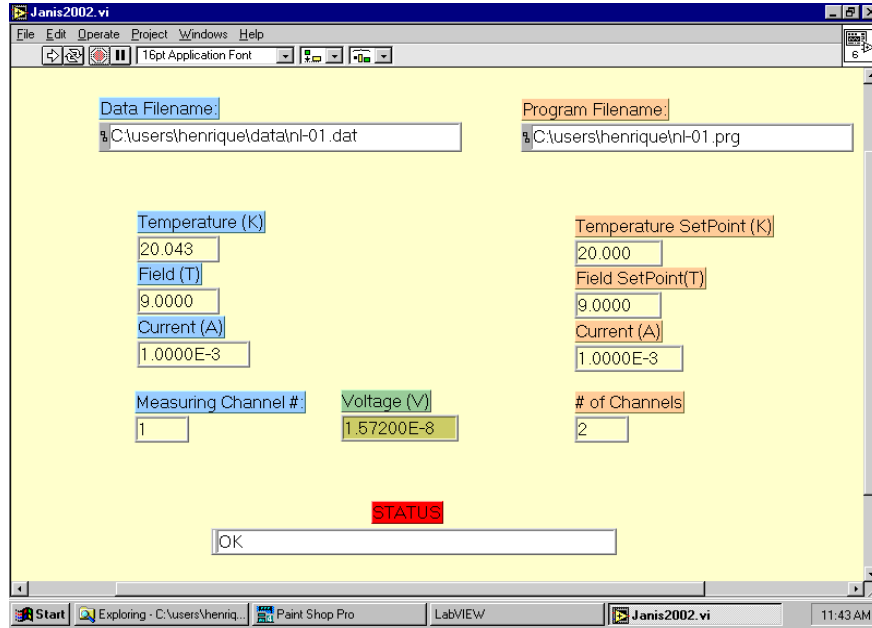


Figura 2.7: Interface gráfica do programa de medida.

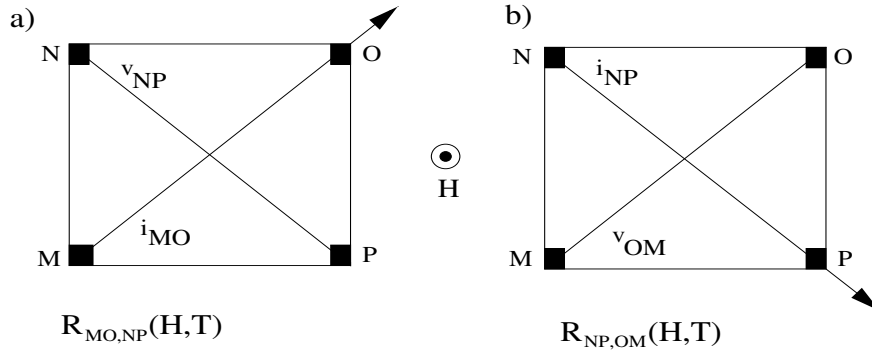


Figura 2.8: Configuração dos contatos para as medidas de efeito Hall.

efeito Hall no mesmo sistema de modo simples e rápido.

2.5 A técnica de van der Pauw modificada

Van der Pauw [70, 71] desenvolveu um método de medida de resistividade longitudinal e Hall cuja geometria da amostra é irrelevante, o único fator geométrico utilizado é a espessura d da amostra. De forma geral temos:

$$\exp\left(-\frac{\pi d}{\rho}R_{MN,OP}\right) + \exp\left(-\frac{\pi d}{\rho}R_{NO,PM}\right) = 1, \quad (2.2)$$

onde $R_{MN,OP} = \frac{V_P - V_O}{i_{MN}}$ e analogamente para $R_{NO,PM}$; ρ é a resistividade da amostra. M, N, O e P são contatos em posições arbitrárias na periferia da superfície da amostra. Em geral, não é possível expressar ρ explicitamente em funções conhecidas. A solução é escrever (2.2) na forma

$$\rho = \frac{\pi d}{\ln 2} \frac{R_{MN,OP} + R_{NO,PM}}{2} f\left(\frac{R_{MN,OP}}{R_{NO,PM}}\right), \quad (2.3)$$

onde $f\left(\frac{R_{MN,OP}}{R_{NO,PM}}\right)$ é mostrada graficamente na figura 2.9. Assim, para determinar-se ρ devemos primeiro calcular $\frac{R_{MN,OP}}{R_{NO,PM}}$, ver o valor correspondente de f na figura 2.9 para esta razão e substituí-lo na equação (2.3).

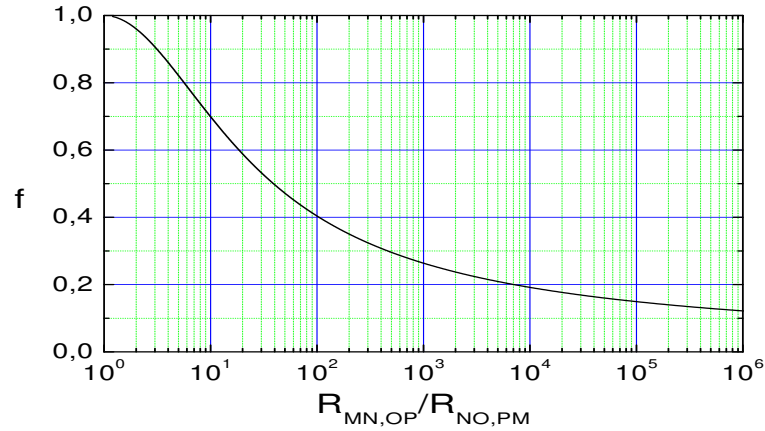


Figura 2.9: Representação gráfica da relação $\cosh \left[\frac{(R_{MN,OP}/R_{NO,PM}) - 1}{(R_{MN,OP}/R_{NO,PM}) + 1} \frac{\ln 2}{f} \right] = \frac{1}{2} \exp \frac{\ln 2}{f}$ resultante da simplificação da equação (2.2).

Para a medida da resistividade Hall, o método se modifica um pouco, devemos medir $R_{MO,NP}$ e é necessário que se faça duas medidas, primeiro com campo magnético em um sentido e depois com campo magnético aplicado no sentido contrário. A resistência Hall é dada por:

$$R_H = \frac{1}{2} [R_{MO,NP}(H) - R_{MO,NP}(-H)], \quad (2.4)$$

A mudança de sentido do campo magnético é custoso, tanto em energia como em tempo de medida. É possível, no entanto, obter a resistência Hall sem a necessidade de mudança do sentido do campo magnético modificando-se o método de medida.

A técnica modificada para encontrar a resistência Hall se baseia na simetria dos coeficientes de transporte de Onsager [72], ou seja, $R_{MO,NP}(+H) = R_{NP,MO}(-H) = R_{NP,MO}(+H) + 2R_H(+H)$, o que resulta em:

$$R_H = \frac{1}{2} [R_{MO,NP}(H) - R_{NP,MO}(H)], \quad (2.5)$$

assim, com um simples chaveamento mudamos os pares de contatos para tensão e corrente e obtemos a resistência Hall sem a necessidade da mudança do campo magnético [73].

2.6 Amostras Monocristalinas de $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$

Os cristais de Bi2212 foram crescidos em nosso laboratório como resultado da tese de mestrado de Robson Ricardo da Silva [74]. O método utilizado foi similar ao auto-fluxo [75], o que resultou em cristais de muito boa qualidade e razoável tamanho.

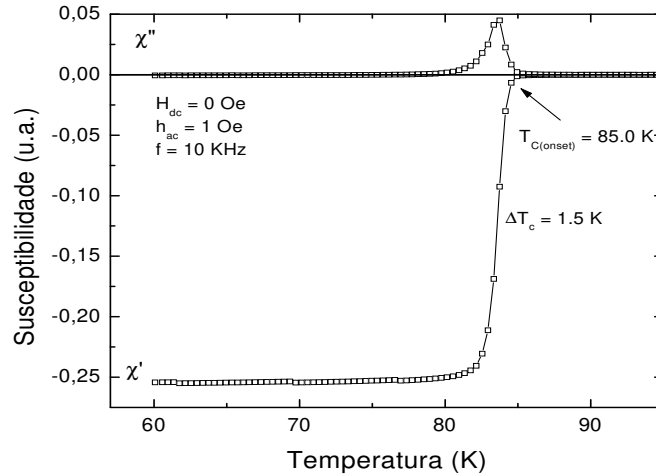


Figura 2.10: Transição supercondutora para um dos vários cristais de Bi2212 utilizados neste trabalho.

Os cristais utilizados nesta tese foram caracterizados por espectrometria de emissão atômica.

mica com plasma acoplado indutivamente (“inductively coupled plasma” - ICP), espectroscopia de dispersão de energia (“energy dispersion spectroscopy” - EDS), microscópio ótico com luz polarizada, microscopia por varredura de elétrons (“scanning electron microscopy” - SEM) e difração de raio-x (geometria $\theta - 2\theta$, “rocking curves” e método de Laue).

Os cristais apresentaram composição homogênea, ausência de “twins” e fases secundárias, tendo superfícies planas e paralelas. Difração de raio-x apresentou reflexão dos picos (001) estreitos e intensos, com a largura a meia altura de “rocking curve” $\leq 0,3^\circ$. Cristais como crescidos (“as grown”) e após tratamento térmico (“annealed”) em ar a 400°C por 10 horas foram usados. A temperatura de transição supercondutora nestes cristais foi $83\text{ K} \leq T_c \leq 90\text{ K}$ com largura de transição $\Delta T_c(10\% - 90\%) \sim 1,5\text{ K}$. Como referência, mostramos na figura 2.10 uma curva de susceptibilidade em função da temperatura para um dos cristais estudados nesta tese.

Para as medidas de transporte foram depositados contatos de Ag ou Au por “sputtering” e usada tinta prata epóxi para a colagem de fios de ouro ou cobre. A resistência dos contatos é da ordem de $0,3\ \Omega$.

Capítulo 3

Resultados e Discussão

Como dito na Introdução, trabalhos experimentais mostraram que a linha $H_j(T)$ onde ocorre o salto na magnetização e a linha $H_{SMP}(T)$ onde ocorre o máximo na largura dos “loops” de magnetização formam uma fronteira comum no diagrama de fases H-T dos supercondutores de alta T_c mais estudados, Bi2212 [53] e Y123 [54]. A linha $H_j(T)$ está sendo interpretada como uma transição de primeira ordem relacionada com a fusão da rede de vórtices, enquanto que a linha $H_{SMP}(T)$ onde ocorre o segundo pico na magnetização está sendo interpretada principalmente como uma transição onde as linhas de fluxo 3D se dissociam em panquecas de vórtices 2D, entre outras possíveis interpretações.

Nas seções seguintes apresentaremos medidas de magnetização em cristais de Bi2212 cujos resultados sugerem que a movimentação abrupta dos vórtices, tipo avalanches, devido a instabilidades termo-magnéticas, é responsável pelo segundo pico na magnetização, e medidas de transporte utilizando a técnica de resistência não local mostrando a existência de uma rede de vórtices bem acima da linha de transição de primeira ordem $H_{FOT}(T)$.

3.1 Instabilidade Termo-magnética e Segundo Pico na Magnetização

Começamos mostrando na figura 3.1 um “loop” de histerese $M(H/H_{SMP})$ em $T = 3,5 K$ para um filme fino de Nb junto com um “loop” em $T = 25 K$ para um cristal de Bi2212 com $T_c = 83,5 K$ e $\Delta T_c \sim 1,6 K$ e com tamanho $1,7 \times 0,64 \times 0,02 \text{ mm}^3$, que chamamos de C1. O campo magnético foi aplicado perpendicular à maior superfície do filme fino e paralelo

ao eixo-c do cristal. Observe a semelhança nas duas curvas, ambas apresentando o efeito característico do segundo pico na magnetização para baixos campos.

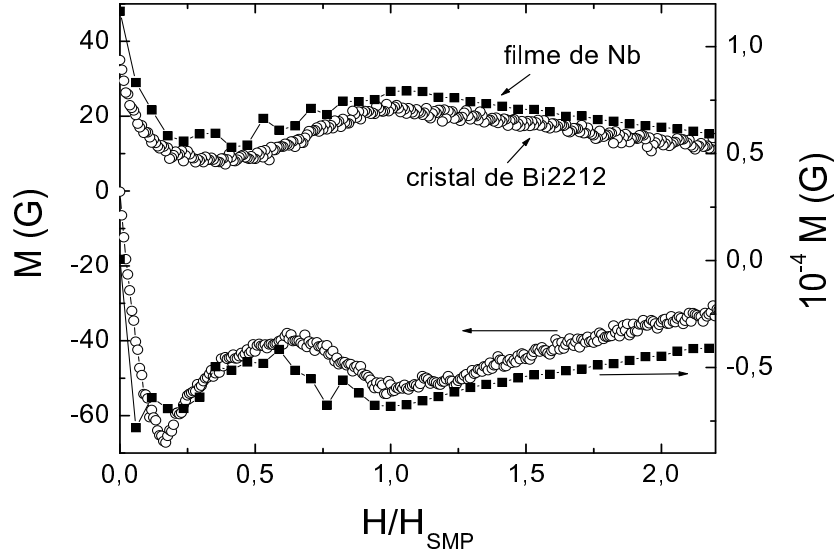


Figura 3.1: Segundo pico na magnetização medido em um filme de Nb ($T_c = 9,2\text{ K}$) e no monocristal C1 de Bi2212 (tamanho $1,7 \times 0,64 \times 0,02\text{ mm}^3$) nas temperaturas $T = 3,5\text{ K}$ e $T = 25\text{ K}$, respectivamente.

Na figura 3.2 mostramos “loops” de histerese $M(H)$ para um cristal de Bi2212 com tamanho de $3,2 \times 1,1 \times 0,025\text{ mm}^3$, que chamamos de S1, no intervalo de temperatura $15\text{ K} \leq T \leq 35\text{ K}$ e que apresenta $T_c = 89\text{ K}$. Como se pode observar, para $T < 20\text{ K}$ a magnetização $|M(H)|$ aumenta com o campo, alcança um máximo e então gradualmente diminui com o campo. Para $T > 20\text{ K}$, entretanto, $|M(H)|$ apresenta máximos locais em $H_{fp}(T)$ e $H_{SMP}(T)$, como indicado para $T = 22\text{ K}$. Este segundo pico na magnetização é observado claramente para temperaturas até $T \sim 40\text{ K}$. Identificamos $H_{fp}(T)$ como o campo no qual ocorre o primeiro salto na magnetização, $H_{fp}(T) = H_{fj}(T)$, como descrito na introdução sobre a teoria da instabilidade termo-magnética.

Pela primeira vez foi feito um estudo da dependência do SMP com o tamanho do cristal [58]. Quebramos sucessivamente um cristal aqui chamado de S2 e medimos “loops” de momento magnético $m(H)$ (a magnetização $M(H) = m(H)/V$ onde V é o volume da amostra) usando o PPMS. Este cristal com $T_c = 83,5\text{ K}$ e $\Delta T_c(10\% - 90\%) = 1,5\text{ K}$ de tamanho

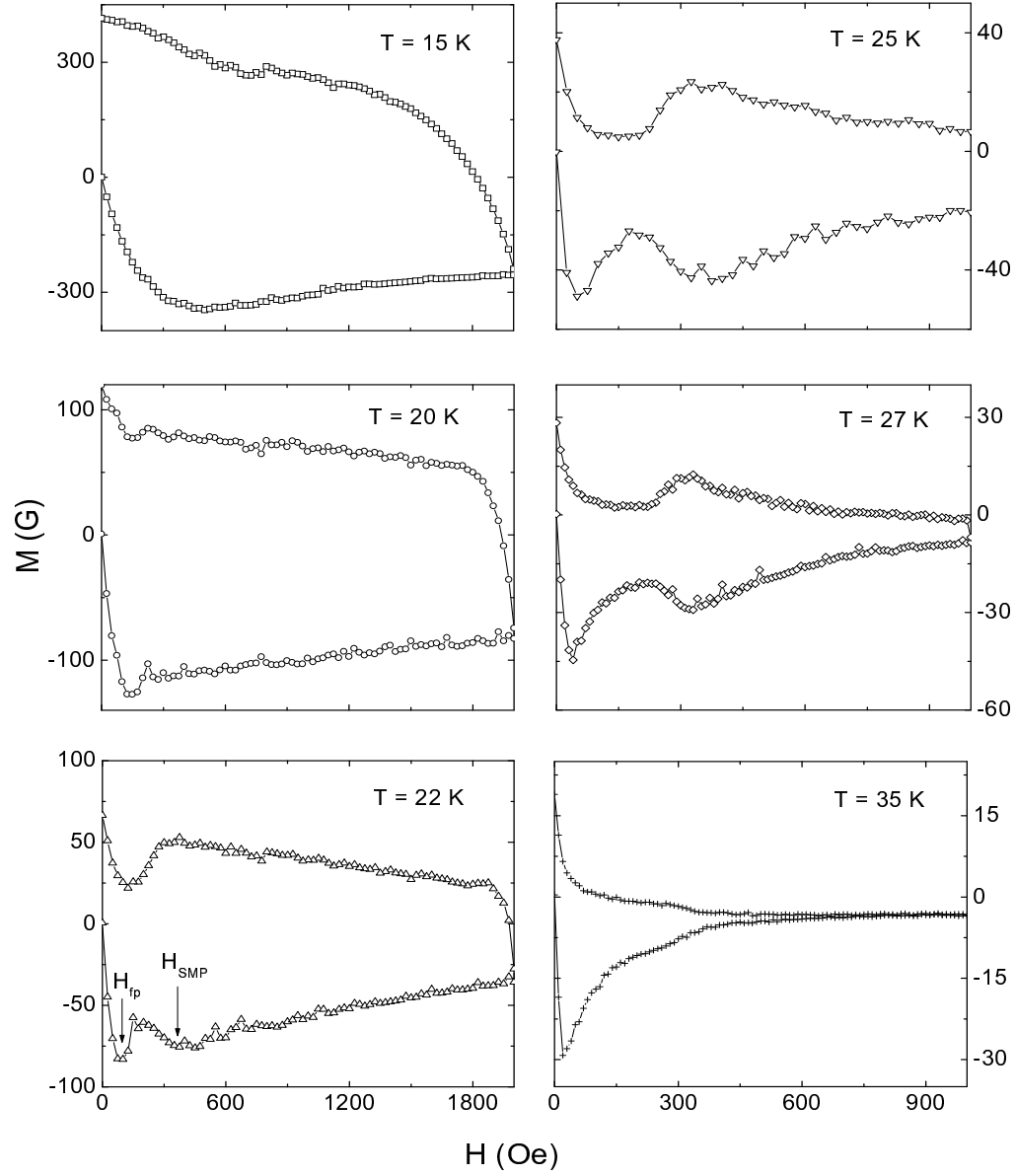


Figura 3.2: "Loops" de histerese magnéticas medidas no cristal de Bi2212 chamado de S1 para $T < 40\text{ K}$. O segundo pico de magnetização é claramente observado para $T > 20\text{ K}$. Em $T = 22\text{ K}$ estão indicados $H_{fp}(T)$ e $H_{SMP}(T)$ correspondente, respectivamente, ao primeiro e ao segundo pico na magnetização.

$a \times b \times c = 2300 \times 720 \times 200 \mu m^3$ e inicialmente chamado de S2a foi sucessivamente quebrado em cristais menores de tamanho $\sim 200 \times 200 \times 20 \mu m^3$; esta amostra foi chamada de S2b. S2c foi obtida quebrando-se S2b em cristais de tamanho médio $\sim 200 \times 120 \times 20 \mu m^3$. Finalmente S2d foi obtida de S2c quebrando-se os cristais até atingirem um tamanho médio de $100 \times 100 \times 20 \mu m^3$. Observe que o volume das amostras permaneceu o mesmo: $V_{S2a} = V_{S2b} = V_{S2c} = V_{S2d}$.

Para conseguir quebrar o cristal sem perder material durante este processo, procedemos da seguinte forma: o cristal a ser quebrado era colado sobre uma base de nylon utilizando-se graxa de vácuo. Esta base tem uma forma cilíndrica de modo a se encaixar dentro do tubo plástico utilizado na montagem para as medidas magnéticas, tanto no SQUID como no PPMS, e medida junto com o cristal. Após a medida, o sinal da base é subtraído. O cristal é então quebrado manualmente utilizando-se uma agulha de ponta fina e trabalhando-se sob um microscópio ótico. Da escala do microscópio podemos determinar o tamanho médio dos cristais. A graxa de vácuo impede que os cristais quebrados se espalhem. Um desenho esquemático do suporte com o cristal antes e depois de quebrado está mostrado na figura 3.3.

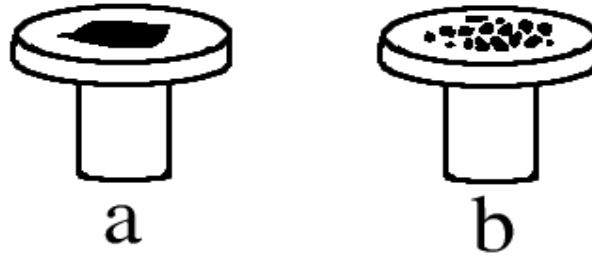


Figura 3.3: Desenho esquemático do suporte de nylon usado no processo de quebra do cristal. Em (a) o cristal ainda esta inteiro e em (b) o cristal já está quebrado.

Na figura 3.4 apresentamos “loops” de $M(H)$ para as amostras S2a, S2b, S2c e S2d medidos em $T = 25 K$ e com campo magnético aplicado paralelo ao eixo c dos cristais. Observa-se que para a amostra S2a (fig. 3.4a) $|M(H)|$ aumenta com o campo e atinge um máximo em $H_{fp} \approx 150 Oe$. Para um campo maior $H_{SMP} \approx 1000 Oe$ um segundo pico de magnetização (SMP) bem pronunciado aparece. Para os cristais com tamanho médio menor (S2b (fig. 3.4b) e S2c (fig. 3.4c)) este SMP é fortemente reduzido e para a amostra S2d (fig. 3.4d), de menor tamanho médio de cristais, o SMP desaparece completamente.

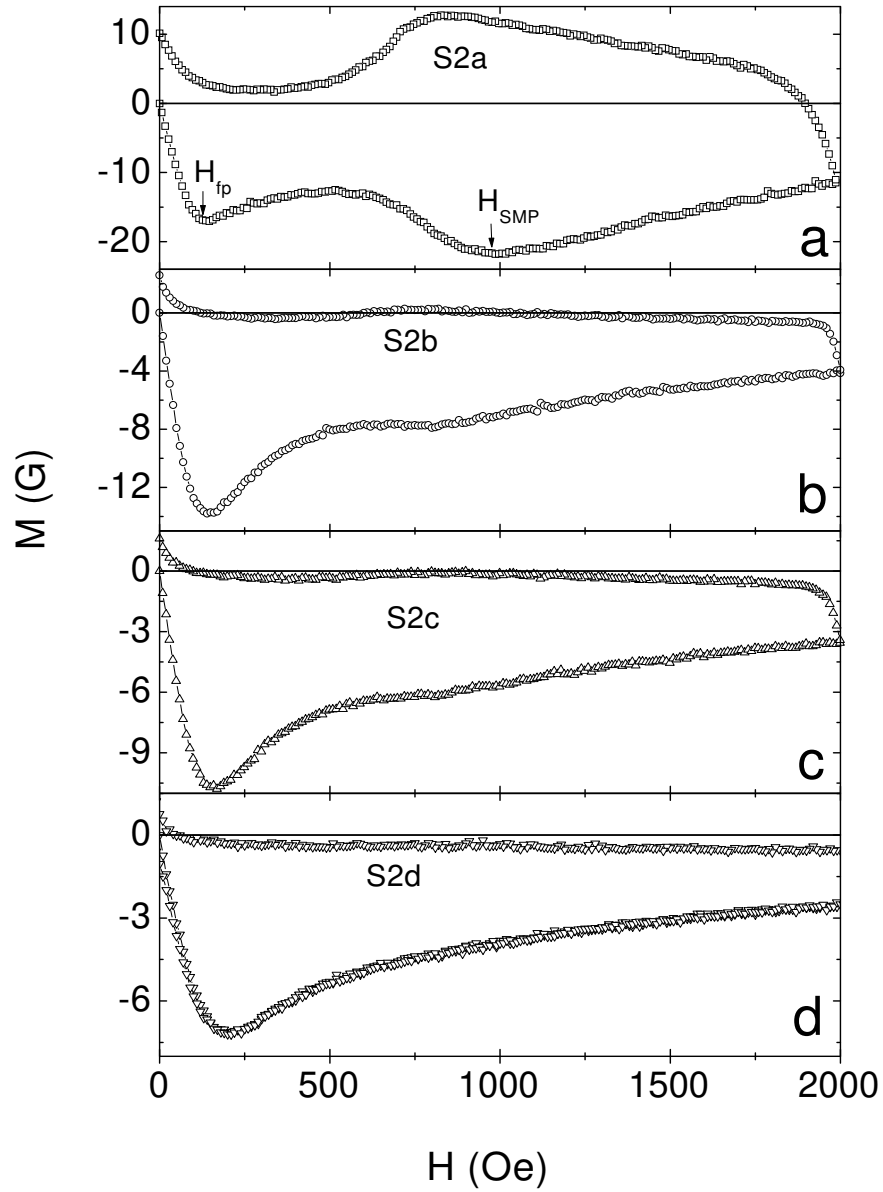


Figura 3.4: Curvas de magnetização M em função do campo magnético aplicado H para os vários tamanhos médios de cristais de Bi2212 medidos em $T=25K$. S2a é o cristal original com dimensões $2,3 \times 0,72 \times 0,2 \text{ mm}^3$. As dimensões médias dos cristais das amostras são: S2b: $200 \times 200 \times 20 \mu m^3$, S2c: $200 \times 120 \times 20 \mu m^3$, S2d: $100 \times 100 \times 20 \mu m^3$.

Análise dos “loops” de histerese $M(H)$ similar a realizada em [76] mostrou que o mecanismo de histerese é dominado por propriedades volumétricas (“bulk”) dos vórtices (voltaremos a este ponto mais adiante, veja figuras 3.9 e 3.10), o que implica que a meia-largura do “loop” de histerese $|M_{hw}(H)| = (1/2)[M^+(H) - M^-(H)]$ (M^+ e M^- são os momentos magnéticos que correspondem a parte ascendente e descendente do “loop”) é proporcional a densidade de corrente crítica $j_c(H)$ [19]. Para uma amostra retangular e geometria transversa (H aplicado perpendicular à maior superfície do cristal) o modelo de Bean resulta em $j_c(H) = [4/b(1 - b/3a)] |M_{hw}(H)|$, onde $a \geq b$ [65], a é o comprimento e b é a largura do cristal.

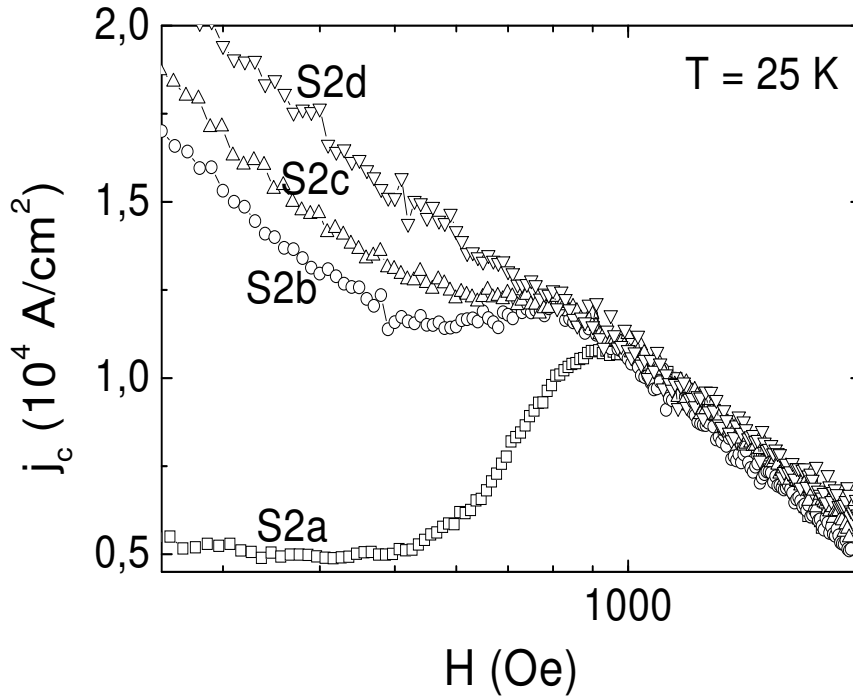


Figura 3.5: Densidade de corrente crítica calculada a partir das curvas de magnetização da figura 3.4 em $T=25\text{K}$ para as diferentes amostras usando $j_c(H) = [4/b(1 - b/3a)] |M_{hw}(H)|$. S2a, S2b, S2c e S2d são as mesmas amostras da figura 3.4.

Na figura 3.5 apresentamos $j_c(H)$ para as amostras S2a a S2d. Como se observa, $j_c(H)$ colapsa em uma única curva para $H > H_{SMP}$ indicando igual intensidade de aprisionamento

para cristais de diferentes tamanhos enquanto que para $H < H_{SMP}$, $j_c(H)$ do cristal S2a (maior) é muito reduzido se comparado a $j_c(H)$ dos cristais menores. Também é evidente que o máximo em $j_c(H)$ está ausente na amostra com cristais menores (S2d).

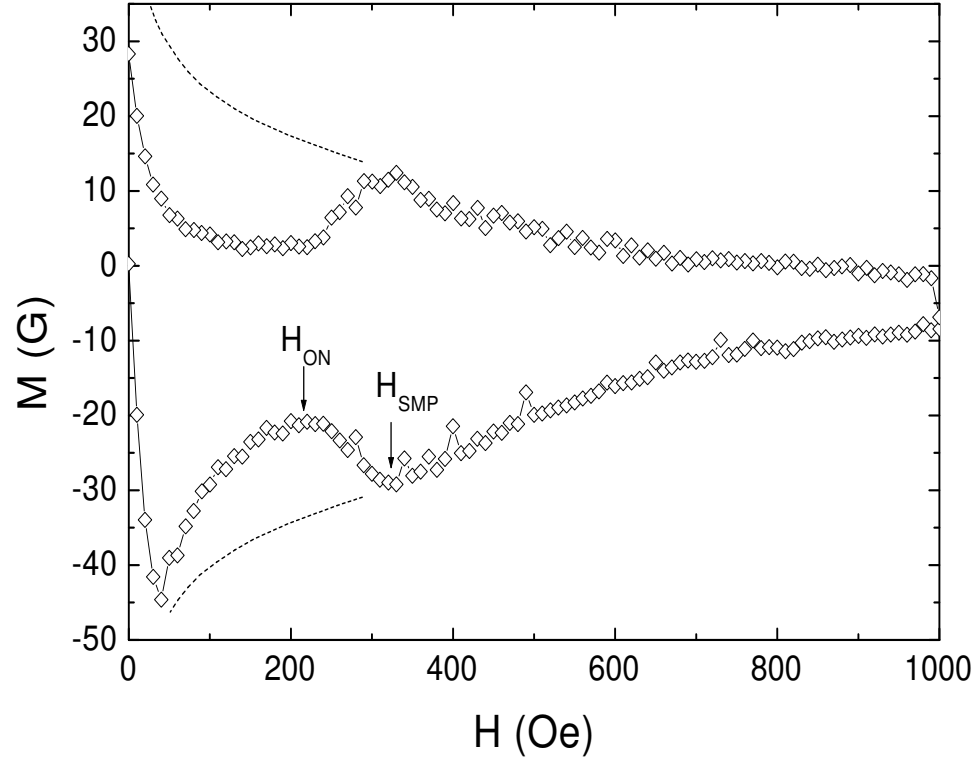


Figura 3.6: Figura de histerese magnética mostrando como seria um “loop” de magnetização se não houvesse efeitos de instabilidade termo-magnética. As linhas tracejadas foram calculadas a partir da extrapolação da curva de corrente crítica obtida para campos $H > H_{SMP}$ até $H = 0$.

Na figura 3.6 mostramos, como exemplo, um “loop” de histerese magnética corrigido (linhas tracejadas) para mostrar como seria sem o efeito da instabilidade termo-magnética. As linhas tracejadas são uma reconstrução do loop de magnetização a partir da corrente crítica calculada. Nesta reconstrução extrapolamos a corrente crítica calculada para $H > H_{SMP}$ até $H = 0$ (como exemplo, veja a figura 3.5) e recalculamos a magnetização, mostrada como as linhas tracejadas. O segundo pico da magnetização pode ser portanto um efeito da diminuição da largura do “loop” para $H < H_{SMP}$ devido a instabilidade termo-magnética e não um aumento da largura do “loop” para $H > H_{ON}$ devido a transições de fase no estado

de vórtices como tem sido interpretado.

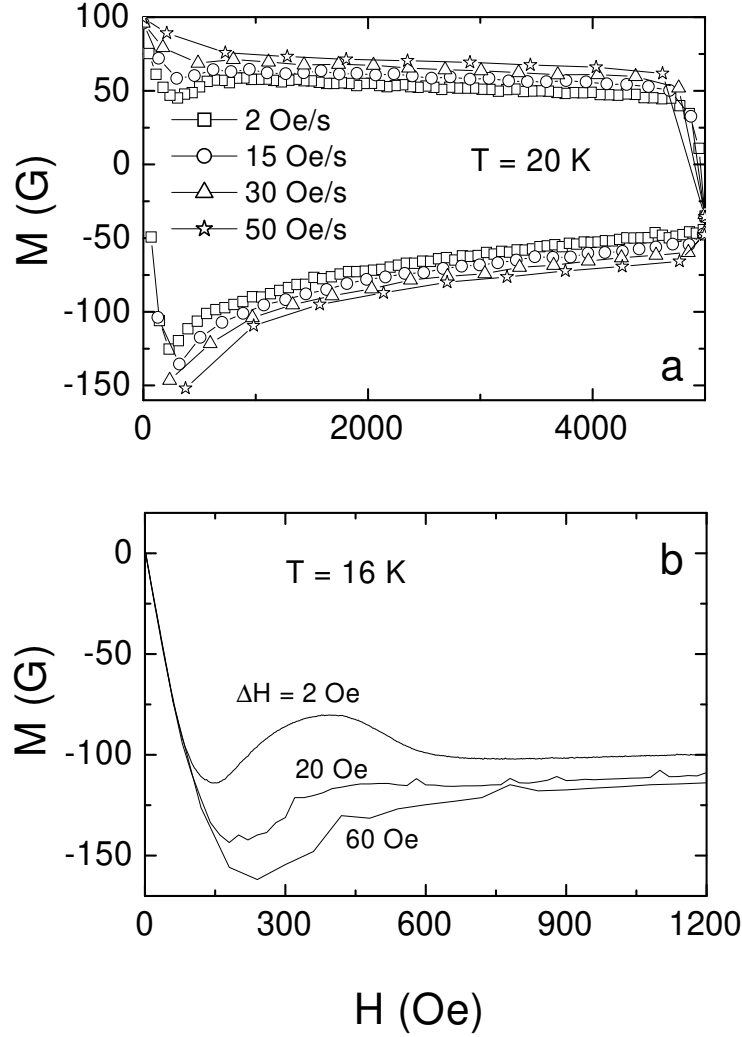


Figura 3.7: Magnetização em função do campo magnético para dois cristais de Bi2212. Em (a) variou-se a taxa de aplicação do campo magnético para o cristal C1 medido em $T = 20$ K. Em (b) a taxa ficou fixa mas o passo entre pontos medidos variou para o cristal S3 em $T = 16$ K.

Outra observação interessante com relação a ocorrência do segundo pico na magnetização é sua dependência com o tamanho do passo ΔH e com a taxa de variação do campo magnético dH/dT utilizados nas medidas. Na figura 3.7 mostramos dois gráficos de $M(H)$ para dois cristais de Bi2212. A figura 3.7(a) mostra um “loop” de histerese com várias taxas de variação

do campo magnético para o cristal C1 enquanto a figura 3.7(b) mostra $M(H)$ para o cristal S3 de volume $350 \times 330 \times 70 \mu m^3$ onde se usou diferentes passos ΔH para o campo magnético. Vê-se claramente a diminuição do segundo pico da magnetização com o aumento tanto da taxa de aplicação do campo magnético como com o passo entre pontos medidos.

Vários mecanismos tem sido propostos para explicar a ocorrência do SMP em cristais de Bi2212, tais como transição dimensional 3D-2D da rede de vórtices [47, 48] e transição induzida pela desordem (“pinning”) [49, 51].

Entretanto, o desaparecimento do SMP com o decréscimo das dimensões dos cristais dificilmente pode ser explicado por estes modelos. Por outro lado, a aparente redução de $j_c(H)$ para $H < H_{SMP}$ pode ser explicado naturalmente pela teoria da instabilidade termo-magnética [60].

É sabido há décadas que a magnetização irreversível de supercondutores do tipo II pode ser repentinamente reduzida devido a rápida penetração (tipo avalanche) do campo magnético no interior do supercondutor. Isto acontece quando o calor gerado na amostra pelos vórtices que se movem excede a capacidade da amostra de absorvê-lo ou dissipá-lo. A teoria [60] prediz um tamanho crítico para uma placa em um campo magnético paralelo a maior superfície:

$$s_{crit} = [-10^2 \pi C / 16 j_c (\partial j_c / \partial T)]^{1/2} \quad (3.1)$$

abaixo do qual não há salto de vórtices e um campo magnético

$$H_{fj} = [-\pi^3 C j_c / (\partial j_c / \partial T)]^{1/2} \quad (3.2)$$

onde o primeiro salto ocorre. C é o calor específico da amostra. Para uma geometria transversa [65, 66] o tamanho efetivo de um cristal retangular fino ($c \ll a, b$) é $s \sim (bc/2)^{1/2}$. Considerando $H_{fj} \approx H_{fp} \approx 150 \text{ Oe}$ (fig. 3.4a) e tomando $j_c \sim 10^5 \text{ A/cm}^2$ obtido de medidas a baixa temperatura, calculamos, usando (3.1) e (3.2), $s_{crit} \approx 12 \mu m$. Então para cristais de tamanho efetivo $s < 12 \mu m$ não é esperado salto de vórtices e não esperaríamos a ocorrência do SMP. Note que o valor calculado $s_{crit} \approx 12 \mu m$ está próximo do tamanho médio efetivo $s \sim 30 \mu m$ dos cristais da amostra S2d onde não se observou o SMP e é muito menor que $s \sim 270 \mu m$ do cristal original S2a.

Para reforçar nossa hipótese, medimos $M(H)$ para uma amostra policristalina de Bi2212. Esta amostra cerâmica de tamanho $3,5 \times 2,9 \times 0,9 \text{ mm}^3$ apresentou um $T_c = 84 \text{ K}$ e grãos

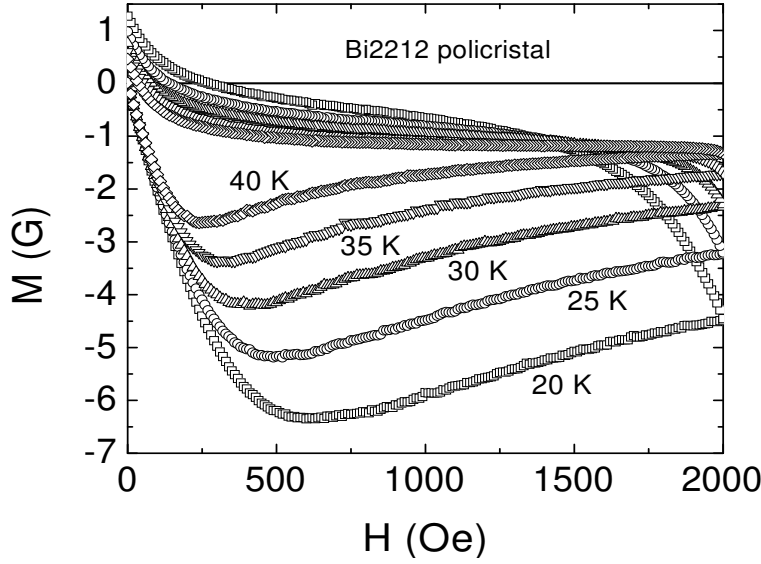


Figura 3.8: Curva de magnetização em função do campo magnético de uma amostra cerâmica de Bi2212 de tamanho $3,5 \times 2,9 \times 0,9 \text{ mm}^3$ para várias temperaturas. Observe a ausência do SMP. O tamanho médio dos grãos é $3 \times 3 \times 0,6 \text{ }\mu\text{m}^3$.

de tamanho médio de $3 \times 3 \times 0,6 \text{ }\mu\text{m}^3$. Na figura 3.8 mostramos medidas de $M(H)$ para $20 \text{ K} < T < 40 \text{ K}$. O método de preparação e a caracterização desta amostra já foi relatado anteriormente [77]. Está bem estabelecido que supercondutores cerâmicos de alta temperatura podem ser considerados como supercondutores granulares com um acoplamento fraco (tipo Josephson) entre grãos [78]. A magnetização em sistemas granulares fracamente acoplados é devido principalmente a correntes de circulação intragrãos. Então o tamanho efetivo relevante deste tipo de amostra é o tamanho do grão. O tamanho efetivo dos grãos desta amostra é $s \simeq 0,95 \text{ }\mu\text{m} \ll s_{crit}$. Com isso é de se esperar que saltos de vórtices por instabilidade termo-magnética não sejam observados em amostras cerâmicas policristalinas. Foram feitas medidas entre $2 \text{ K} < T < T_c$ com campos até 9 T e não foi observado SMP nesta amostra cerâmica.

Note que a penetração de vórtices na forma de saltos em cristais de Bi2212 também foi observado mudando-se a taxa de variação do campo magnético [79]. Na referência [79] a penetração de fluxo na forma de avalanches foi atribuído ao aquecimento do supercondutor causado pelo colapso da barreira superficial de Bean-Livingston (BLSB). Nossos resultados

indicam, no entanto, que $H_{fp}(T)$ está bem acima do primeiro campo de penetração de fluxo $H_p(T)$. Na verdade, no intervalo de campo onde a magnetização irreversível absoluta aumenta com o campo, o modelo de Bean prevê $B \propto h^2$, onde $h = H/(1 - N)$ e N é o fator geométrico de desmagnetização. Em concordância com o modelo de Bean [42, 76], $\sqrt{B} \propto h$ para $h > h_p \ll h_{fp}$ ($h_p \simeq 350 \text{ Oe}$, $h_{fp} \simeq 930 \text{ Oe}$) como mostrado na figura 3.9 para o cristal C1. Aqui $B = H + 4\pi(1 - N)M$ é a indução média do cristal e $N = 0,92$.

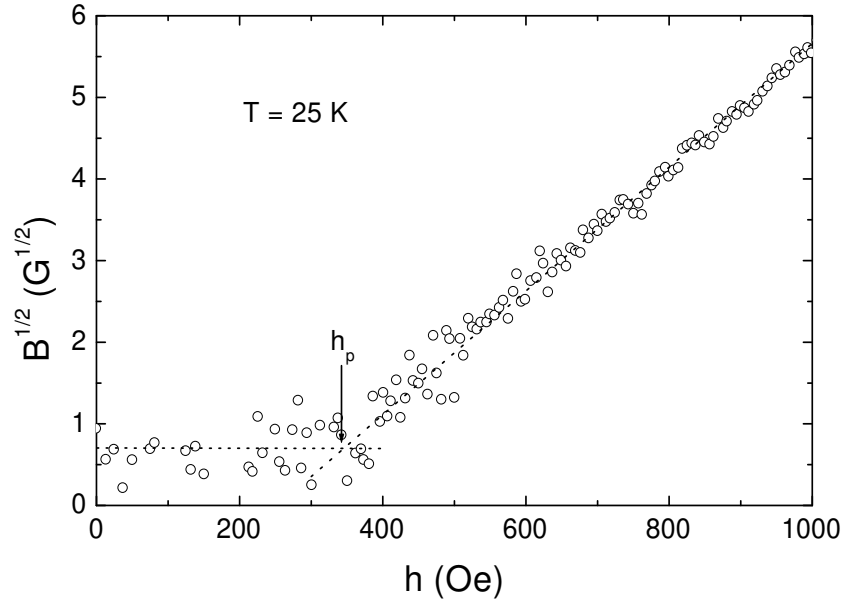


Figura 3.9: Raiz quadrada do campo interno $B^{1/2}$ vs. $h = H/(1 - N)$, com $N = 0,92$ medido no cristal C1. A dependência observada demonstra a validade do modelo de Bean para $h > h_p$, o campo de penetração. Linhas pontilhadas são guias.

A figura 3.10 mostra a magnetização virgem $M^+(H)$ medida neste cristal junto com a magnetização superficial calculada $M_s^+(H)$ que para $H > H_p$ aumenta com o campo segundo $-H + (H^2 - H_p^2)^{1/2}$ assumindo que H_p está relacionado à barreira superficial de Bean-Livingston [80]. Pode-se observar claramente na figura 3.10 que a possível magnetização superficial produz uma contribuição desprezível para $M^+(H)$ para $H \geq H_{fp}$. Portanto, podemos concluir seguramente que a reentrância em $M(H)$ está essencialmente relacionada ao comportamento do estado crítico da magnetização. Isto está em concordância com a figura 3.7 e com a conclusão feita na referência [81] de que o surgimento do SMP resulta de um decaimento rápido do perfil magnético à la Bean para $H < H_{SMP}(T)$. Os baixos valores

de H_{fp} não nos permitem um tratamento similar dos dados para $T \gg 40\text{ K}$.

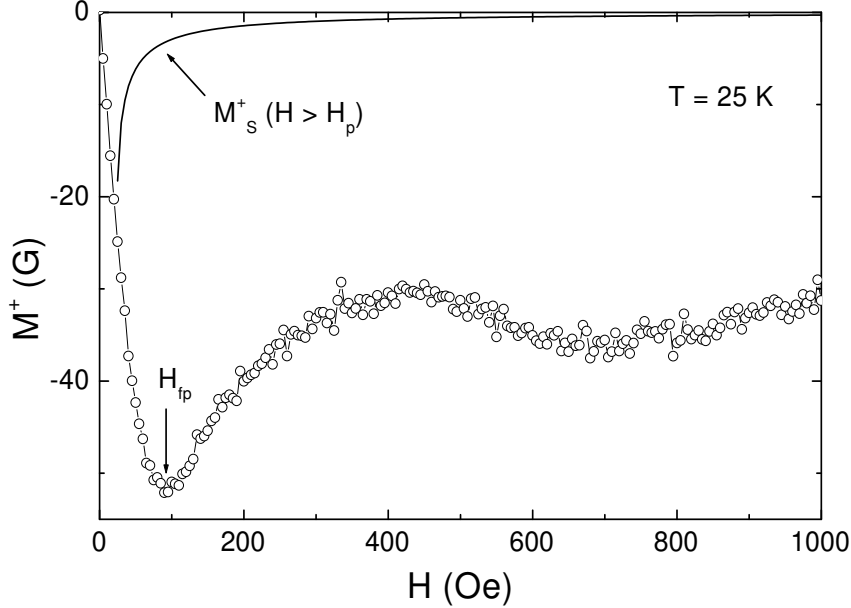


Figura 3.10: Medida de magnetização virgem $M_s^+(H)$ para o cristal C1. A linha sólida é a curva de magnetização teórica resultante da contribuição da barreira superficial de Bean-Livingston $M_s^+(H)$ [80].

Vale notar também que medidas locais por micro-sensores Hall revelaram uma distribuição de fluxo na forma de domo para $H < H_{SMP}$ em cristais de Bi2212 [53] e filmes de Nb [59]. No caso do Bi2212 o perfil magnético na forma de domo foi atribuído à barreiras de superfície [53, 82]. Por outro lado, das medidas feitas nos filmes de Nb sabe-se que este efeito pode ser devido a avalanches de vórtices. A semelhança nas curvas de magnetização destes supercondutores na região do SMP é tão marcante que não parecem ter origens diferentes.

Como mostrado anteriormente, a reentrância de $M(H)$ (característica do SMP) começa em $H_{fj}(T) \simeq H_{fp}(T)$. O valor deste campo apresenta uma correlação com o campo característico $H^* = \phi_0/\lambda^2$, abaixo do qual o módulo de cisalhamento da rede de vórtices decresce exponencialmente com o campo, $c_{66} \simeq (\epsilon_0/\lambda^2)(H\lambda^2/\phi_0)^{1/4} \exp[-(\phi_0/H\lambda^2)^{1/2}]$, enquanto que para $H > H^*$, $c_{66} \simeq (\epsilon_0/4\phi_0)H$, ou seja, c_{66} aumenta linearmente com o campo [37]. Os valores exponencialmente pequenos de c_{66} para $H < H^*$ implica que no limite de baixos campos a interação entre vórtice e desordem (centros de aprisionamento) é mais intensa que a interação vórtice-vórtice. Neste regime a rede de vórtices se quebra e ocorre o movimento

plástico de algumas regiões da rede com respeito a outras regiões ainda aprisionadas [83, 84]. Quanto mais rápido o movimento dos domínios fracamente aprisionados impulsionado pelo gradiente de densidade de vórtices, maior é o calor gerado, levando a uma supressão da força de aprisionamento, o que leva novamente a um aumento da velocidade dos vórtices, e assim por diante. Nesta região de campo e devido à variação da temperatura local, uma redução absoluta da magnetização irreversível relativo ao valor do estado crítico isotérmico é esperada. O movimento plástico dos vórtices, ocorrendo na forma de avalanches intermitentes foi observado para baixos campos em filmes de Nb [85] e em cristais de Bi2212 [86].

Com o aumento do campo magnético, o módulo de cisalhamento aumenta, assim, para $H > H^*$ a rede de vórtices se move coerentemente, interagindo fracamente com o potencial de aprisionamento. Neste caso somente avalanches pequenas ocorrem e o estado crítico isotérmico é restabelecido. Este cenário explica naturalmente o desaparecimento do SMP para baixas temperaturas. A condição necessária para a ocorrência de avalanches é $H > H_{fj}(T)$. Porém, para baixas temperaturas $H_{fj} > H^*$ e portanto não há movimento plástico dos vórtices. Enfatizamos que o mecanismo do SMP é fundamentalmente diferente do cenário de transição de desordem da rede induzida por campo [49–51]. Ao mesmo tempo é consistente com experimentos de espalhamento de nêutrons a baixo ângulo onde o reaparecimento da rede de vórtices para campos acima de 600 Oe e na faixa de temperatura do SMP foi encontrado [55].

A densidade de corrente crítica $j_c(T)$, que reflete a força devido ao potencial de aprisionamento, decresce com a temperatura. Por outro lado, a densidade de defeitos na rede de vórtices aumenta com a temperatura [87, 88]. Nós acreditamos que a competição entre a diminuição de j_c e o aumento da concentração de defeitos com a temperatura leva ao desaparecimento do SMP para $T > 40 K$ e ao surgimento de pronunciados saltos na magnetização para temperaturas mais altas.

Estes saltos na magnetização observados para $T > 40 K$ podem ser suprimidos diminuindo-se o tamanho do cristal. O cristal S1 foi quebrado em cristais de tamanho médio de $100 \times 100 \times 25 \mu m^3$. A figura 3.11 mostra $M(H)$ para esta amostra junto com $M(H)$ obtido para o mesmo cristal antes de ser quebrado, ambos medidos em $T = 55 K$. Observe que o volume total de material medido ficou o mesmo, ou seja, o volume do cristal inicial é igual à soma de todos os volumes dos pequenos pedaços do cristal depois de quebrado. Com a diminuição do tamanho do cristal os saltos na magnetização são fortemente diminuídos.

Outra observação que corrobora o modelo da instabilidade termo-magnética é a depen-

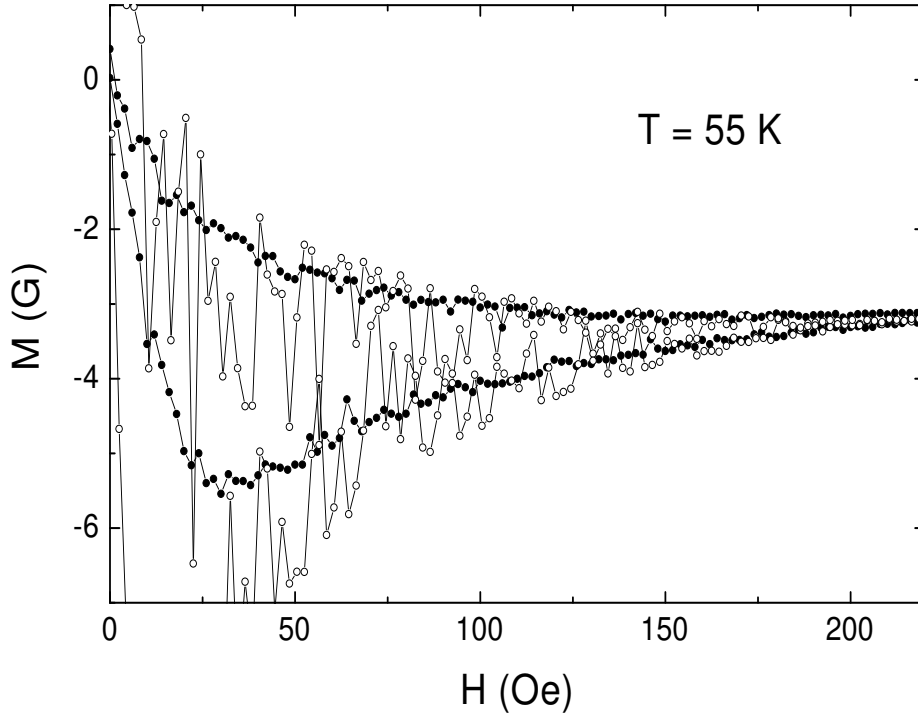


Figura 3.11: Desaparecimento dos saltos de magnetização com a diminuição do tamanho do cristal: (o): $M(H)$ do cristal original S1 ($3,2 \times 1,1 \times 0,025 \text{ mm}^3$), (•): $M(H)$ medido após o cristal ter sido quebrado em pedaços menores ($\sim 100 \times 100 \times 25 \text{ }\mu\text{m}^3$). O volume de material medido permaneceu o mesmo.

dência da amplitude e do número de saltos na magnetização com o tamanho do passo ΔH e a taxa de variação do campo dH/dt , bem como o procedimento de medida para temperaturas acima da faixa de ocorrência do SMP. Na figura 3.12 mostramos $M(H)$ medido no cristal S1 para $T = 60 \text{ K}$ com passos $\Delta H = 2 \text{ Oe}$ (curvas 1 e 2) e $\Delta H = 5 \text{ Oe}$ (curva 3). O “loop” 1 foi medido com um tempo 4 vezes maior que o “loop” 2. Observa-se uma redução significativa do número de saltos e sua amplitude nas medidas de curto período.

O desaparecimento do SMP em monocristais de Bi2212 com a diminuição do tamanho da amostra foi confirmado em recente trabalho de Y. M. Wang e coautores [89]. Eles mediram a magnetização local em função do campo aplicado para várias geometrias de cristais de Bi2212, usando amostras na forma de discos e quadrados com tamanhos laterais variando entre 30 e 180 μm e espessura entre 4,5 e 10 μm e com a relação entre a espessura e o diâmetro aproximadamente constante para diferentes amostras.

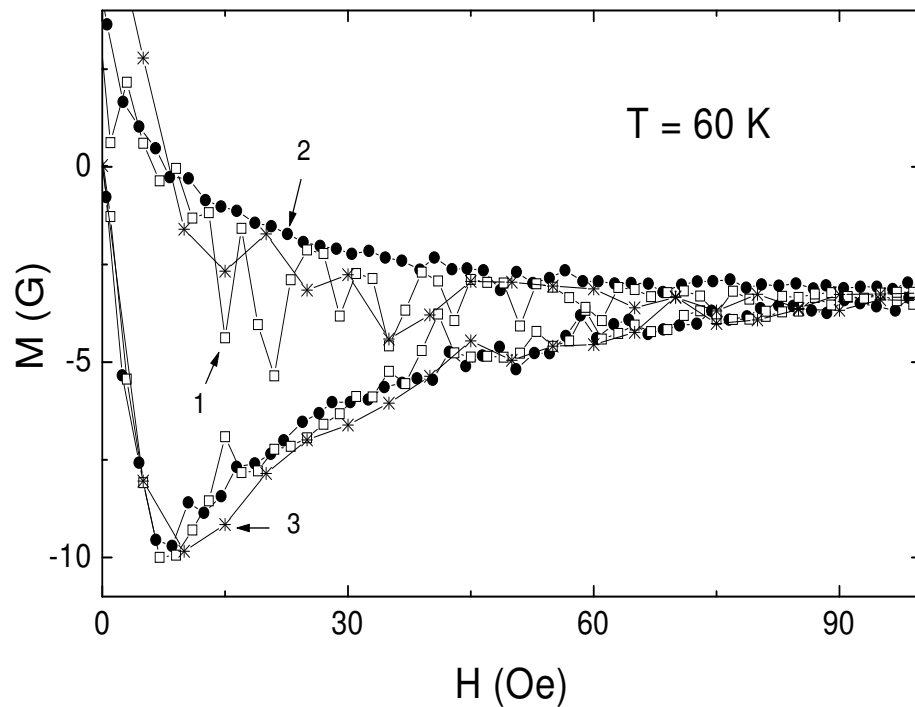


Figura 3.12: Dependência dos saltos na magnetização com o processo de medida obtido para o cristal S1. (1,2): $\Delta H = 2 Oe$, (3): $\Delta H = 5 Oe$. O tempo de medida do “loop” 1 é 4 vezes maior que o “loop” 2.

Como já discutido, há dois mecanismos que geram histerese na magnetização: as impurezas que levam ao aprisionamento dos vórtices e as barreiras superficiais, que incluem a barreira superficial de Bean-Livingston e a barreira geométrica [82]. A histerese na magnetização é o resultado destes dois efeitos. A histerese devido às barreiras geométricas dependem da razão entre espessura e diâmetro da amostra, enquanto a parte relativa aos centros de aprisionamento depende do diâmetro, conforme o modelo de Bean discutido anteriormente.

Wang et al. argumentam que as diferenças entre medidas em diferentes amostras com a razão entre a espessura e o diâmetro aproximadamente constante é resultante de efeitos de aprisionamento volumétrico de vórtices, também de acordo com as nossas conclusões. As figuras 3.13(a) e (b) mostram os resultados para duas amostras com a razão espessura por diâmetro semelhantes medidas em $T = 25 K$ e $T = 30 K$. Observa-se a ausência de segundo pico na amostra com diâmetro de $30 \mu m$ para as duas temperaturas mostradas, enquanto que para a amostra com diâmetro de $70 \mu m$ o SMP é bastante reduzido para $T = 30 K$.

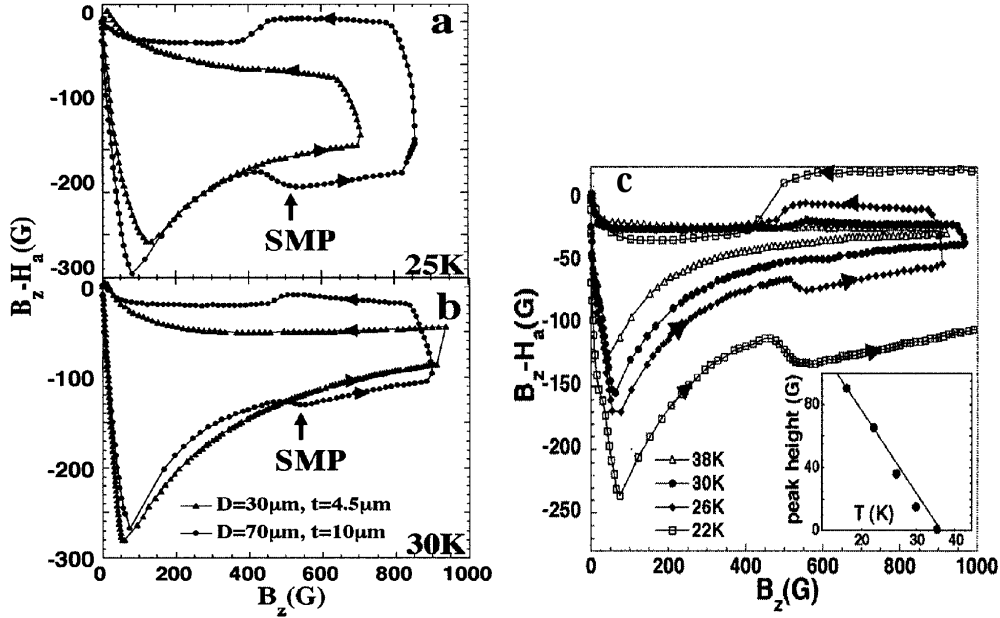


Figura 3.13: Resultado do trabalho de Wang et al. [89] mostrando o desaparecimento do SMP com a diminuição do tamanho da amostra. Magnetização local em função do campo aplicado em $T=25K$ (a) e $T=30K$ (b) para amostras no formato de discos com razão espessura/diâmetro $\approx 0,15$. (c) mostra a variação com a temperatura do SMP para uma amostra quadrada com lado de 90 μm e 10 μm de espessura.

Concluiu-se que o tamanho crítico para o desaparecimento do SMP está entre 70 e 30 μm para estas temperaturas.

A figura 3.13(c) apresenta “loops” de magnetização local para uma amostra quadrada de lado 90 μm e espessura 10 μm para várias temperaturas. Observa-se o desaparecimento do segundo pico com o aumento da temperatura. Concluiu-se que para esta amostra o segundo pico desaparece em $T = 35 K$, portanto $R_{cr}(T = 35 K) = 90 \mu m$. Este procedimento foi repetido para várias amostras com diferentes tamanhos entre 30 e 180 μm determinando assim $T_{cr}(R)$ ou, equivalentemente, $R_{cr}(T)$, veja figura 3.14.

Eles propuseram um modelo para o desaparecimento do SMP acima de T_{cr} baseados na teoria de aprisionamento coletivo de vórtices de Larkin-Ovchinnikov. No modelo de aprisionamento coletivo de Larkin-Ovchinnikov, a rede de vórtices é tratada como correlacionada somente dentro de um volume definido por R_c , o comprimento de correlação no plano ab , e L_c , o comprimento de correlação ao longo do eixo- c . Quando $L_c > d$, d sendo a espessura da

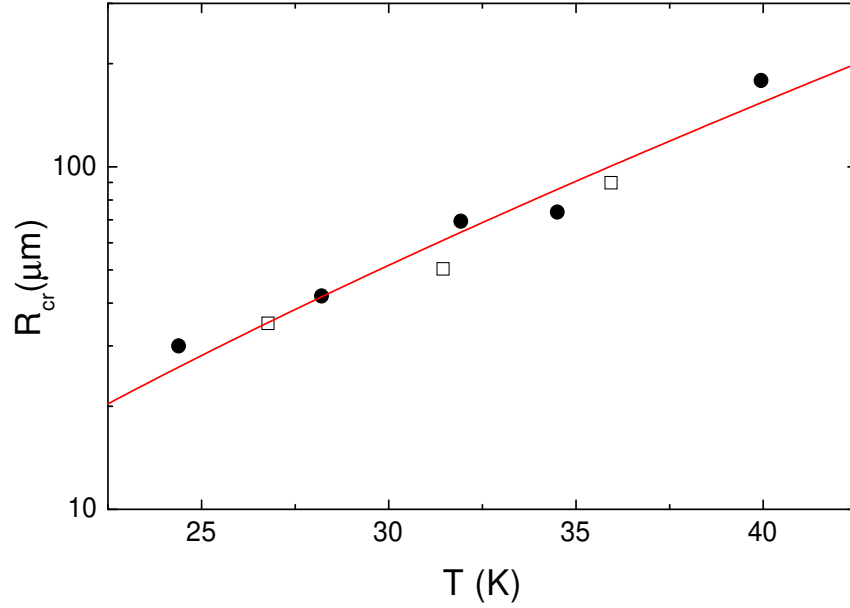


Figura 3.14: Tamanho crítico R_{cr} em função da temperatura para as amostras do trabalho de Wang et al. [89]. A linha sólida é um ajuste da equação 3.1 aos pontos experimentais com $C = 128T^3 \text{ ergs/cm}^3 \text{ K}$ e $j_c(T) = 10^7 \exp(-T/T_0) A/\text{cm}^2$ [12] com $T_0 = 15 \text{ K}$. Da referência [90].

amostra ou dos planos supercondutores, a rede de vórtices pode ser considerada como quase-2D, e neste caso $R_c \equiv R_c^{2D}$. Dentro deste volume pode-se dizer que a força de aprisionamento é relativamente fraca e fora do volume a força de aprisionamento é muito maior.

Segundo eles, o SMP significa um aumento no aprisionamento dos vórtices quando o comprimento de correlação 2D no plano R_c^{2D} se torna menor que a dimensão lateral da amostra. Com amostras menores que R_c^{2D} não haveria mudança no regime de aprisionamento dos vórtices e portanto, ausência de SMP.

Eles argumentam que o SMP desaparece quando o tamanho crítico da amostra se torna menor que o comprimento de correlação dos vórtices no plano, $R_c^{2D}(T) \sim j_c(T)^{-1/2}$. Porém, essa conclusão não explica as observações experimentais para baixas temperaturas ($T < 15 - 20 \text{ K}$), onde amostras com tamanho da ordem de mm não apresentam segundo pico, ou seja, o tamanho da amostra é muito maior que R_c^{2D} (veja figura 3.2).

Por outro lado, o desaparecimento do SMP pode ser muito bem explicado pela teoria da instabilidade termo-magnética. A figura 3.14 mostra os pontos experimentais do trabalho de Wang et al. determinados pela temperatura onde o SMP desaparece usando o procedimento

mostrado na figura 3.13(c). Nesta figura os quadrados representam amostras retangulares e os círculos representam amostras no formato de discos, cada amostra com um tamanho diferente. A linha contínua representa o ajuste pela expressão (3.1) da teoria da instabilidade termo-magnética. Como se observa há um ajuste muito bom.

Gurevich e Vinokur [91] sugeriram que o SMP poderia resultar de um fluxo de corrente não uniforme para $H < H_{SMP}(T)$ devido a inomogeneidades no material. A figura 3.15 mostra o resultado deste trabalho, onde está plotado a densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado. Observa-se que com a diminuição do tamanho da amostra há o desaparecimento do SMP, ou seja, este modelo também prediz o desaparecimento do SMP com a diminuição do tamanho da amostra numa escala $w_c = r\sqrt{n}$, onde r é o tamanho da inomogeneidade e n é o expoente da relação $E = E_c(J/J_c)^n$ que foi utilizada na aplicação do modelo por eles proposto. Para amostras com tamanho $w > w_c$ observa-se o SMP enquanto que para amostras com tamanho $w < w_c$ há o desaparecimento do SMP.

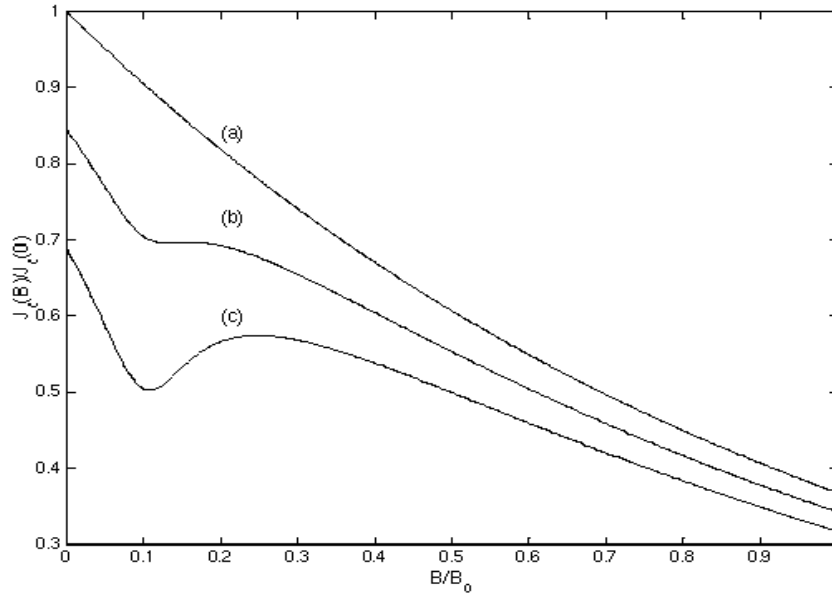


Figura 3.15: Densidade de corrente crítica em função do campo magnético aplicado para diferentes tamanhos de amostras. (a) $w < r\sqrt{n}$, (c) $w > r\sqrt{n}$. Ver Gurevich and Vinokur [91].

Entretanto o expoente n diminui com o aumento da temperatura [4], o que leva a uma diminuição do tamanho crítico da amostra w_c com o aumento da temperatura, comportamento

este em desacordo com a observação experimental do aumento de $w_c \equiv r_c$ com a temperatura, observada na figura 3.14. Portanto não podemos usar este modelo para justificar o desaparecimento do segundo pico na magnetização.

A seguir mostraremos resultados relativos a medidas de transporte em cristais de Bi2212 que sugerem a existência de uma rede de vórtices acima da linha $H_{FOT}(T)$, a fronteira da transição de primeira ordem.

3.2 Rede de Vórtices em Bi2212 acima da linha “FOT”

Normalmente, a medida de resistência é feita medindo-se a tensão em contatos posicionados dentro do caminho da corrente elétrica aplicada. A tensão em supercondutores do tipo II no estado misto é gerada pelo movimento dos vórtices devido à força de Lorentz que age sobre eles. No entanto, se medirmos a tensão em contatos localizados fora do caminho da corrente, o sinal medido será devido ao movimento dos vórtices localizados nesta região interagindo com os vórtices que estão na região em que a corrente é aplicada. Com esta geometria podemos sondar a correlação espacial entre vórtices.

Em compostos de Bi2212 a resistência planar não local, o indicativo da rigidez ao cisalhamento finito da rede de vórtices, foi medida acima da transição de primeira ordem por Eltsev et al. [92] usando a geometria de disco de Corbino. Entretanto eles concluíram que a forte correlação transversal vórtice-vórtice acontece na fase líquida de vórtices [92].

Apresentaremos a seguir os resultados obtidos das medidas de transporte (resistência no plano, local e não local) num cristal de Bi2212 com campo magnético aplicado até 9T. Estes resultados demonstram que a rede de vórtices realmente existe sobre uma larga porção do diagrama de fases H-T e que também funde bem acima da fronteira da transição de primeira ordem (FOT).

Em um cristal de tamanho $1,94 \times 0,28 \times 0,03 \text{ mm}^3$ foram feitos 6 contatos elétricos equidistantes ($s \approx 180 \text{ nm}$) através da deposição de prata por “sputtering” ao longo de toda sua largura com os fios de ouro sendo fixados no cristal com prata epóxi, como descrito no capítulo 2. O “inset” da figura 3.16 mostra a geometria dos contatos. Nestes experimentos a corrente dc foi aplicada nos eletrodos 1 e 4 (I_{14}) e a voltagem foi medida simultaneamente na região local (eletrodos 2 e 3, V_{23}) e na região não local (eletrodos 5 e 6, V_{56}). A temperatura crítica a campo zero ($T_{c0} = 87,7 \text{ K}$) foi determinada do máximo da derivada dR/dT e a

largura de transição ($\Delta T_c \approx 3 K$) através do critério $90\%T_c - 10\%T_c$.

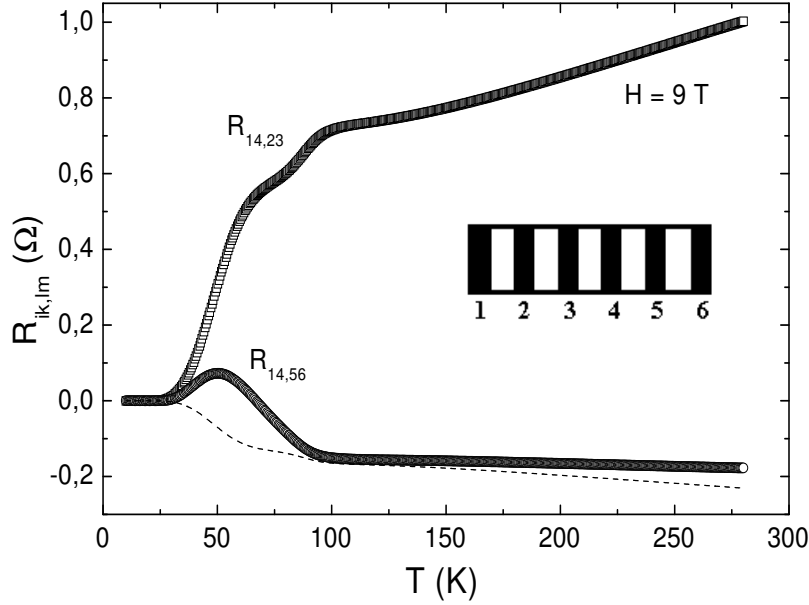


Figura 3.16: Dependência da resistência “primária” ($R_{14,23} = V_{14,23}/I_{14}$) e “secundária” ($R_{14,56} = V_{14,56}/I_{14}$) em função da temperatura com campo magnético $H = 9 T$ e corrente $I_{14} = 1 mA$. Linha tracejada indica contribuição parasítica em $R_{14,56}$ resultante da distribuição de corrente estimada pela equação 3.3. “Inset” mostra a geometria dos contatos da amostra.

As medidas de resistência apresentadas aqui foram feitas usando-se o PPMS com o campo magnético aplicado ao longo do eixo-c cristalográfico.

A figura 3.16 mostra a dependência da temperatura para ambas resistências: primária $R_{14,23} = V_{14,23}/I_{14}$ e secundária $R_{14,56} = V_{14,56}/I_{14}$ para um campo magnético aplicado de $9 T$ e $I_{14} = 1 mA$. Como pode ser visto nesta figura, $R_{14,56}$ é negativa no estado normal e apresenta um “crossover” para valores positivos abaixo de uma certa temperatura dentro do estado supercondutor.

A resistência negativa $R_{14,56}$ que se desenvolve com o aumento da temperatura esta relacionada com a distribuição de corrente através da espessura do cristal, ou seja, ela tem origem local. Usando a equação de van der Pauw [71]

$$R_{14,56} = -(wR_{14,23}/\pi s) \ln[(a+b)(b+c)/b(a+b+c)], \quad (3.3)$$

onde a , b e c são as distâncias entre os eletrodos 1 e 4, 4 e 5, 5 e 6 respectivamente, w é a largura da amostra ($0,28 \text{ mm}$) e s é a distância entre os contatos 2 e 3 ($180 \text{ }\mu\text{m}$), nós obtemos $R_{14,56}(T)$, representada na figura 3.16 por uma linha tracejada. O acordo entre a resistência $R_{14,56}(T)$ calculada e medida é bem razoável se levarmos em conta a alta anisotropia cristalográfica do Bi2212, a largura finita dos eletrodos e a provável distorção do potencial elétrico ao longo das linhas de contato.

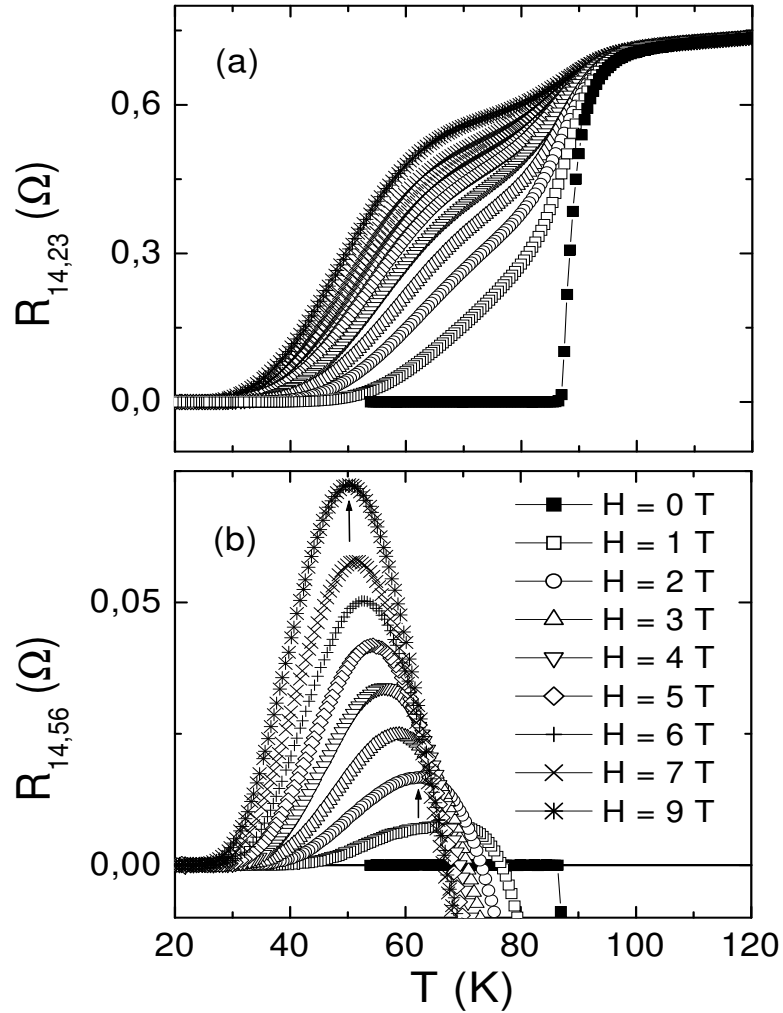


Figura 3.17: Resistências “primária” $R_{14,23}(T)$ (a) e “secundária” $R_{14,56}(T)$ (b) medidas para vários campos magnéticos e com $I_{14} = 1 \text{ mA}$. As setas indicam a temperatura $T_{max}(H)$ onde ocorre o pico em $R_{14,56}(T, H)$. Os símbolos em (a) e (b) correspondem aos mesmos campos.

Na figura 3.17(a) e 3.17(b) temos $R_{14,23}(T, H)$ e $R_{14,56}(T, H)$, respectivamente, medidas para vários campos magnéticos. Podemos observar da figura 3.17(b) que a resistência secundária positiva $R_{14,56}(T, H)$ surge e aumenta com a aplicação de campo magnético. Para $H > 2\text{T}$, a resistência $R_{14,56}(T, H)$ apresenta um pico bem definido em uma temperatura máxima $T_{max}(H)$ que diminui com o aumento do campo, ou seja, o pico é deslocado para baixas temperaturas.

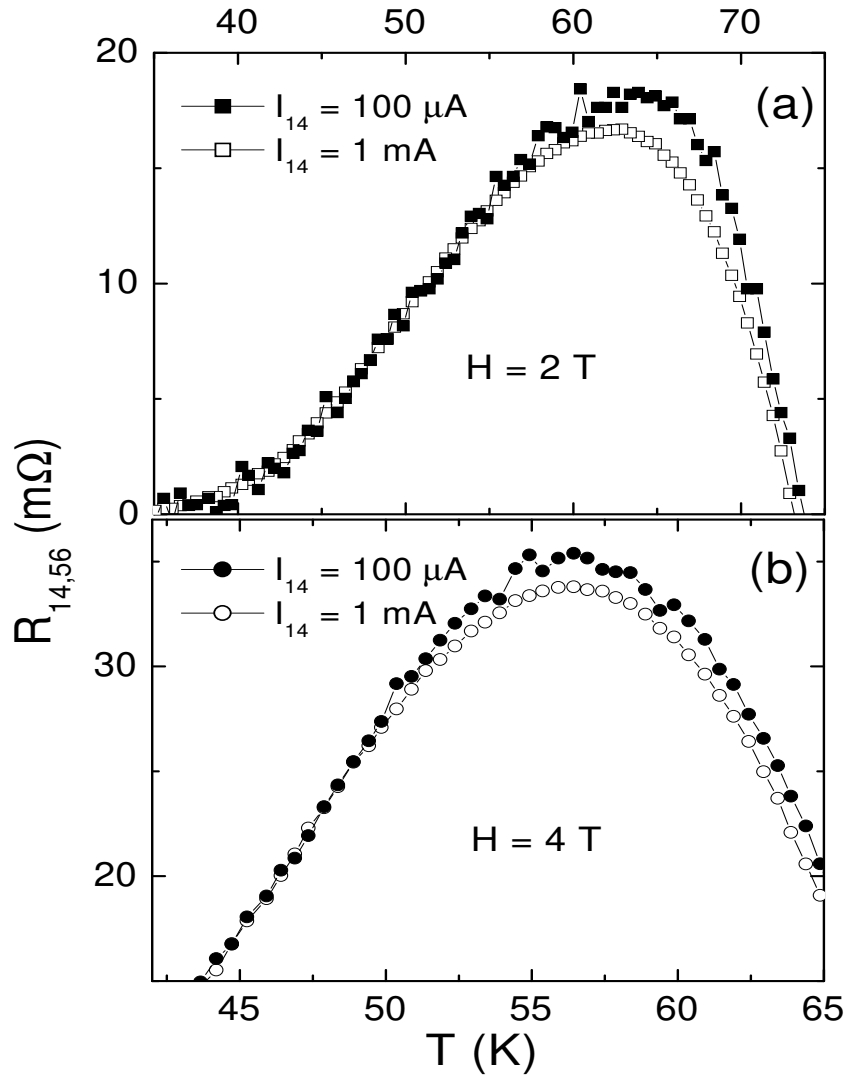


Figura 3.18: Resistência “secundária” $R_{14,56}(T)$ medida com $I_{14} = 100\ \mu\text{A}$ (símbolo sólido) e $I_{14} = 1\text{ mA}$ (símbolo aberto) para $H = 2\text{ T}$ (a) e $H = 4\text{ T}$ (b).

Os resultados que apresentaremos nas figuras 3.18, 3.19, 3.20, 3.21 e 3.22 demonstram que a contribuição positiva para $R_{14,56}(T, H)$ origina-se da resistência não local, isto é, ela não está relacionada com os efeitos da distribuição de corrente.

A figura 3.18(a) mostra $R_{14,56}(T)$ medida com $I_{14} = 100\mu A$ (símbolo cheio) e $I_{14} = 1mA$ (símbolo vazio) para $H=2T$ e a figura 3.18(b) mostra a mesma medida para $H=4T$. Na figura 3.19 nós plotamos $\Delta R_{14,56} = R_{14,56}(I_{14} = 100\mu A) - R_{14,56}(I_{14} = 1mA)$ e $\Delta R_{14,23} = R_{14,23}(I_{14} = 100\mu A) - R_{14,23}(I_{14} = 1mA)$ em função da temperatura para o campo $H = 2T$.

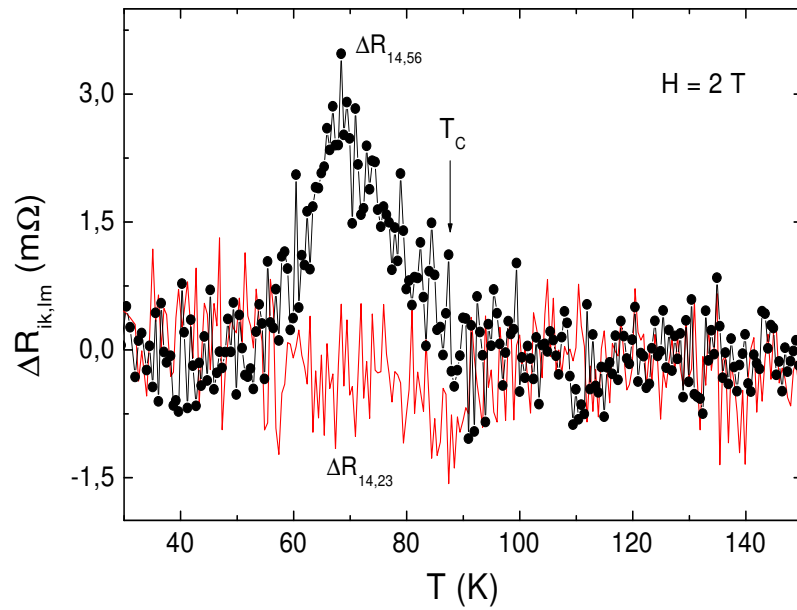


Figura 3.19: Diferença $\Delta R_{14,56} = R_{14,56}(I_{14} = 100\mu A) - R_{14,56}(I_{14} = 1mA)$ e $\Delta R_{14,23} = R_{14,23}(I_{14} = 100\mu A) - R_{14,23}(I_{14} = 1mA)$ contra temperatura para $H = 2T$.

Das figuras 3.18 e 3.19 observa-se que:

(1) Quando a temperatura aproxima-se de $T_{max}(H)$ vindo de baixas temperaturas, $R_{14,56}$ torna-se maior para a menor corrente aplicada e o pico $\Delta R_{14,56}(T, H)$ ocorre a uma temperatura próxima de T_{max} (note que $\Delta R_{14,23} \approx 0$, ou seja, $R_{14,23}$ é independente da corrente aplicada (figura 3.19)),

(2) A dependência de $R_{14,56}$ com a corrente persiste até aproximadamente T_c , ou seja, ela está essencialmente relacionada ao estado supercondutor.

Observamos também que o efeito da corrente diminui com o campo, de forma que ele

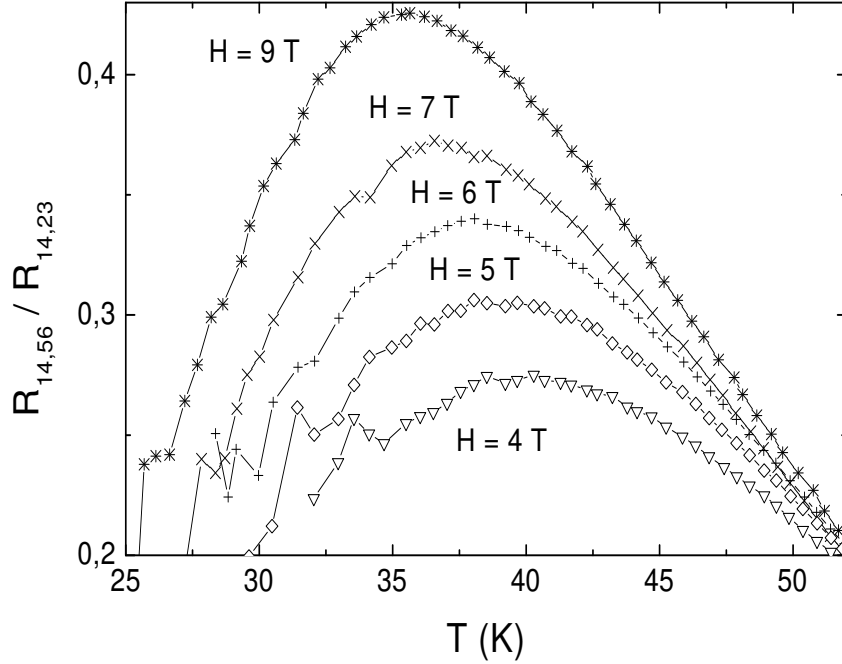


Figura 3.20: Razão da resistência “secundária” pela “primária” $R_{14,56}/R_{14,23}$ em função da temperatura para alguns campos magnéticos medidos com $I_{14} = 1\text{ mA}$.

se torna desprezível para $H \geq 6\text{ T}$. Para $T < T_{max}(H)$ a razão $R_{14,56}/R_{14,23}$ aumenta com a temperatura como pode ser visto na figura 3.20 para vários campos estudados. Todos estes fatos experimentais dificilmente podem ser entendidos dentro de uma aproximação local.

Certamente, o grande aumento da resistência não local com a temperatura sobre um largo intervalo de temperatura não pode ser devido as correlações vórtice-vórtice no estado líquido de vórtices. Por outro lado, a ocorrência da resistência não local positiva pode surgir de um movimento transversal correlacionado da rede de vórtices [67]. A correlação vórtice-vórtice planar acontecendo numa escala milimétrica também foi detectada nos experimentos usando a geometria de disco de Corbino [92, 93].

A razão $R_{14,56}(T)/R_{14,23}(T) < 1$, veja fig. 3.20, pode ser resultado do efeito do aprisionamento dos vórtices destruindo a ordem posicional de longo alcance na rede de vórtices e portanto levando a diminuição da resistência não local a grandes distâncias. Com o aumento da temperatura, a resistência $R_{14,56}(T)$ e a razão $R_{14,56}(T)/R_{14,23}(T)$ também aumentam devido a diminuição da eficiência do aprisionamento dos vórtices. Aproximando-se de $T_{max}(H)$,

a razão $R_{14,56}(T)/R_{14,23}(T)$ começa a diminuir.

Por outro lado, a ocorrência do máximo em $\Delta R_{14,56}(T)$ em $T \approx T_{max}(H)$, como mostrado na figura 3.19, descarta uma explicação trivial da redução de $R_{14,56}(T)$ acima de $T_{max}(H)$. Uma origem não trivial deste máximo em $R_{14,56}(T)$ é indicado também pela observação de uma divisão deste máximo em dois picos que ocorre para campos magnéticos abaixo de 1T, veja fig. 3.21. A ocorrência destes dois picos em $R_{14,56}(T)$ para campos baixos pode ser entendido assumindo o aumento reentrante da eficiência do aprisionamento dos vórtices no intervalo $T_{p1}(H) < T < T_{p2}(H)$, o qual faz lembrar o fenômeno do “Peak Effect” (PE) [40,94]. Em acordo com a ocorrência do PE, o aumento da resistência primária $R_{14,23}(T)$ diminui em $T \geq T_1 \approx T_{p1}$, como ilustrado na figura 3.23 para $H = 0,3 T$, onde $dR_{14,23}(T, H)/dT$ versus T é plotado. Um fenômeno similar ocorre na temperatura $T_1(H)$ um pouco abaixo de $T_{max}(H)$ no limite de alto campo, veja figura 3.23 (o segundo pico da derivada $dR_{14,23}(T, H)/dT$ ocorrendo a temperatura $T_2(H)$ é relacionado a transição supercondutor-metal normal).

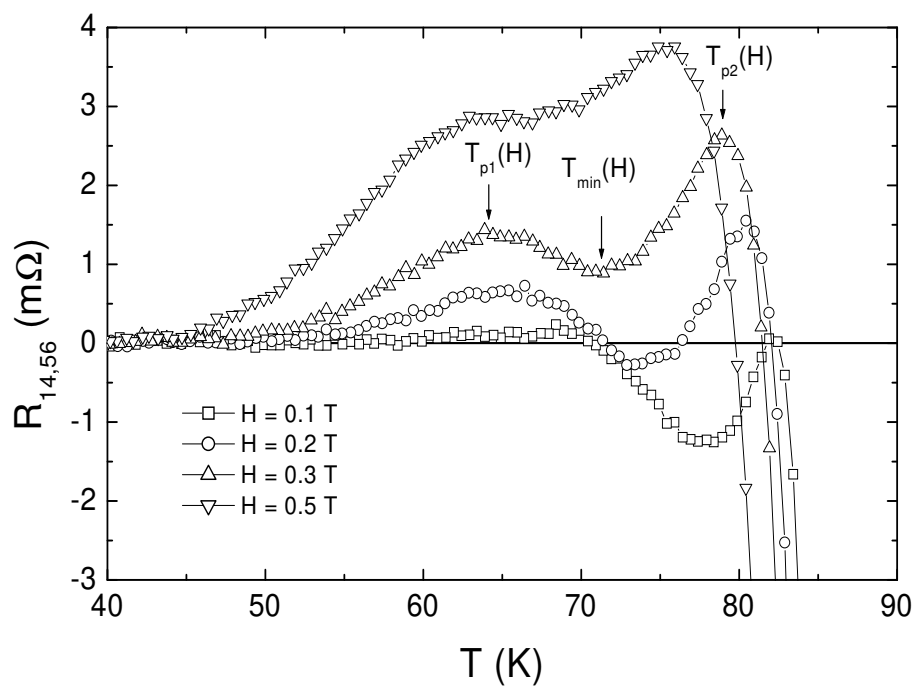


Figura 3.21: Resistência “secundária” $R_{14,56}(T)$ medida para vários campos baixos com $I_{14} = 1mA$.

No limite de baixo campo, observamos também a supressão de $R_{14,56}(T, H)$ induzida pela corrente para $T > T_{min}(H)$, veja a figura 3.22 para $H = 0,1 T$. Isto implica um estado de

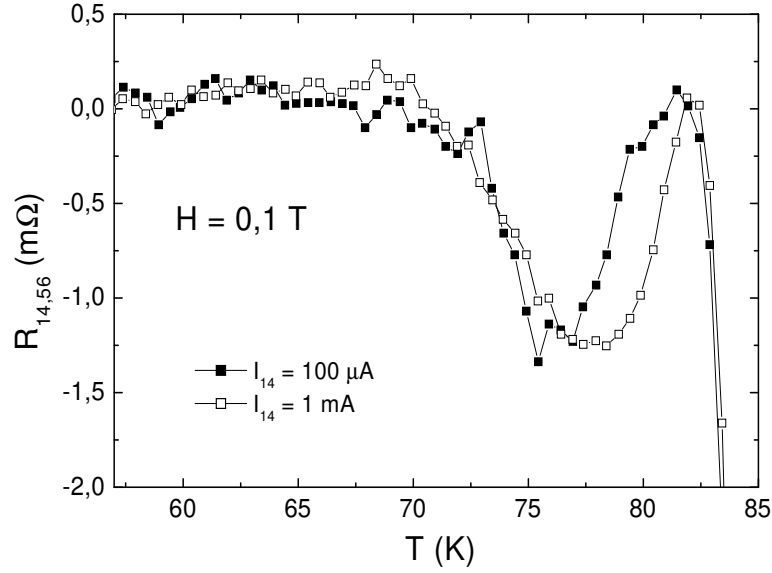


Figura 3.22: Resistência “secundária” $R_{14,56}(T)$ medida para $H=0.1T$ e duas correntes diferentes.

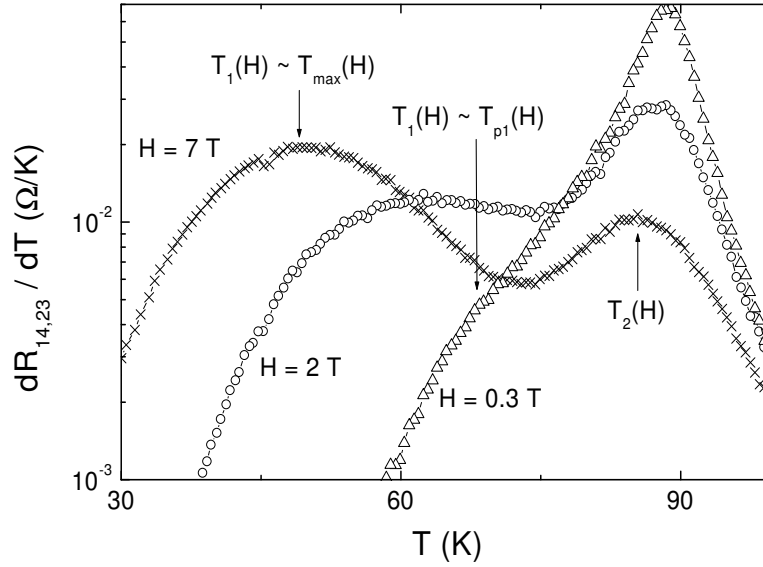


Figura 3.23: Derivada $dR_{14,23}/dT$ em função da temperatura demonstrando uma diminuição no aumento da resistência “primária” para $T \geq T_1(H)$ que está situada logo abaixo de $T_{max}(H)$ para altos campos ($H \geq 2T$) e coincide com $T_{p2}(H)$ para baixos campos ($H \leq 0.5T$). Na temperatura $T_2(H)$ ocorre a transição para o estado normal.

vórtices semelhante ocorrendo acima de $T_{max}(H)$ (altos campos) e acima de $T_{min}(H)$ (baixos campos).

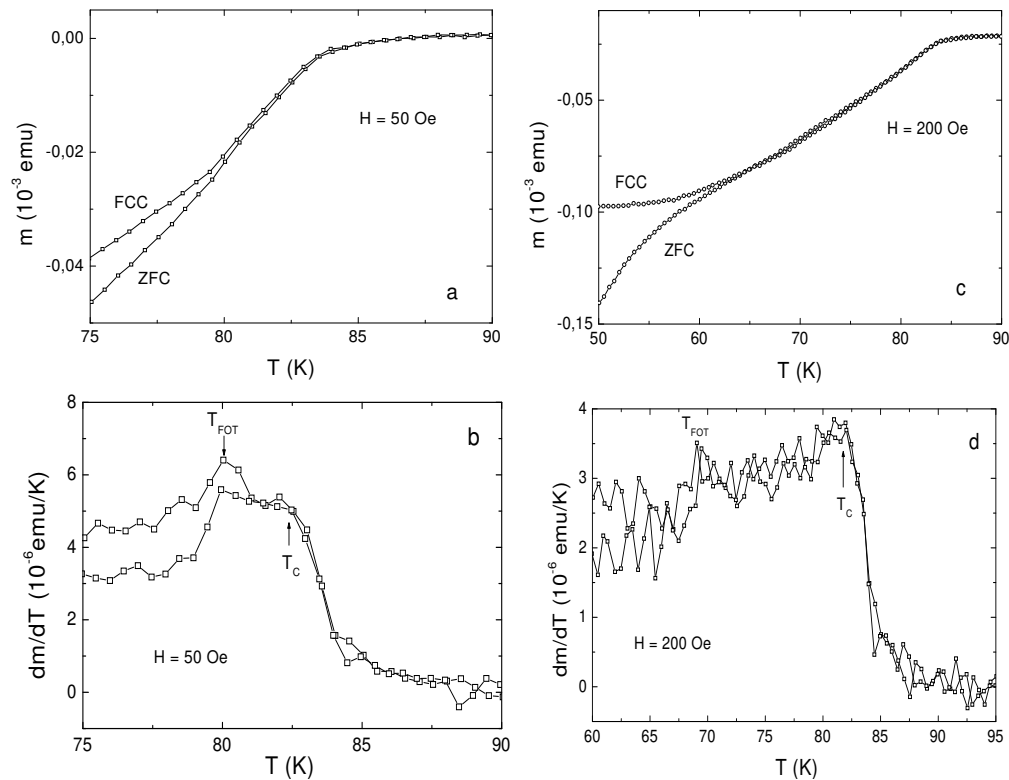


Figura 3.24: Momento magnético m em função da temperatura T para $H = 50$ Oe (a) e $H = 200$ Oe (c) e suas respectivas derivadas dm/dT em função da temperatura (b) e (d) para os respectivos campos.

Medidas de magnetização em função da temperatura para campos baixos mostraram anomalias características da transição de primeira ordem abaixo da temperatura de transição supercondutora. A figura 3.24 mostra medidas de momento magnético para dois campos, $H = 50$ Oe e $H = 200$ Oe. As curvas indicadas ZFC (“Zero Field Cooled”) foram feitas aquecendo-se a amostra depois de resfriá-la em campo zero e as curvas indicadas FCC (“Field Cooled on Cooling”) foram medidas resfriando-se a amostra em campo aplicado. Diferentemente das medidas de magnetização local onde a transição de primeira ordem se mostra na forma de um salto bem visível, em medidas de magnetização global a assinatura desta transição se mostra de forma mais sutil, já que a magnetização global é uma média sobre toda a amostra. Para melhor observá-la, plotamos nas figuras 3.24(b) e (d) as derivadas

dm/dT em função de T próximo a T_c para $H = 50 Oe$ e $H = 200 Oe$, respectivamente. Pelos gráficos das derivadas fica mais fácil determinarmos a temperatura em que ocorre a transição de primeira ordem.

Os resultados acima descritos são resumidos no diagrama H-T (Campo Magnético- Temperatura) da figura 3.25 que discutiremos agora.

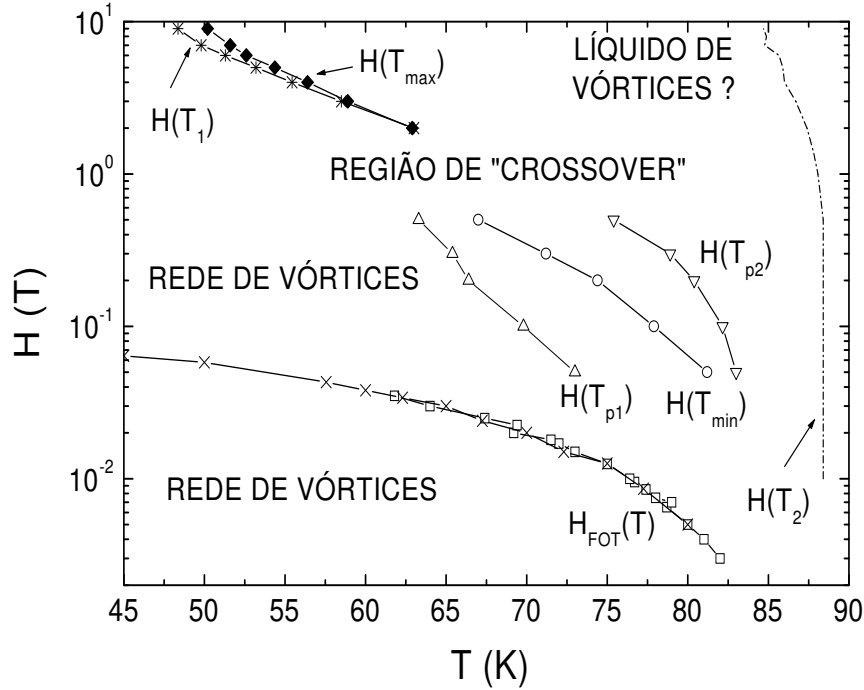


Figura 3.25: Diagrama H-T (campo magnético - temperatura) construído com base nos resultados experimentais (ver texto). A transição de primeira ordem $H_{FOT}(T)$ medida neste trabalho ($\square$) e na referência [95] ($\times$) é mostrada.

A fronteira da transição de primeira ordem obtida através das medidas de magnetização é plotada na figura 3.25 junto com os dados da referência [95] medidos num cristal similar de Bi2212. É evidente da figura 3.25 que em $T \sim T_c/2$ o $H_{FOT}(T)$ é aproximadamente 100 vezes menor que o $H_{max}(T)$, implicando que a correlação vórtice-vórtice transversal de longo alcance ocorre bem acima da transição de primeira ordem.

Este fato tem uma explicação natural assumindo que a transição de desancoramento está associada com a transição de primeira ordem. Para $H < H_{FOT}(T) \sim \Phi_0/\lambda_{ab}^2$ o módulo de cisalhamento da rede de vórtice diminui exponencialmente com o campo magnético,

$c_{66} \approx (\varepsilon_0/\lambda_{ab}^2)(H\lambda_{ab}^2/\Phi_0)^{1/4} \exp[-(\Phi_0/H\lambda_{ab}^2)^{1/2}]$, enquanto que para $H > H_{FOT}(T)$ $c_{66} \approx (\varepsilon_0/4\Phi_0)H$, ou seja, c_{66} aumenta linearmente com o campo [4, 96], onde $\varepsilon_0 = (\Phi_0/4\pi\lambda_{ab})^2$.

Em outras palavras, para $H < H_{FOT}(T)$ a interação entre vórtices e desordem é maior que a interação vórtice-vórtice resultando num aprisionamento forte dos vórtices no regime de baixo campo (note que para $H \ll H_{FOT}(T)$ líquido de vórtice aprisionado é esperado [6]). Com o aumento do campo magnético, $c_{66}(H, T)$ e, conseqüentemente, a interação entre vórtices, aumenta e a rede de vórtices desacopla-se da rede atômica em $H_{FOT}(T)$.

Usualmente, a transição de desancoramento em supercondutores de alta temperatura crítica é bastante abrupta [95]. Nós enfatizamos aqui que além da explicação teórica da transição de desancoramento abrupta [97, 98], uma evidência experimental da transição fluante induzida por campo magnético foi recentemente reportada na literatura [99]. Para $H > H_{FOT}(T)$ e baixas temperaturas, $c_{66}(H, T)$ é fracamente dependente da temperatura. Neste regime, a rede de vórtices torna-se mais ordenada com o aumento da temperatura devido a supressão da eficiência do aprisionamento de vórtices pelas flutuações térmicas, resultando no aumento da resistência não local com a temperatura.

Esta observação está em excelente acordo com a difração de segunda ordem nos experimentos de espalhamento de nêutrons de baixo ângulo [55], que revela a formação de uma rede de vórtices mais ordenada com o aumento da temperatura à temperaturas e campos magnéticos intermediários. Entretanto, o módulo de cisalhamento $c_{66}(H, T)$ rapidamente diminui aproximando-se tanto do campo crítico superior $H_{c2}(T)$ como da fronteira da transição de fase de fusão $H_m(T) < H_{c2}(T)$. Em ambos os casos, a rede de vórtices pode adaptar-se melhor ao potencial de aprisionamento [40, 94] levando a uma redução do sinal não local em $T > T_{p1}(H)$, veja fig. 3.21.

Há dois cenários plausíveis que podem ser considerados para a ocorrência do mínimo em $R_{14,56}(T, H)$. A primeira possibilidade é que a flutuação térmica diminui efetivamente o potencial de aprisionamento rearranjando a rede de vórtices que leva ao aumento reentrante de $R_{14,56}(T, H)$ com o aumento da temperatura. Em $T = T_{p2}(H)$ a rede de vórtices se funde ou o parâmetro de ordem supercondutor diminui devido a grande flutuação em sua amplitude: ambos os efeitos anularão a resistência não local.

Por outro lado, o mínimo em $R_{14,56}(T)$ que ocorre a temperaturas dependentes do campo $T_{min}(H)$, veja figura 3.21, pode coincidir com a temperatura de transição de fusão $T_m(H)$ na presença de desordem [100–102]. Desta forma, num estreito intervalo de temperatura acima de $T_m(H)$, a viscosidade devido a uma energia de cruzamento finita $U_\times(H, T)$ do

líquido de vórtices emaranhados [103, 104] pode levar ao retorno da resistência não local. Com o aumento da temperatura, $U_{\times}(H, T)$ diminui [104]. Assim a resistência não local será suprimida junto com o estado de vórtices emaranhados na temperatura de desacoplamento $T_D(H) = T_{p2}(H) > T_m(H)$ acima da qual as flutuações dos vórtices tem um caráter bidimensional (2D). Este segundo cenário concorda com a supressão da resistência $R_{14,56}(H, T)$ induzida pela corrente para $T > T_{min}(H)$ devido ao corte dos vórtices induzido pela corrente e posterior reconexão [105].

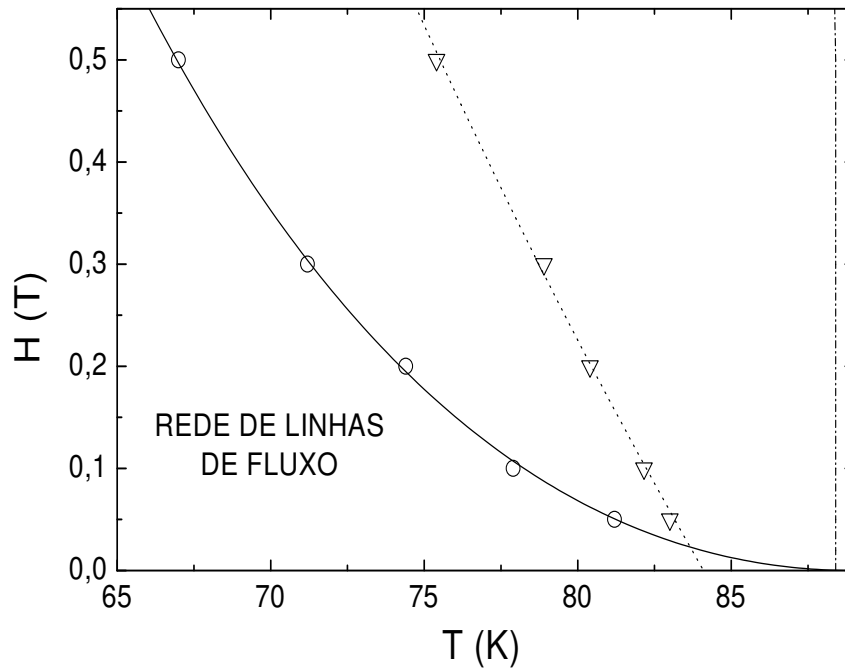


Figura 3.26: Porção de baixo campo ($H < H_{3D-2D}$) do diagrama H-T. (◦)- $H(T_{min})$; a linha sólida corresponde a equação 3.5 que descreve a fusão da rede de vórtices; $B = 1,5 T$, $T_{c0} = 89 K$. (▽)- $H(T_{p2})$; a linha tracejada corresponde a equação 3.6 que descreve a transição de desacoplamento 3D-2D no estado líquido de vórtices.

Há também uma impressionante correspondência entre os resultados experimentais e a parte de baixo campo do diagrama H-T proposto por Glazman e Koshelev [11] para supercondutores lamelares, veja figura 3.26. Na verdade, $H(T_{min})$ pode perfeitamente ser descrito pela linha de fusão do modelo teórico tridimensional (3D) [4, 11, 96]

$$H_m(T) \cong \Phi_0 \varepsilon_0^2 c_L^4 / (k_B T)^2 \Gamma^2, \quad (3.4)$$

onde $\Gamma = \lambda_c / \lambda_{ab}$ é o fator de anisotropia, λ_c é o comprimento de penetração fora do plano e $c_L = 0,1 - 0,4$ é o número de Lindemann. A equação 3.4 pode ser reescrita na forma:

$$H_m(T) = B(1 - t^2)^2 / t^2, \quad (3.5)$$

onde $t \equiv T_m / T_{c0}$, T_{c0} é a temperatura de transição na aproximação de campo médio e $B = \Phi_0^5 c_L^4 / 256 \pi^4 (k_B T_{c0})^2 \Gamma^2 \lambda_{ab}^4(0)$, conforme equação 1.18. O ajuste nos dá um valor de $B = 1,5 T$ (veja figura 3.26). Tomando um campo de “crossover” dimensional para nosso cristal $H_{3D-2D} \cong \Phi_0 / (\Gamma d)^2 \sim 0,5 T$ que separa a flutuação dos vórtices 3D ($H < H_{3D-2D}$) e quase-2D ($H > H_{3D-2D}$), nós obtemos $\Gamma \approx 40$ (aqui $d = 15 \text{ \AA}$ é a distância entre as camadas de CuO_2 acopladas fracamente). Assim, com $\lambda_{ab}(0) \sim 1000 \text{ \AA}$ obtém-se um valor razoável para o número de Lindemann $c_L = 0,23$.

Por outro lado, $H(T_{p2})$ pode ser melhor aproximado pela dependência (veja figura 3.26)

$$H_D(T) = C(T_c - T)/T, \quad (3.6)$$

que descreve a transição do desacoplamento do líquido de vórtices induzido termicamente na vizinhança de T_c [11]. Aqui $C = \alpha_D \Phi_0^3 / dk_B T_c (4\pi \lambda_c)^2$, e α_D é uma constante. Com o parâmetro de ajuste $C = 4,4 T$ e $\Gamma \sim 40$, temos $\alpha_D \sim 1$. O aparente cruzamento das linhas $H_m(T)$ e $H_D(T)$ vista na figura 3.26 origina-se da penetração dentro da região crítica de flutuações supercondutoras, veja referência [106].

Para $H > 0,5 T$, $H(T_{p1})$ e $H(T_{p2})$ começam a unir-se e para $H > 2 T$ uma simples transição na matéria de vórtices acontece em $T_{max}(H)$. Para $H \gg H_{3D-2D}$, a teoria [11] prevê que $H_m(T)$ aproxima-se da temperatura de fusão de uma camada supercondutora de CuO_2 $T_m^{2D} \cong (k_B 8\pi \sqrt{3})^{-1} d \varepsilon_0$ (conforme equação 1.21) de acordo com:

$$H_m(T) \cong H_{3D-2D} \exp\{b[T_m^{2D} / (T - T_m^{2D})]^\nu\}, \quad (3.7)$$

onde $b \sim 1$, e $\nu = 0,37$. A figura 3.27 demonstra um bom acordo entre a equação 3.7 e a fronteira experimental $H(T_{max})$ para $H > 4 T$. O ajuste nos dá $H_{3D-2D} = 0,74 T$ e $T_m^{2D} = 46,3 K$ ($\lambda_{ab} \approx 1200 \text{ \AA}$).

Tomando todos os dados juntos nós somos levados a concluir na ocorrência da fusão da

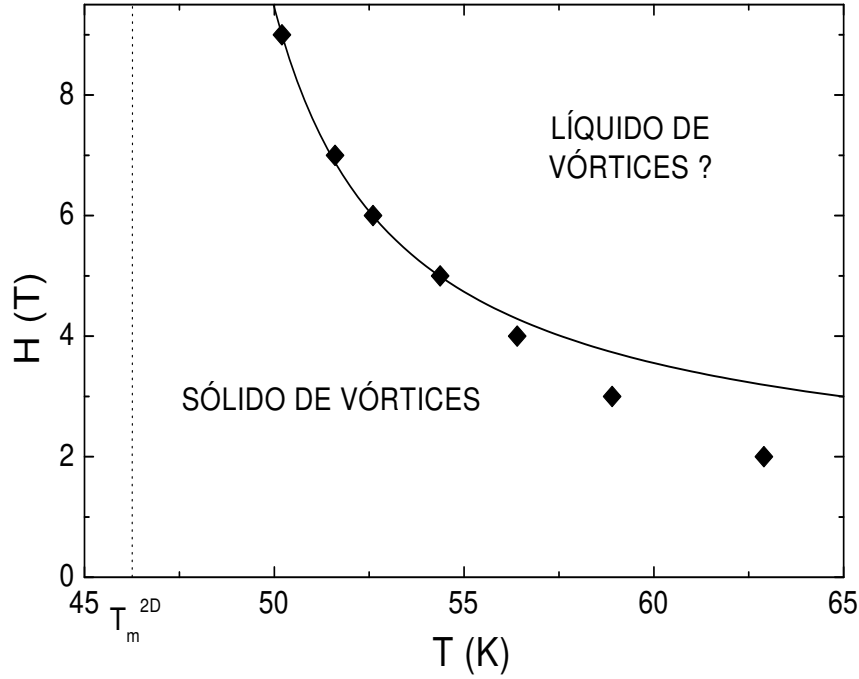


Figura 3.27: Porção de alto campo ($H > H_{3D-2D}$) do diagrama H-T; (♦) - $H(T_{max})$, a linha sólida foi obtida da equação 3.7 com $H_{3D-2D} = 0,74 T$ e $T_m^{2D} = 46,3 K$.

rede de vórtices e a transição de desacoplamento associados com as fronteiras de baixo campo $H(T_{min})$ e $H(T_{p2})$ respectivamente, como também na fusão do sólido quase bidimensional que acontece ao longo da fronteira $H(T_{max})$ para $H \gg H_{3D-2D}$. O efeito da corrente na resistência não local medida para ambos $T \geq T_{min}(H)$ e $T \geq T_{max}(H)$ e sua diminuição com o aumento do campo sugere a ocorrência do líquido de vórtices emaranhados para campos baixos e intermediários. Nós enfatizamos que os resultados obtidos indicam um aumento do aprisionamento no estado líquido de vórtices, estando de acordo com [11, 100–102].

Capítulo 4

Conclusão

Descobrimos que o segundo pico na magnetização (SMP) que ocorre em campos baixos e para $T < 40\text{ K}$ desaparece com a redução do tamanho do cristal. Este efeito pode ser explicado em termos da teoria da instabilidade termo-magnética. Mostramos que o SMP está intimamente relacionado com saltos na magnetização observados para temperaturas $T > 40\text{ K}$ e que também desaparecem com a diminuição do cristal. Sugerimos que o movimento plástico dos vórtices inicia estas instabilidades.

Através de medidas não local da resistividade observamos correlações vórtice-vórtice muito acima da fronteira de transição de primeira ordem $H_{FOT}(T)$, que hoje é interpretada como uma transição de fase sólido-líquido da rede de vórtices. Mostramos que esta fronteira pode ser entendida como uma transição de desancoramento da rede de vórtices. Para $H(T) < H_{FOT}(T)$ a interação entre vórtices e desordem é maior que a interação vórtice-vórtice, o que resulta num forte aprisionamento dos vórtices no regime de baixo campo. Para $H(T) > H_{FOT}(T)$ a rede de vórtices se torna mais ordenada com o aumento da temperatura e/ou campo magnético devido a diminuição da eficiência do aprisionamento de vórtices pelas flutuações térmicas e ao aumento do $c_{66}(H)$.

Parte II

Transição Tipo Supercondutor-Isolante Induzido por Campo Magnético em Grafite

Capítulo 5

Introdução

5.1 Supercondutividade em Materiais Baseados em Carbono

O carbono é um dos elementos mais abundantes na natureza. Além de todos os compostos orgânicos e da própria vida que é baseada nele, ele apresenta várias formas alotrópicas, sendo as mais simples o diamante e o grafite e as mais complexas os nanotubos e fulerenos (C_{60}).

O grafite (do grego *Γραφειν*, escrever) é composto de átomos de carbono ligados em forma de hexágonos num sistema planar de anéis. Os planos são mantidos ligados por forças de van der Waals. Estes planos são empilhados na sequência AB AB ao longo do eixo c cristalográfico como mostrado na figura 5.1. O grafite cristalino pode ser encontrado na natureza em minas de carvão ou chumbo ou pode ser sintetizado, neste caso dá-se o nome de grafite Kish. Como uma alternativa comum pode-se usar grafite pirolítico altamente orientado (HOPG - “Highly Oriented Pyrolytic Graphite”), que consiste numa rede policristalina de grãos de grafite orientados aleatoriamente ao redor do eixo c comum [107].

Os fulerenos, também chamados de C_{60} , são compostos de 60 átomos de carbono formando uma esfera com 20 hexágonos e 12 pentágonos. Esta forma alotrópica do carbono foi descoberto em 1985 por H. Kroto e R. Smalley [108] e levou a um grande aumento do número de pesquisas sobre este material. Nanotubos de carbono são estruturas relacionadas com os fulerenos e que consistem de cilindros de grafeno (um plano simples de grafite enrolado) e que podem ter as extremidades fechadas e várias camadas. Estas estruturas foram descobertas por S. Iijima [109] em 1991 enquanto estudava o material depositado no catodo

de fornos a arco durante a fabricação de C_{60} .

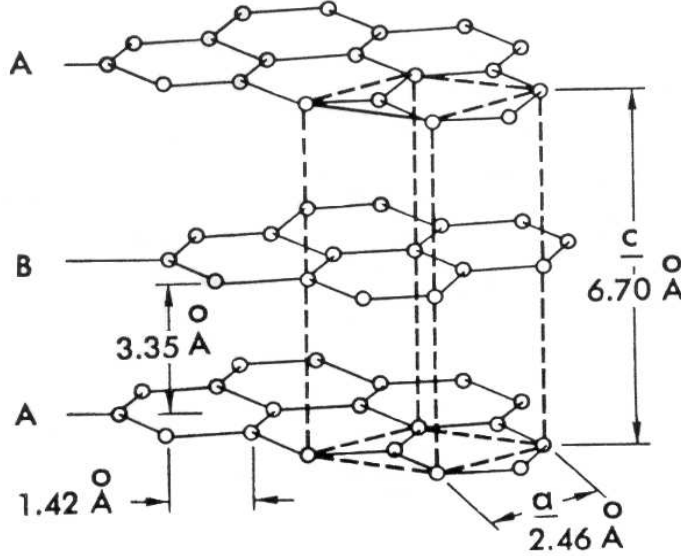


Figura 5.1: Estrutura cristalográfica do grafite com os parâmetros da rede cristalina $a = 2,46 \text{ \AA}$ e $c = 6,70 \text{ \AA}$. Da referência [110].

Supercondutividade em compostos de grafite intercalado com metais alcalinos pesados (K, Rb, Cs) é conhecida há muito tempo [111], com T_c entre 0,02K e 0,55K [112]. Mais recentemente intercalação com metais alcalinos leves (Li, Na) elevou T_c para valores entre 1,9K e 5K [113, 114], porém as amostras se mostraram instáveis, com a temperatura de transição sendo suprimida quando mantidas a temperaturas $T > 100K$ por alguns minutos. Nestes compostos o intercalante age como doador, ocorrendo uma transferência de carga do intercalante para a camada de grafite, resultando em banda s parcialmente completa no intercalante e banda π parcialmente completa do grafite, ou seja, ocorre uma dopagem do grafite com elétrons [115]. Neste modelo é assumido que a supercondutividade advém do acoplamento entre as bandas s e π .

Com a descoberta dos compostos C_{60} e nanotubos, dopagem com metais alcalinos elevou a temperatura de transição para $T_c = 40 K$ em Cs_3C_{60} sob pressão [116]. Vários outros compostos de C_{60} dopados com metais alcalinos apresentam $T_c < 40 K$ [117].

Recentemente, a descoberta de supercondutividade em MgB_2 com $T_c = 39 K$ [118] despertou novo interesse no estudo do grafite. Eles são similares estruturalmente, eletronicamen-

te e com relação a supercondutividade. A estrutura do B no MgB_2 é idêntica à estrutura do grafite, com B formando planos hexagonais intercalados por Mg formando uma rede triangular fazendo o papel de íon intercalante, como no grafite intercalado com sódio, por exemplo. Devido a esta descoberta, torna-se interessante estudar o comportamento do grafite para determinar por que MgB_2 é supercondutor abaixo de 39 K e o grafite intercalado somente abaixo de 5K.

Do mostrado acima, supercondutividade em materiais de carbono apresenta uma grande oportunidade de pesquisa. Recentemente, reportamos a ocorrência de “loops” supercondutores em grafite pirolítico altamente orientado [119] acima da temperatura ambiente dependente do tratamento térmico a que foi submetido a amostra. Um exemplo disto está mostrado na figura 5.2, onde plotamos a magnetização em função do campo magnético para uma amostra de grafite pirolítico altamente orientado. O “inset” mostra a medida original, com o “background” diamagnético típico do grafite, como veremos mais adiante; após a subtração deste “background” encontramos um “loop” típico de um material supercondutor [119]. Além disso, dopando grafite com enxofre, observamos claramente supercondutividade local abaixo de 35 K [120] (veja também Moehlecke et al. [121] e Hai-Peng et al. [122]).

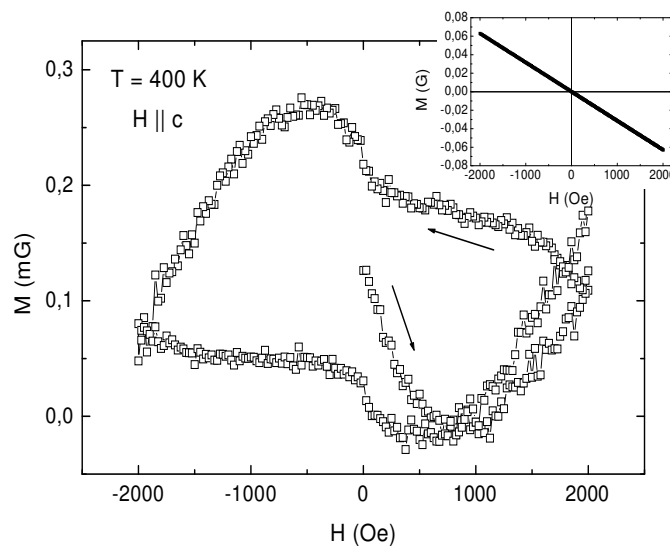


Figura 5.2: “Loop” de histerese magnética para uma amostra de grafite pirolítico altamente orientado (amostra HOPG-2, mais detalhes nos capítulos seguintes). O “inset” mostra a medida original, sem a subtração do “background” diamagnético.

Nesta tese, porém, estudaremos as propriedades de transporte do grafite puro na sua forma pirolítica altamente orientada e em cristais Kish. Em especial, o foco principal será dado à transição do tipo supercondutor-isolante por nós descoberta recentemente [123].

A seguir, faremos uma introdução do processo de produção do grafite conhecido como grafitação e das propriedades estruturais e eletrônicas. Após o que descreveremos as teorias das transições metal - isolante e supercondutor - isolante que podem explicar os resultados experimentais observados no grafite.

5.2 Grafitação e Propriedades Físicas do Grafite

Grafitação é o nome que se dá ao processo de formação do grafite a partir de compostos formados por carbono, como, por exemplo, metano, benzeno, poliacrilonitrila (PAN) e outros polímeros através de vários processos químicos e tratamentos térmicos.

Grafite pirolítico é um material sintético feito normalmente pelo processo de CVD (“Chemical Vapor Deposition”) de hidrocarbonetos gasosos. O processo de grafitação ocorre em duas etapas: a conversão do material orgânico original em carbono sólido e vários componentes voláteis através de pirólise e a conversão do carbono depositado em grafite. A pressão e a temperatura em que ocorre este processo é de fundamental importância para as propriedades físicas do produto final. A deposição a altas pressões (10 - 30 MPa) e em temperaturas até 3600°C permitem uma grande orientação na deposição. Grafite feito deste modo é altamente orientado, daí o nome grafite pirolítico altamente orientado.

As ligações químicas nos planos são covalentes com hibridização sp^2 e uma distância C-C de 1,42Å (veja figura 5.1). As ligações entre planos são fracas, do tipo Van der Waals. A condução elétrica se dá pelo orbital p_z que não toma parte nas ligações químicas. A sobreposição destes orbitais é maior nos planos que entre planos, o que causa uma grande anisotropia nas propriedades de transporte. Por exemplo, a temperatura ambiente, $\frac{\rho_c}{\rho_a} \sim 10^4$, ρ_c é a resistividade ao longo do eixo-c e ρ_a é a resistividade ao longo dos planos [124, 125].

O comportamento da resistividade é fortemente afetado pelo tratamento térmico ao qual a amostra é submetida após a grafitação. Na figura 5.3 mostramos a resistividade em função da temperatura para várias amostras com diferentes tratamentos térmicos. Quanto maior a temperatura do tratamento térmico, maior a perfeição da amostra em comparação com um cristal. Observa-se que a resistividade para amostras com tratamento térmico a

temperaturas mais altas se aproxima do comportamento para monocristais, porém nenhuma delas se compara ao monocristal. Isto é devido a defeitos residuais que permanecem na amostra.

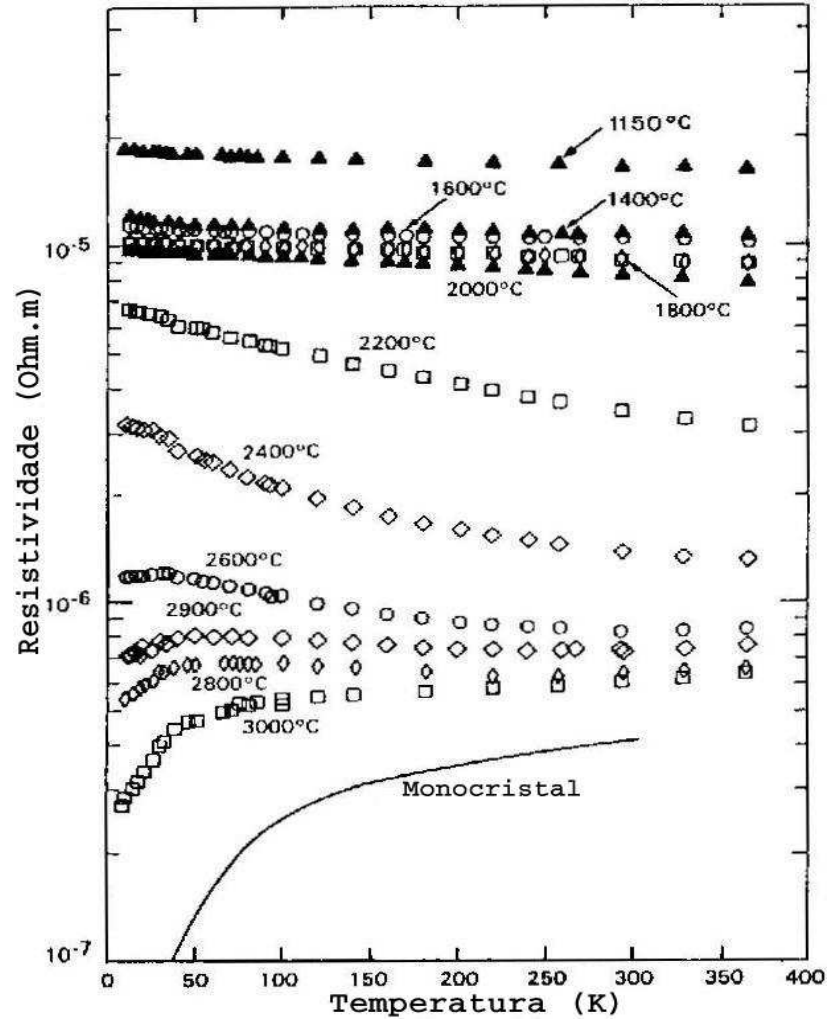


Figura 5.3: Resistividade de fibras de carbono derivadas de benzeno depositado por CVD em função da temperatura. Curvas feitas para vários tratamentos térmicos, indicados na figura, são comparados com um monocristal de grafite. Da referência [107].

Por outro lado, é sabido que o grafite apresenta um sinal magnético fortemente diamagnético para $\vec{H} \parallel \vec{c}$. Lembrando que a susceptibilidade resulta de várias contribuições, $\chi = \chi_{orb} + \chi_0 + \chi_p$, onde χ_0 é a contribuição diamagnética dos elétrons da casca fechada

(diamagnetismo de Larmor), $\chi_p = \beta^2 \nu(\epsilon)$ é a contribuição paramagnética do spin (Pauli paramagnetismo), onde $\beta = \frac{e\hbar}{2mc}$ é o magneton de Bohr, $\nu(\epsilon)$ é a densidade de estados e m é a massa do elétron livre, e $\chi_{orb} = -\frac{1}{3}\beta^{*2} \nu(\epsilon)$ é a contribuição orbital dos elétrons de valência (diamagnetismo de Landau), onde $\beta^* = \frac{e\hbar}{2m^*c}$ e m^* é a massa efetiva dos portadores ($m_e^* = 0,058m$ e $m_h^* = 0,04m$, onde m_e^* é a massa efetiva dos elétrons majoritários e m_h^* é a massa dos buracos majoritários). Assim temos que $\frac{\chi_{orb}}{\chi_p} = -\frac{1}{3} \left(\frac{m}{m^*}\right)^2$. Como no grafite $m^* \sim 0,05m$, isto resulta em um forte diamagnetismo.

Como vimos, a alta anisotropia do grafite faz com que se possa considerá-lo como um sistema quase bi-dimensional, o que por sua vez deve ser levado em consideração quando se estuda suas propriedades de transporte. A seguir veremos o comportamento de sistemas bi-dimensionais com relação a possíveis transições entre estados condutores e isolantes.

5.3 Transição Metal - Isolante em 2D

De acordo com a teoria de escala da localização [126] não pode existir um estado metálico em duas dimensões na ausência de campo magnético. Dentro desta teoria, todos os portadores em um sistema bi-dimensional (2D) infinitamente grande e a temperatura zero estão localizados. Com a diminuição da temperatura, é esperada que a resistência aumente logaritmicamente (localização fraca) ou exponencialmente (localização forte), se tornando infinita com $T \rightarrow 0$. Apesar desta teoria ter sido feita para sistemas 2D de partículas não interagentes, trabalhos teóricos subsequentes mostraram que interações fracas entre elétrons aumentava ainda mais a localização [127]. No limite oposto de interações muito fortes entre partículas, é esperado que um sistema de elétrons 2D se torne um cristal de Wigner; mesmo na presença de pouca desordem, é esperado que tal cristal seja ancorado, de modo que o sistema de elétrons cristalizados não possa conduzir a temperatura zero. Portanto, não é esperado que sistemas bi-dimensionais sejam condutores em qualquer limite de interações entre portadores.

Experimentos realizados no início dos anos 80 em diferentes sistemas 2D confirmaram estas previsões. Filmes metálicos finos e Si MOSFET (“Metal-Oxide-Semiconductor Field-Effect-Transistor”) mostraram o aumento logarítmico da resistividade como esperado [128–130]. Para baixa densidade de elétrons, um crescimento exponencial da resistividade em Si MOSFET em função do inverso da temperatura foi reportado [130]. A concordância entre

teoria e experimento era convincente e, por quase duas décadas, a questão se um estado condutor é possível em 2D era considerada resolvida.

No entanto, de tempos em tempos, apareciam indicações de que a visão aceita poderia nem sempre estar correta. Alguns resultados experimentais sugeriam a possibilidade de um estado metálico em 2D. Analisando dados experimentais obtidos para heteroestruturas de GaAs/AlGaAs, Gold [131] concluiu que uma transição metal - isolante existia em amostras limpas (sem defeitos).

Recentemente, estudos sistemáticos da dependência da resistência com a temperatura em campo magnético nulo em sistemas bi-dimensionais dilutos e com pouca desordem sugeriram que esta transição metal - isolante poderia ocorrer. (Como a resistência de um filme é proporcional ao seu comprimento e inversamente proporcional a sua largura, a resistência superficial do filme, descrito como $R_{\square}$, é independente do tamanho da área superficial, mas não da espessura do filme. $R_{\square} = \rho$ é usado para caracterizar o comportamento resistivo em duas dimensões). Comportamento metálico (resistividade que decresce com a diminuição da temperatura) foi observado até as temperaturas mais baixas acessíveis para densidades de elétrons (n_s) ou buracos (p_s) acima de uma densidade crítica n_c (ou p_c). Abaixo desta densidade crítica, o comportamento da resistência é isolante, assim sugerindo que uma transição metal - isolante em duas dimensões ocorre quando a densidade de portadores é variada. Na densidade crítica, a resistência é quase independente da temperatura e da ordem da unidade quântica de resistência, $h/e^2 \approx 25,6 k\Omega$.

Kravchenko et al. observaram uma transição entre um comportamento metálico e um comportamento isolante induzida pela variação na densidade de portadores em um sistema eletrônico bidimensional com baixa densidade de portadores e alta mobilidade em MOSFET de silício [132–138]. Ao passo que para densidade de portadores abaixo do valor crítico a resistência aumenta de modo monotônico com a diminuição da temperatura, para densidade de portadores acima do valor crítico a resistência diminui com a diminuição da temperatura. A densidade de portadores na qual ocorre a transição é da ordem de $10^{11} cm^{-2}$. Transição análoga foi encontrada para sistemas bidimensionais de buracos [139, 140].

A aplicação de um campo magnético externo da ordem de alguns tesla suprime o comportamento metálico e gera uma enorme magneto-resistência positiva nos dois lados da transição. Nem o comportamento metálico nem sua supressão pelo campo magnético é entendido atualmente. Exemplos destes comportamentos são mostrados nas figuras 5.4 e 5.5, onde vemos a dependência da resistividade em função da temperatura para diferentes densidades de

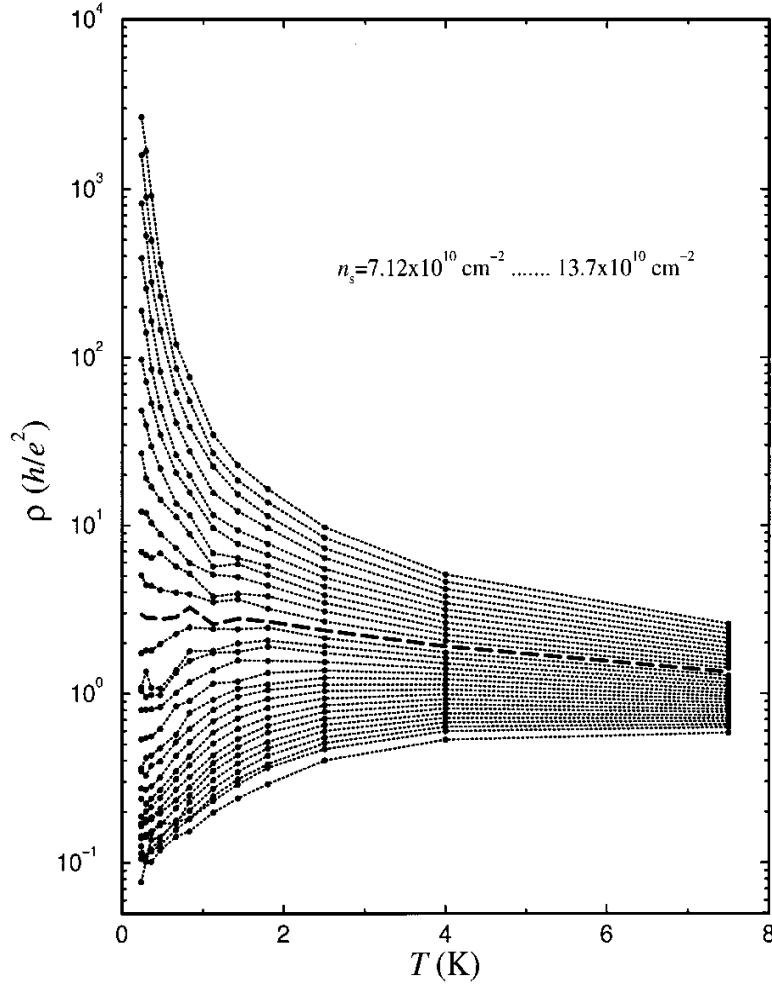


Figura 5.4: Resistência em função da temperatura para Si MOSFET em diferentes densidades de elétrons. Da referência [132].

elétrons na ausência de campo magnético (figura 5.4) e a resistividade em função da temperatura para uma dada densidade de elétrons e para diferentes campos magnéticos aplicados (figura 5.5).

Um número de explicações tem sido baseadas na possibilidade de supercondutividade no gás de elétrons 2D interagentes (veja, por exemplo, Phillips et al. na ref. [141] e figura 5.9). Este cenário é tentador por causa das similaridades entre a transição metal - isolante em 2D e a transição supercondutor - isolante em filmes finos metálicos [142] e também porque um campo magnético suprime o estado condutor nos dois casos, levando a uma saturação da

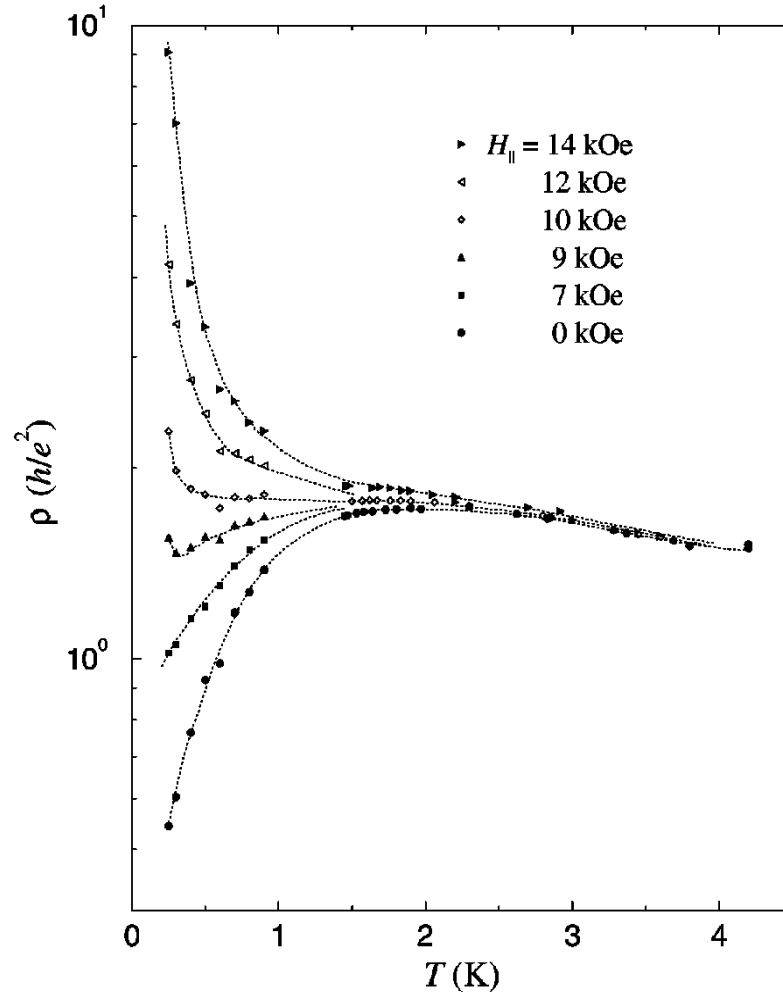


Figura 5.5: Resistência em função da temperatura para diferentes campos magnéticos aplicados paralelos à superfície de uma amostra de Si MOSFET com densidade de elétrons de $8,83 \times 10^{10} \text{ cm}^{-2}$. Da referência [133].

resistência. Veremos a seguir esta transição supercondutor - isolante.

5.4 Transição tipo Supercondutor - Isolante

Grande interesse foi recentemente retomado ao assunto pela possibilidade de que a extinção da supercondutividade induzida por desordem ou campo magnético em sistemas bi-dimensionais no limite de temperatura zero poderia ser uma transição de fase quântica.

O premio Nobel de 1977 foi concedido à Mott, van Vleck e Anderson pela formulação do princípio de localização para sistemas eletrônicos desordenados [143]. Por este princípio, férmions em duas dimensões ficariam localizados devido a desordem e portanto não existiria fase condutora, independente do grau de desordem.

Por outro lado, é conhecida a ocorrência de supercondutividade em sistemas bidimensionais. Com isso há a formação de pares de Cooper, portadores com carga $2e$ que seguem a estatística de Bose, e para os quais o princípio da localização não é suficiente, uma vez que eles apresentam coerência de fase macroscópica.

O estudo da supercondutividade em 2 dimensões abre uma grande oportunidade de pesquisa para se investigar a competição entre a interação atrativa responsável pela supercondutividade e os efeitos de quebra dos pares devido a localização e o aumento da repulsão Coulombiana devido a desordem. Considerando que a supercondutividade é uma manifestação da coerência de fase de longa distância entre pares de elétrons, localização eletrônica envolve uma limitação da extensão espacial das funções de onda, que impede o pareamento.

Em uma série de experimentos, o grupo de A. M. Goldman [144–149] investigou a transição supercondutor-isolante em filmes metálicos amorfos ultra-finos. A transição de isolante para supercondutor foi induzida pelo aumento da espessura do filme; na transição surge uma fase metálica com resistência superficial finita para $T \rightarrow 0$ na vizinhança de $R_{\square} = h/4e^2 = 6450 \Omega$, a resistência quântica para pares de elétrons.

Transição supercondutor-isolante induzida por campo magnético externo foi encontrado em filmes amorfos de bismuto [149], óxido de índio [150, 151] e molibdênio-germânio [152]. Transição análoga foi encontrada em supercondutores de alta temperatura [153] e sistema de junções Josephson [154].

Para esta transição, Fisher et al. [155, 156] desenvolveram uma teoria de escala baseada no princípio de dualidade entre pares de Cooper e vórtices [157]. Transformações de dualidade são métodos matemáticos que relacionam as propriedades físicas de um sistema com as de outro. Se tal transformação existe, os sistemas são ditos serem duos um do outro. Podemos ver um supercondutor bidimensional a temperatura zero como um condensado de Bose de pares de Cooper. Neste sistema, uma importante excitação é um vórtice, que é um defeito topológico pontual na função de onda do condensado. Se um bóson se move ao redor do vórtice, a fase varia de 2π ; associado com esta variação na fase há uma corrente circulante.

Como vórtices em 2D são defeitos pontuais, é possível realizar a transformação de dualidade que intercambia os papéis de partículas e vórtices. Deste modo, pode-se imaginar

os vórtices como os graus de liberdade fundamentais e considera-se que a função de onda do sistema quântico dependa da posição dos vórtices e não mais das partículas. Do mesmo modo como um vórtice era um lugar onde a fase da função de onda das partículas variava de 2π , agora uma partícula é um lugar onde a fase da função de onda do vórtice varia de 2π .

Na fase supercondutora os bósons (pares de Cooper) estão condensados. Isto faz com que na ausência de campo magnético externo, vórtices e anti-vórtices se atraiam fortemente e se tornem confinados. O fluxo de vórtices e portanto a voltagem vai a zero, indicando que a corrente flui sem dissipação, ou seja, temos um supercondutor. Com a aplicação de campo externo só teremos fluxo de corrente sem dissipação se os vórtices estiverem aprisionados, como mostramos na primeira parte desta tese.

Vamos considerar agora o limite oposto, no qual grãos metálicos nos quais os pares de Cooper se formam são muito pequenos e estão muito separados uns dos outros, de modo que fica difícil para os pares tunelarem entre grãos. Neste limite fica fácil para vórtices se moverem ao redor rapidamente. Isto causa as excitações de carga a ficarem confinadas e então temos um isolante. Sob a transformação de dualidade podemos pensar no isolante como um condensado de Bose de vórtices. As partículas originais agora parecem vórtices fortemente confinados. De fato, no isolante, como no supercondutor, não há dissipação, isto é, se aplicamos voltagem, não há fluxo de corrente, portanto a potência dissipada é $P=IV=0$.

O fluxo sem dissipação de vórtices na fase isolante é assim o duo da supercondutividade. Note que quando cargas e vórtices trocam de lugar, voltagem e corrente também são trocados. Carga se movendo produz corrente enquanto vórtices se movendo produzem tensão.

Em resumo, a fase supercondutora é caracterizada pela localização dos vórtices e uma condensação de Bose dos pares de Cooper, havendo assim condução sem dissipação. Na fase isolante ocorre o caso contrário: vórtices estão condensados enquanto os pares de Cooper estão localizados, não havendo portanto condução.

Com isso podemos determinar porque na transição aparece uma resistência de $6450\Omega = h/4e^2$: quando o sistema muda de supercondutor para isolante, ambos vórtices e cargas se movem. Um fluxo de pares de Cooper resulta em uma corrente $I = 2e(dn/dt)_c$, onde $(dn/dt)_c$ é o fluxo de pares de Cooper. Vórtices se movendo em ângulo reto com a corrente produzem uma voltagem $V = (h/2e)(dn/dt)_v$, onde $(dn/dt)_v$ é o fluxo de vórtices. Quando há a transformação de dualidade, vórtices e cargas se comportam identicamente e as duas derivadas são idênticas, portanto a resistência $R = V/I$ resulta em $h/4e^2$.

Na base desta teoria está o princípio da incerteza de Heisenberg relacionando localização

e coerência de fase dos pares de Cooper. A localização dos pares de Cooper implica na perda de coerência de fase, resultando em um estado isolante. Por outro lado, havendo coerência na fase faz com que os pares de Cooper se tornem delocalizados, resultando em supercondutividade. Como o ponto crucial nesta transição é a incerteza quântica, ela é uma transição de fase quântica.

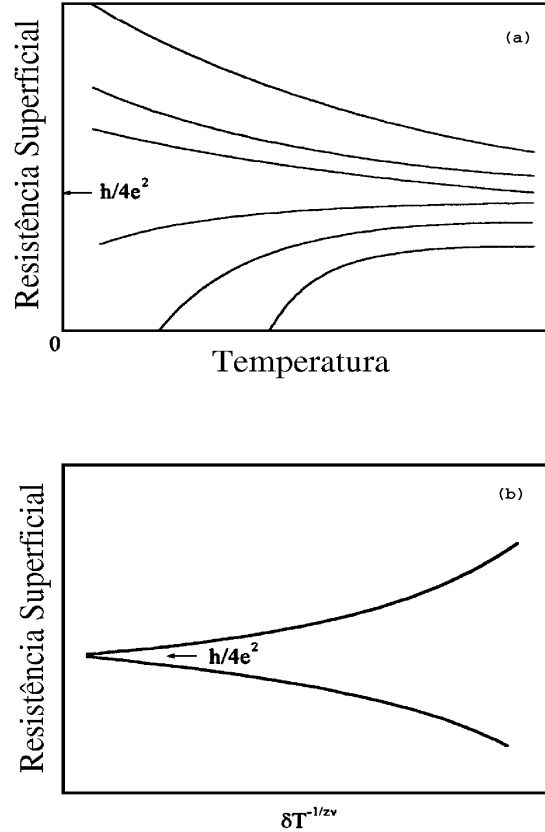


Figura 5.6: Desenho esquemático da escala de uma transição supercondutor-isolante. (a) Dependência da resistência em função da temperatura para diferentes valores do parâmetro de indução, as três curvas superiores estão na fase isolante e as três de baixo na fase supercondutora. (b) Escala da resistência, as curvas das fases supercondutora e isolante se sobrepõem, respectivamente, acima e abaixo da transição.

Apesar de ter sido prevista para $T = 0$, esta transição pode ser observada para temperaturas finitas devido a flutuações críticas. Em sistemas ordenados, esta é uma transição de primeira ordem, enquanto que para sistemas desordenados, é de segunda ordem. Neste

caso pode-se aplicar a teoria de escala. A descrição desta transição próxima ao regime de flutuação é feita pelos expoentes críticos ν e z definidos como comprimento de correlação e a energia característica do sistema [155, 156]

$$\xi \sim \delta^{-\nu}$$

$$\Omega \sim \delta^{-z} \quad (5.1)$$

como função de δ , a diferença entre o parâmetro de indução da transição e o parâmetro crítico, na vizinhança da transição. Para o caso da transição induzida por campo temos

$$\delta = |H - H_c|. \quad (5.2)$$

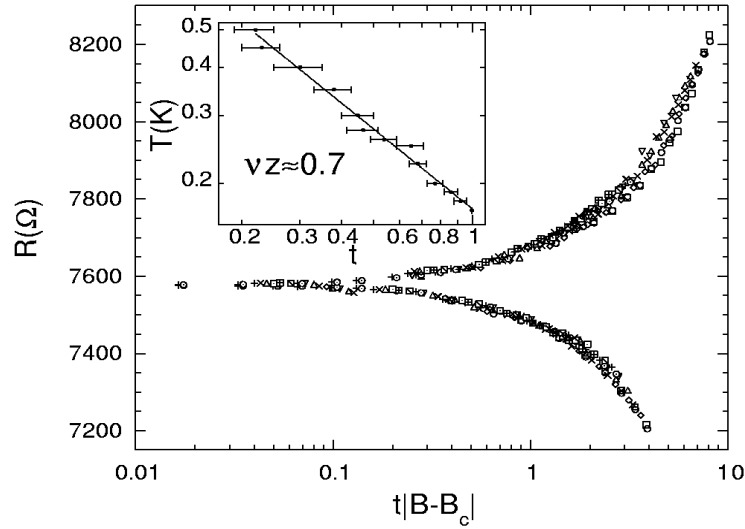


Figura 5.7: Resistência em função da variável de escala, $t|B - B_c|$, $t = T^{-1/\nu z}$, para dezessete temperaturas, de 0,14 a 0,5 K para um filme amorfo de Bi. Da referência [149].

A escala crítica pode ser expressa como

$$R = R_c f\left(\delta T^{-\frac{1}{z\nu}}\right), \quad (5.3)$$

com diferentes funções de escala f para a fase supercondutora e isolante. R_c é a resistência

superficial na transição, que resulta em $h/4e^2$ para uma interação entre pares de Cooper logarítmica com a distância ($\sim \ln r$), do mesmo modo que para os vórtices. De fato interação entre pares de Cooper como $\sim r^{-1}$ causa uma redução na resistência. Para os expoentes críticos a teoria prevê $z = 1$ e $\nu \leq 2/d$ (d é a dimensionalidade do sistema), resultando então $z\nu \leq 1$, para o caso da transição induzida por campo.

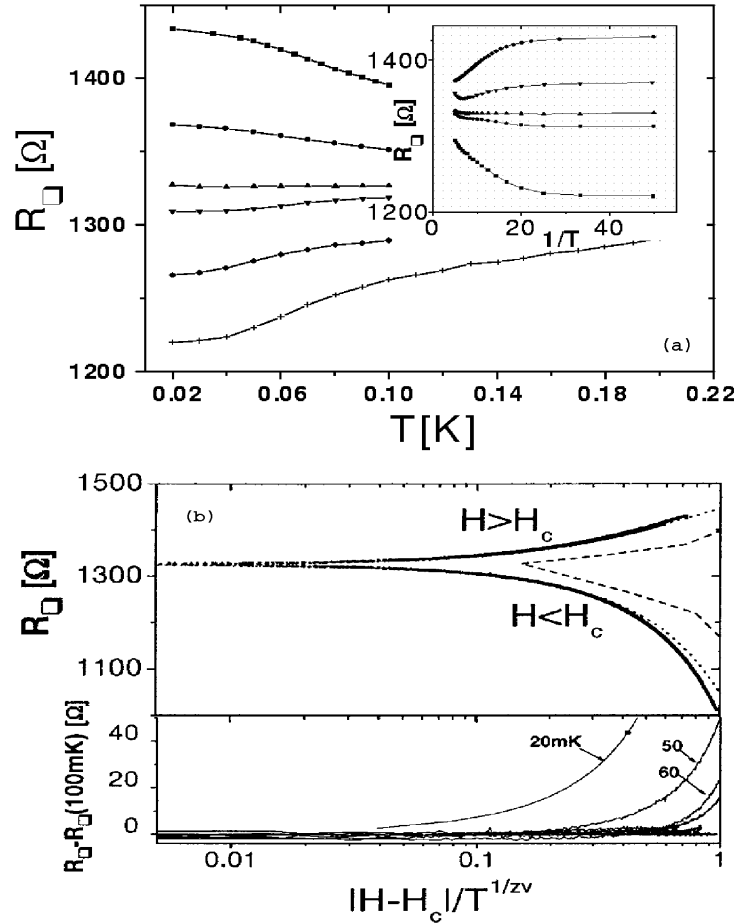


Figura 5.8: (a) Resistência de uma amostra de MoGe em função da temperatura para campos $B=1,3; 1,26; 1,23; 1,21; 1,2$ e $1,18$ T. O inset mostra a resistência em função do inverso da temperatura. (b) Escala da resistência para $T \geq 100$ mK com $H_c = 1,21$ T e $z\nu = 1,33 \pm 0,05$. Da referência [158].

Se a resistência varia de acordo com os argumentos de (5.3), então as curvas colapsam em cada caso para diferentes valores dos parâmetros de indução para as fases isolante e

supercondutora. A figura 5.6 mostra uma representação esquemática de tal comportamento.

Este comportamento pode ser encontrado em transições induzidas por campo em filmes de bismuto amorfo [149], óxido de Índio [150, 151], Molibdênio-Germânio [152]. A transição em bismuto é de especial interesse pois este material exibe várias semelhanças com o grafite. A escala neste caso resulta em

$$z\nu = 0,7 \pm 0,2.$$

Na figura 5.7 mostramos a escala para um filme amorfo de bismuto de acordo com o trabalho de Markovic et al. [149]. Para filmes de Mo-Ge, como mostrado na figura 5.8, a escala resulta em $z\nu = 1,33 \pm 0,05$ [158] e na figura 5.9 a escala para Si MOSFET resulta em $\alpha = z\nu = 0,6 \pm 0,1$ [141].

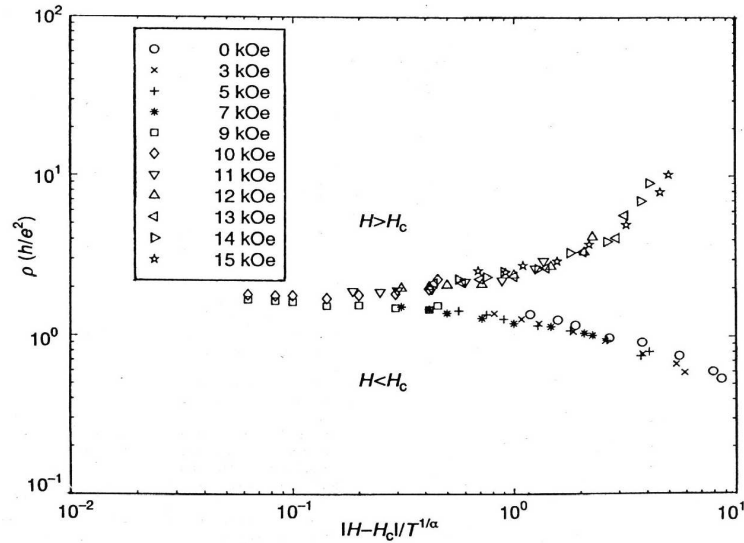


Figura 5.9: Escala da resistência conforme teoria da transição supercondutor - isolante para Si MOSFET (veja também figura 5.5). $H_c = 9,5 \text{ kOe}$ e $\alpha = 0,6 \pm 0,1$. Da referência [141].

Para a transição induzida pela variação da espessura do filme em camadas amorfas de filmes metálicos, expressões similares resultam para a escala crítica [155, 159], que também foram verificados experimentalmente [149, 155, 160], inclusive no caso de supercondutores de alta temperatura [153].

No caso da transição supercondutor-isolante tratada aqui não se vê a resistência indo a zero, mas uma saturação a baixas temperaturas. Este comportamento também é encontrado

no caso de filmes supercondutores de MoGe [158] e, como veremos mais adiante, em grafite também.

Na região fora da saturação a transição exibe a escala crítica com a densidade de portadores [132, 134]. A fase condutora é suprimida pela aplicação de campo elétrico [135] e magnético [161], resultando em um expoente de escala crítica $z\nu = 0,6$ para o último caso.

Recentes teorias tentam também explicar o comportamento da resistividade no grafite baseadas na ocorrência da chamada catálise magnética (MC), que veremos a seguir.

5.5 Catálise Magnética

Modelos relativísticos tem sido reconhecidos a muito tempo como teorias eficientes para a descrição de excitações de comprimento de onda longa em sistemas de matéria condensada (para uma revisão veja referência [162]). Em particular, eles podem ser aplicados para uma ampla classe de sistemas (quase-) planares. Neste caso, as teorias relativísticas correspondentes são 2+1 dimensional, isto é, elas são formuladas no espaço de Minkowski em 2+1 dimensões com duas coordenadas espaciais e uma coordenada temporal. É importante notar que entre estes sistemas de matéria condensada estão supercondutores de alta temperatura crítica (simetria de onda d) e materiais baseados em carbono.

É sabido há muito tempo que as quase-partículas fermiônicas em grafite são quase bi-dimensionais [163]. Além disso, no grafite o espectro das quase-partículas tem uma dispersão aproximadamente linear. Vários trabalhos [164–168] tem se baseado nesta formulação para tentar explicar nossos dados experimentais, que veremos mais adiante.

Na figura 5.10 mostramos um esquema da rede hexagonal bi-dimensional junto com a zona de Brillouin para o grafite. A dispersão é linear na vizinhança dos pontos cônicos K localizados nos cantos da zona de Brillouin, isto é, $E(\vec{k}) = \hbar v |\vec{k}|$ ($v = v_F \sim 10^6$ m/s é a velocidade de Fermi), de modo que os estados eletrônicos podem ser descritos pelas equações de Dirac em duas dimensões [164, 165, 167–170]. Na ausência de campo magnético a banda de valência e a banda de condução se tocam nos pontos cônicos, de modo que temos um material condutor. Com a aplicação de um campo magnético perpendicular aos planos de grafite, há a abertura de um gap isolante no espectro de férmions de Dirac que é associado com o pareamento elétron - buraco [164].

A abertura deste gap está relacionada com o “aparecimento” de massa dos férmions.

Forte interação Coulombiana também causa a abertura de gap. Esta interação pode ser caracterizada pelo parâmetro adimensional $g = 2\pi e^2/\epsilon_0 v$, onde ϵ_0 é a constante dielétrica, e é a carga do elétron. Para o grafite, $g \geq 10$, o que sugere que a interação Coulombiana pode abrir um gap excitônico no espectro de férmions de Dirac [164].

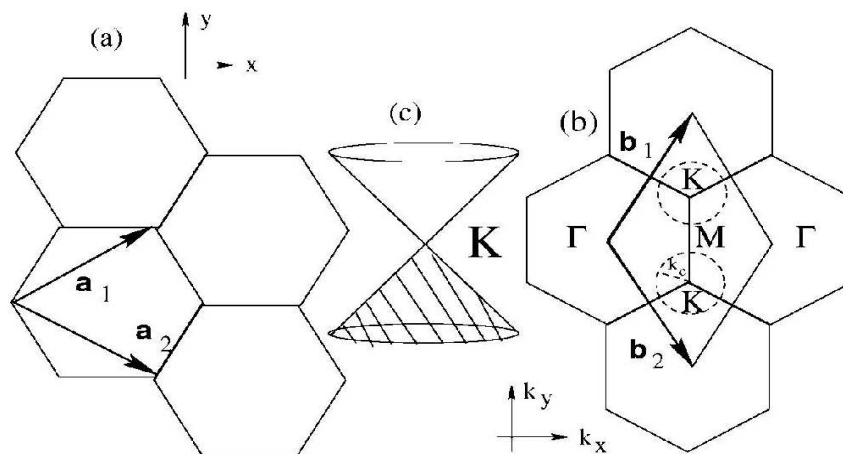


Figura 5.10: (a) Rede hexagonal, $\mathbf{a}_{1,2} = \frac{a}{2}(\sqrt{3}, \pm 1)$. (b) Zona de Brillouin, $\mathbf{b}_{1,2} = \frac{2\pi}{a}(\frac{1}{\sqrt{3}}, \pm 1)$. (c) Cone do espectro de Dirac no ponto K. Da referência [168].

Khveshchenko [164, 165] e Gusynin et al. [171–174] argumentam que na presença de um campo magnético externo, há a geração de um gap relacionado ao pareamento elétron - buraco mesmo para uma atração fraca entre elétrons e buracos. Portanto neste caso o gap aparecerá mesmo quando a constante de acoplamento g for subcrítica, ou seja, o campo magnético ajuda na abertura do gap mesmo para a menor atração entre elétrons e buracos. Na ausência do campo magnético, o gap só aparece para g maior que o valor crítico. Este é o fenômeno conhecido como catálise magnética (MC, “magnetic catalysis”).

Vários autores [164, 167] utilizando o formalismo de Dirac desenvolveram teorias para descrever o comportamento da resistividade em grafite, incluindo a transição metal - isolante observada. Sem entrar em detalhes do formalismo teórico, reproduziremos somente os resultados finais.

Como dito acima, a aplicação de um campo magnético perpendicular aos planos de grafite abre um gap no espectro de férmions de Dirac que resulta numa transição metal - isolante induzida por campo magnético. Teorias [164, 167] correlacionam a temperatura e o campo

magnético em que ocorre esta transição.

Khveshchenko [164] mostrou que a relação para a temperatura de transição $T_c(H)$ pode ser dada por:

$$T_c(H) \propto (H - H_c)^{1/2}, \quad (5.4)$$

onde H_c é o campo crítico.

Por outro lado, Gorbar et al. [167] chegaram na seguinte relação:

$$T_c(H) = C \frac{e^2(1 - \nu_B^2)}{4\sqrt{2}\epsilon_0} \sqrt{\frac{|eH|}{c}}, \quad (5.5)$$

onde C é uma constante e $\nu_B = H_c/H$.

Estas duas relações podem ser verificadas experimentalmente como veremos no capítulo seguinte.

Por outro lado, há a possibilidade do estado supercondutor de alta temperatura em grafite ser causado por desordem topológica em planos de grafite. González et al. [166] mostraram que a desordem topológica em folhas de grafeno (um plano simples de grafite) aumenta a densidade de estados no nível de Fermi, e que na presença de interação repulsiva elétron-elétron suficientemente forte, resulta em supercondutividade de onda p mediada por flutuações de spin ferromagnético. Isto é interessante frente ao citado no início deste capítulo sobre o comportamento supercondutor e ferromagnético em grafite [119]. Além disso, a existência no grafite de elétrons e buracos pode levar a uma fase metálica excitônica [175] onde supercondutividade a altas temperaturas é possível [176].

Além da grande similaridade da transição metal-isolante em grafite e a transição supercondutor-isolante, há outra, porém não menos excitante similaridade entre grafite e cupratos supercondutores de alta temperatura: a possibilidade de ocorrência do estado RVB (“Resonating Valence Bond”) de curto alcance em grafite [168].

No estado RVB, elétrons em sítios vizinhos de uma rede são emparelhados para formar ligações singletos, assim diminuindo sua energia. Um estado ressonante é uma superposição coerente de tais estados singletos; sua energia diminui ainda mais como resultado das interações entre configurações. Ligações de valência podem ser vistos como pares de Cooper no espaço real que repelem uns aos outros, um efeito conjunto do princípio de Pauli e interação Coulombiana.

Quando há apenas um elétron por sítio, flutuações de carga são suprimidas, levando a um estado isolante. O sistema se torna supercondutor quando os estados se tornam condensados de Bose. Este é mais um modelo para explicar os efeitos observados no grafite e não entraremos em mais detalhes.

Nesta parte, estudamos a possibilidade de ocorrência de supercondutividade em compostos de grafite. Apresentaremos evidências de correlações supercondutoras e transição do tipo supercondutor - isolante em grafite.

Capítulo 6

Amostras, Resultados e Discussão

Este capítulo trata dos resultados obtidos para o grafite, mostrando a ocorrência de uma transição tipo supercondutor-isolante e suas possíveis explicações.

6.1 Amostras de Grafite

Algumas amostras de grafite HOPG (“Highly Oriented Pyrolytic Graphite”) e cristais Kish foram adquiridas comercialmente de Union Carbide enquanto outras foram preparadas no Instituto de Pesquisa “GRAPHITE” em Moscou e gentilmente cedidas para este estudo. Amostras quase monocristalinas recebidas de Moscou foram crescidas através de deposição de carbono no estado gasoso a 2700°C seguido de um tratamento térmico a 3000°C sob pressão de 30MPa [177]. As amostras foram caracterizadas por difração de raio-x, microscopia por varredura de elétrons (“scanning eletron microscopy” - SEM), microscopia por varredura de tunelamento (“scanning tunneling microscopy” - STM) e análise espectrográfica. Medidas de difração de raio-x na geometria $\theta - 2\theta$ deram para os parâmetros da rede cristalina os valores $a = 2,48 \text{ \AA}$ e $c = 6,71 \text{ \AA}$. “Rocking curve” resultaram em uma largura a meia altura (FWHM) entre 0,5° e 1,6° conforme a amostra (veja tabela 6.1) que junto com o SEM nos mostrou um alto grau de orientação dos microcristais ao longo do eixo-c hexagonal. O tamanho característico dos microcristais dentro dos planos basais é da ordem de 10 nm [178]. A análise espectrográfica [178] indicou a seguinte concentração de impurezas: Fe < 8ppm, Ni < 1ppm, Mn < 1ppm, Cu < 1,5ppm, Ca < 9ppm e Ti < 1ppm. Para as medidas de transporte foram colados contatos utilizando-se a mesma técnica descrita para os cristais de

Bi2212, o que resultou em resistência dos contatos da ordem de 1Ω .

Amostras	HOPG-1	HOPG-2	HOPG-3	HOPG-UC	Kish-1
$\rho_a(300K)$	$45\mu\Omega cm$	$135\mu\Omega cm$	$5\mu\Omega cm$	$3\mu\Omega cm$	$5\mu\Omega cm$
ρ_c/ρ_a	$8,56 \times 10^3$	-	5×10^4	5×10^4	10^2
FWHM	$1,4^\circ$	$1,2^\circ$	$0,5^\circ$	$0,5^\circ$	$1,6^\circ$

Tabela 6.1: Tabela comparativa de algumas propriedades das amostras utilizadas na tese.

6.2 Transição do Tipo Supercondutor-Isolante em Grafite

A descoberta de supercondutividade e ferromagnetismo em C_{60} , bem como a descoberta de nanotubos de carbono, ou seja, camadas de grafite dobradas na forma de cilindros, desencadeou grande interesse científico por materiais baseados em carbono. Ferromagnetismo e correlações supercondutoras foram previstas para nanotubos devido a efeitos de borda. A seguir mostraremos resultados de medidas de transporte em grafite pirolítico altamente orientado que sugerem a ocorrência de correlações supercondutoras para altas temperaturas e mostram uma transição do tipo supercondutor - isolante induzida por campo magnético.

Iniciamos esta parte mostrando na figura 6.1 a medida de resistência no plano basal R_a em função da temperatura para uma amostra de grafite pirolítico, que denominamos HOPG-1, na ausência de campo magnético e com uma corrente elétrica de $I = 1mA$. A mostra tem volume de $4,9 \times 4,3 \times 2,5 mm^3$ com o eixo-c ao longo do menor comprimento; a distância entre contatos de tensão é de aproximadamente $1mm$. A resistividade a temperatura ambiente é $\rho_a(300K) = 45\mu\Omega cm$. Com a diminuição da temperatura, observa-se um máximo em $T \cong 50K$, com um comportamento tipo semiconductor (aumento da resistência com a diminuição da temperatura) para $T > 50K$ e um comportamento tipo metálico (diminuição da resistência com a diminuição da temperatura) para $T < 50K$. Todas as medidas em campo magnético que mostraremos a seguir foram realizadas com campo magnético aplicado perpendicularmente aos planos basais e com corrente aplicada de $I = 1mA$.

A figura 6.2 mostra medidas de resistência no plano basal em função da temperatura para campos magnéticos $H \leq 0,08T$. Como pode ser observado, $R_a(T)$ apresenta um

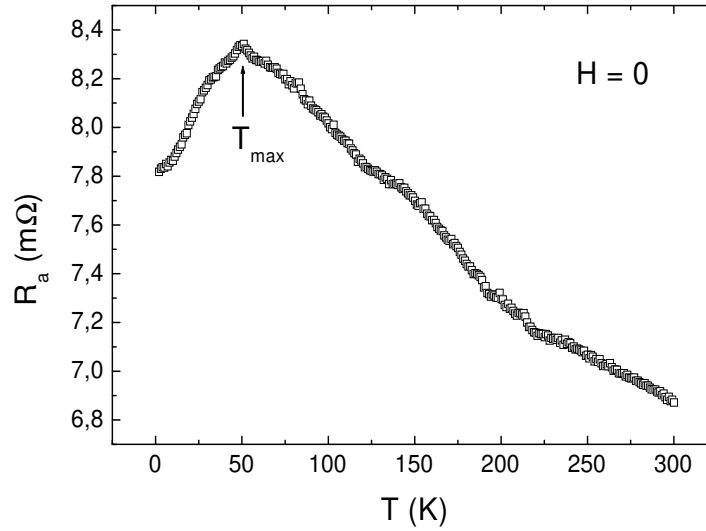


Figura 6.1: Resistência no plano basal R_a em função da temperatura para a amostra HOPG-1 na ausência de campo magnético e com corrente aplicada de $I = 1mA$.

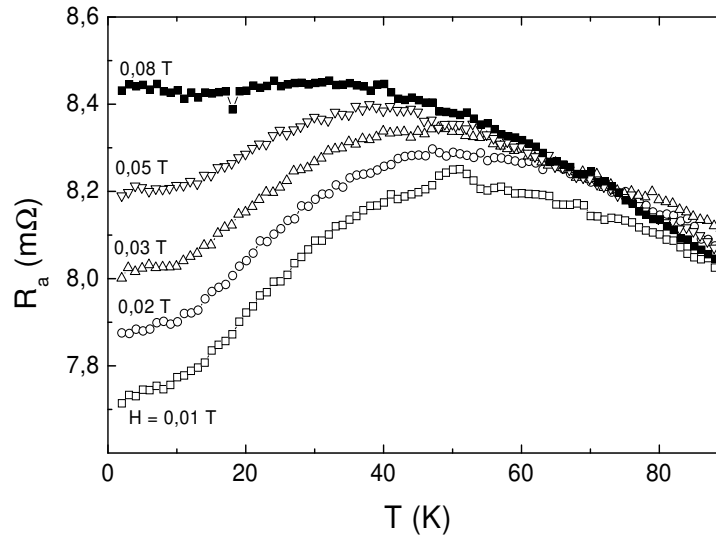


Figura 6.2: Resistência no plano basal em função da temperatura na amostra HOPG-1 para campos $H \leq 0,08T$.

máximo bem definido numa temperatura $T_{max}(H)$ que diminui com o aumento do campo. Assim, $T_{max}(H)$ separa um comportamento tipo semicondutor para altas temperaturas de um comportamento tipo metálico para baixas temperaturas. A observação da supressão do

estado metálico com a aplicação de campo magnético nesta amostra, por si só, já é um fato extraordinário devido a baixa intensidade do campo aplicado.

A figura 6.3 apresenta o diagrama campo magnético - temperatura resultante quando graficamos o campo magnético em função da temperatura em que ocorre o máximo na curva de resistividade para o respectivo campo.

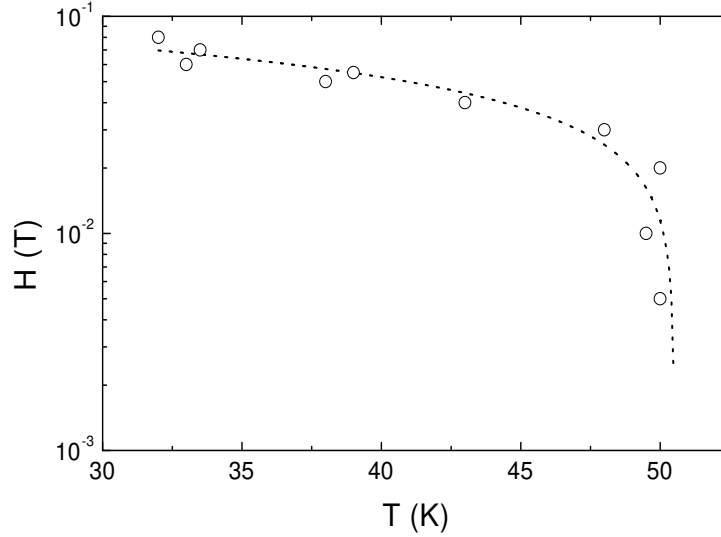


Figura 6.3: Diagrama campo magnético - temperatura construído dos dados das medidas de resistência, onde os símbolos são $H(T_{max})$. A linha tracejada é um ajuste aos pontos que determinam o campo crítico superior $H_{c2}(T) = A(1 - T/T_{c0})^{0,5}$ com os parâmetros $A = 0,115$ T e $T_{c0} = 50,5$ K.

É interessante notar que $H(T_{max})$ pode ser ajustado pela fórmula que relaciona o campo crítico superior com a temperatura em supercondutores granulares [179]:

$$H_{c2}(T) \sim (T_{c0} - T)^\alpha \quad (6.1)$$

onde $\alpha = 0,5$ é o expoente característico de sistemas inomogêneos de grãos supercondutores quase isolados e T_{c0} é a temperatura de transição supercondutora na ausência de campo magnético. A linha tracejada na figura 6.3 é o resultado do ajuste tomando $T_{c0} = 50,5$ K.

A supressão do estado metálico induzido por campo magnético (figura 6.2) pode ser atribuída à supressão de correlações supercondutoras no grafite [123].

Nas figuras 6.4 e 6.5 mostramos curvas de resistência basal em função da temperatura

para uma amostra de grafite pirolítico da Union Carbide, chamada de HOPG-UC, e uma amostra de grafite monocristalino Kish, chamada de Kish-1.

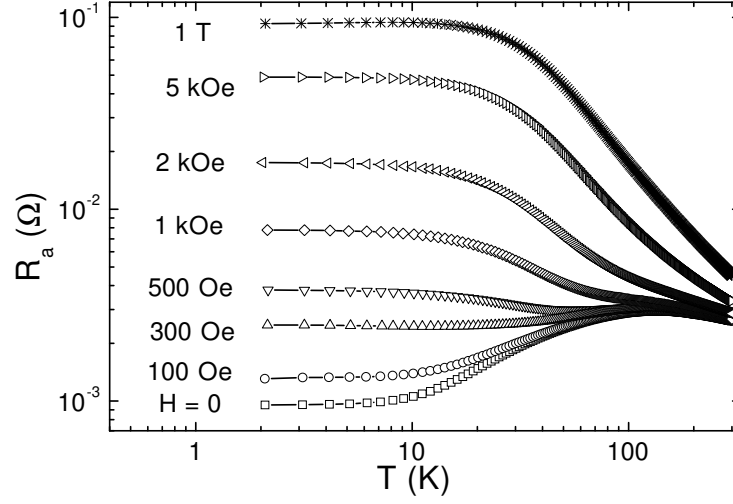


Figura 6.4: Resistência basal em função da temperatura $R_a(T)$ para a amostra HOPG-UC para vários campos magnéticos aplicados perpendicularmente aos planos de grafite.

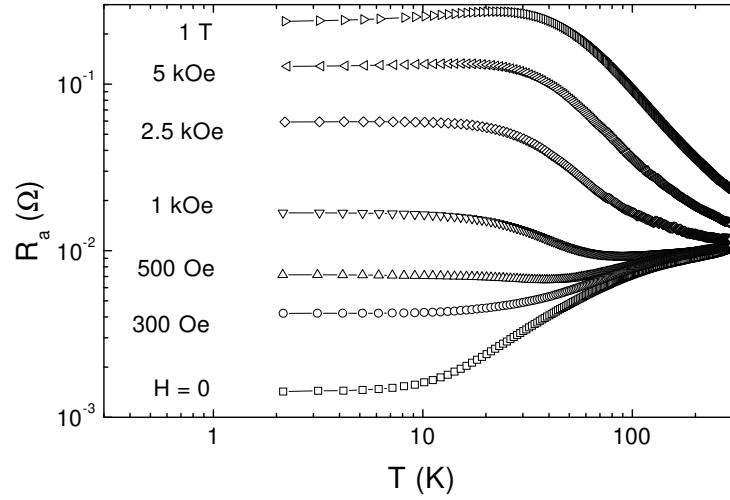


Figura 6.5: Resistência basal em função da temperatura $R_a(T)$ para a amostra monocristalina Kish-1 para vários campos aplicados perpendicularmente aos planos de grafite.

Estas amostras apresentam resistividade a temperatura ambiente $\rho_a(300K) = 3\mu\Omega cm$

(HOPG-UC) e $\rho_a(300K) = 5\mu\Omega cm$ (Kish-1). Observa-se aqui também uma transição de um estado tipo metálico ($dR/dT > 0$) para um estado tipo isolante ($dR/dT < 0$) em função do campo magnético aplicado.

Na figura 6.6(a) mostramos resultados de medidas de resistência basal em função da temperatura $R_a(T)$ para a amostra de grafite pirolítico denominada HOPG-3, cujos pontos foram obtidos a partir de curvas de magneto-resistência. Essa amostra apresentou resistividade a temperatura ambiente $\rho_a(300K, H = 0) = 5\mu\Omega cm$.

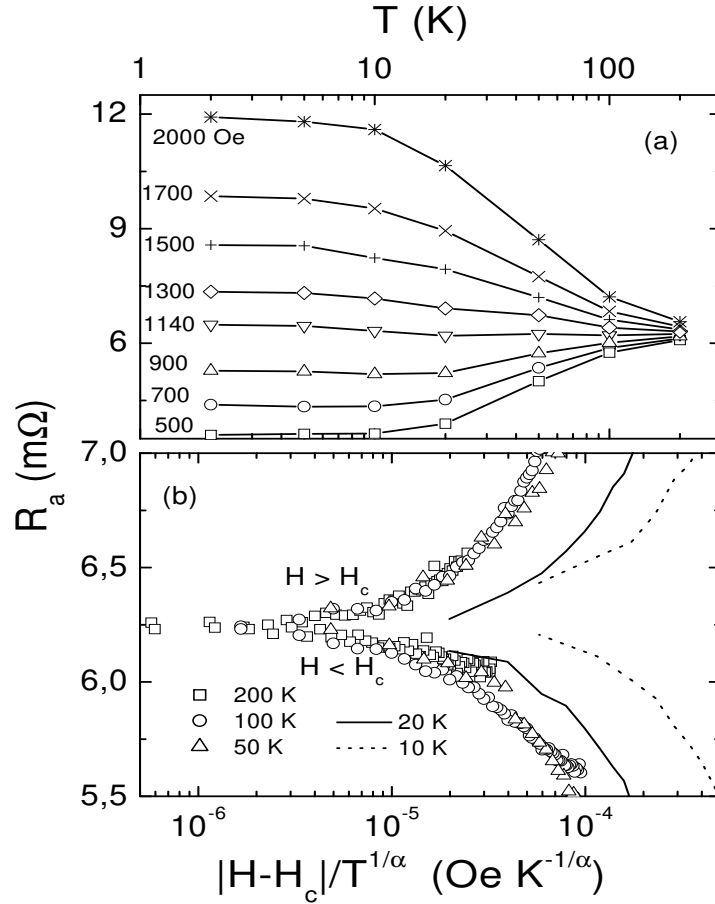


Figura 6.6: (a) Resistência em função da temperatura $R(T)$ para a amostra HOPG-3 para alguns valores de campo magnético aplicado. (b) Resistência em função da variável de escala, onde $H_c = 1140Oe$ e $\alpha = 0,65 \pm 0,05$.

Notamos que os resultados da figuras 6.4, 6.5 e 6.6(a) assemelham-se muito com o comportamento da resistência na proximidade de uma transição supercondutor-isolante causada

por campo magnético [149, 150, 152, 154, 158, 180] e aplicamos aqui a mesma teoria de escala para descrever a transição medida no grafite. De acordo com a análise de escala, a resistência no regime crítico da transição é dada por $R(\delta, T) = R_c f(|\delta|/T^{1/z\nu})$, onde R_c é a resistência na transição, $f(|\delta|/T^{1/z\nu})$ é a função de escala tal que $f(0) = 1$, z e ν são os expoentes críticos e δ é o desvio de um parâmetro variável do seu valor crítico. Com $\delta = H - H_c$, plotamos na figura 6.6(b) R versus $|\delta|/T^{1/\alpha}$, onde $\alpha = z\nu = 0,65 \pm 0,05$ foi obtido do gráfico log-log de $(dR/dH)|_{H_c}$ versus $1/T$, e o campo crítico $H_c = 1140 \text{ Oe}$ foi obtido dos dados experimentais das curvas de magneto-resistência mostrados na figura 6.7. O colapso dos dados de resistência em dois ramos distintos, acima e abaixo do campo crítico H_c , é obtido na faixa de temperatura de 50-200K. Para $T < 20\text{K}$, onde a saturação na resistência é aparente, observa-se claramente um desvio da escala. Este efeito é remanescente do mesmo comportamento observado em filmes amorfos de Mo-Ge [158], veja figura 5.8, e descrito em termos de um metal bidimensional de Bose [181–188], ou seja, um estado com pares de Cooper sem coerência. No nosso caso com grafite e no caso do MoGe [158], o mínimo em $R(T)$ que aparece com o aumento do campo (figura 6.14) já implica que a escala deve ser aplicada numa faixa de temperatura bem restrita.

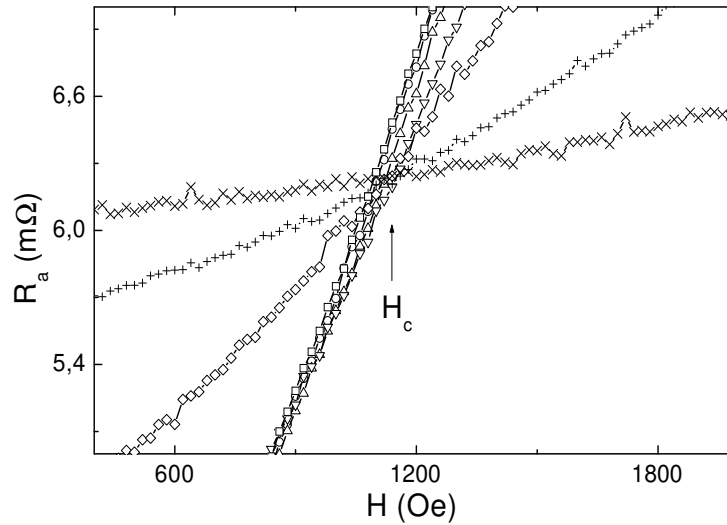


Figura 6.7: Magneto-resistência $R_a(H)$ para a amostra HOPG-3 para as seguintes isotermas: $T=2\text{K}$ ($\square$), $T=5\text{K}$ ($\circ$), $T=10\text{K}$ ($\triangle$), $T=20\text{K}$ (∇), $T=50\text{K}$ ($\diamond$), $T=100\text{K}$ (+) e $T=200\text{K}$ (x). $H_c = 1140 \text{ Oe}$ é o campo crítico.

Nas figuras 6.8 e 6.9 mostramos a escala da transição supercondutor-isolante para as

amostras HOPG-UC e Kish-1. Nestes casos também se observa um colapso das curvas para $T > 50 K$ com um expoente $\alpha \sim 0,6$. Nestes casos a escala não é tão boa quanto para a amostra HOPG-1, pois estas amostras apresentam um mínimo bem pronunciado na curva de resistência em função da temperatura que não é observada na amostra HOPG-1, como veremos mais adiante (figura 6.14). Este mínimo limita a faixa de temperatura / campo magnético em que se pode observar a escala.

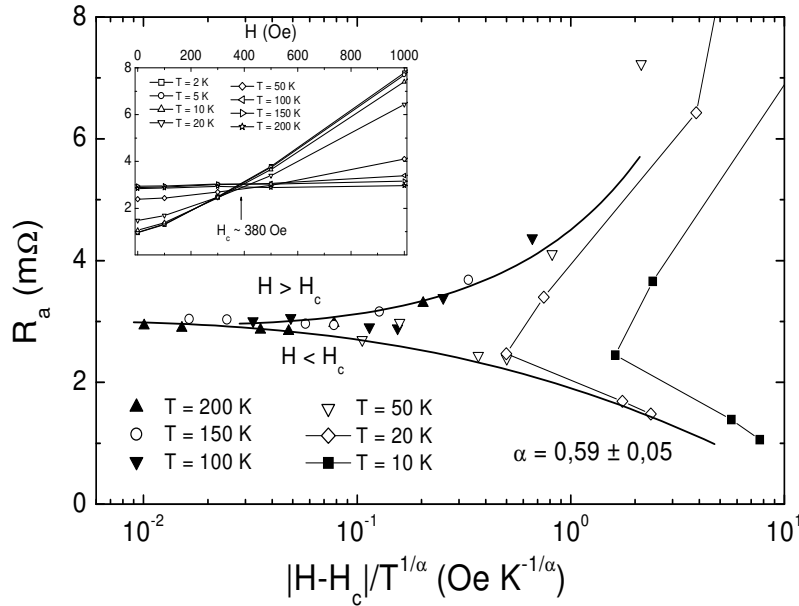


Figura 6.8: Escala da resistência basal para a amostra HOPG-UC, com campo crítico $H_c = 380 Oe$ e expoente $\alpha = 0,59 \pm 0,05$. No inset mostramos as curvas de magneto-resistência cujos pontos obtidos das curvas de $R_a \times T$.

O valor obtido para o expoente $\alpha = 0,65 \pm 0,05$ foi encontrado para todas as amostras estudadas, mostrando a universalidade da escala, veja também ref. [189]. Além disso, ele coincide com o expoente encontrado em análises de escala da transição supercondutor-isolante em filmes ultra-finos de Bi amorfo ($\alpha = 0,7 \pm 0,2$) [149] e transição metal-isolante induzida por campo em Si-MOSFET ($\alpha = 0,6 \pm 0,1$) [141].

Ressaltamos que as escala mostradas na figuras 6.6(b), 6.8 e 6.9 podem ser relacionadas com a transição quântica induzida por campo magnético se o regime crítico se estender até, pelo menos, $T \sim 200 K$. Isto não é de todo improvável, pois além de correlações supercondutoras a altas temperaturas, uma característica especial do grafite deve ser levada

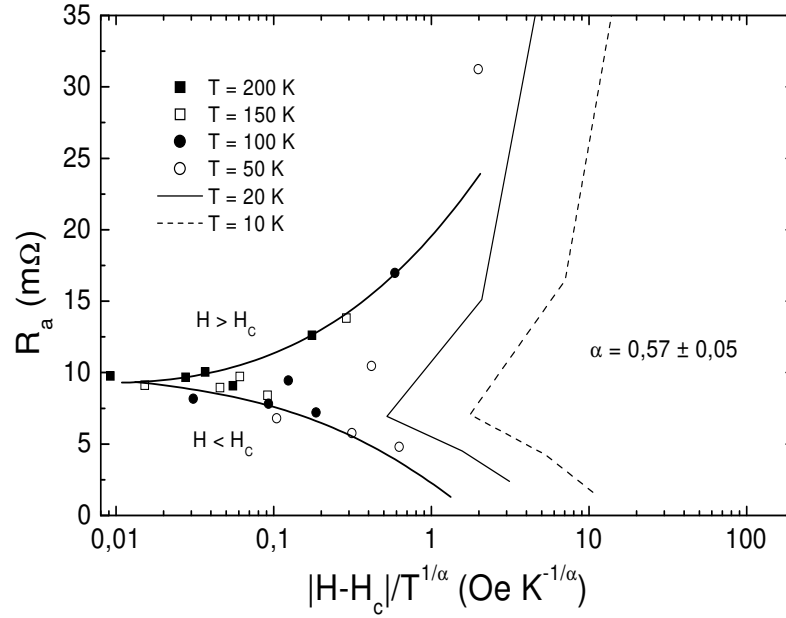


Figura 6.9: Escala da resistência basal para a amostra Kish-1, cujo campo crítico $H_c = 600 \text{ Oe}$ e $\alpha = 0,57 \pm 0,05$.

em conta: devido a baixa densidade e a extremamente reduzida massa efetiva dos portadores no grafite (a massa efetiva dos portadores minoritários é $m^* \sim 0,005m_0$, a massa efetiva dos portadores majoritários é $m^* \sim 0,05m_0$ [125, 190–192], m_0 é a massa do elétron livre), além de sua natureza quase bidimensional, espera-se um forte aumento dos efeitos quânticos.

Qualquer teoria que seja desenvolvida para explicar os efeitos aqui observados precisa saber se eles são de origem orbital ou devido a spin. Para tanto, medimos a resistência basal com o campo magnético aplicado paralelo aos planos basais para a amostra HOPG-UC, como mostrado na figura 6.10. Há um pequeno desalinhamento de $\sim 2^\circ$ entre o campo aplicado e os planos de grafeno. Observa-se que o mínimo em $R_a(T, H)$ ocorre para campos muito maiores quando comparado com as medidas feitas com o campo aplicado paralelo ao eixo-c do grafite.

Na figura 6.11 graficamos $T_{min}(H)$ e $T_{max}(H)$ obtidos para a amostra HOPG-UC com campo aplicado tanto paralelo como perpendicular aos planos basais. Na figura 6.12 apresentamos os mesmos dados graficados em função da componente paralela ao eixo-c do campo magnético levando em conta um desalinhamento entre campo magnético e plano basal de $\gamma = 1,7^\circ$ para as medidas realizadas na geometria $H \parallel \text{planos}$. Vemos uma clara indicação de

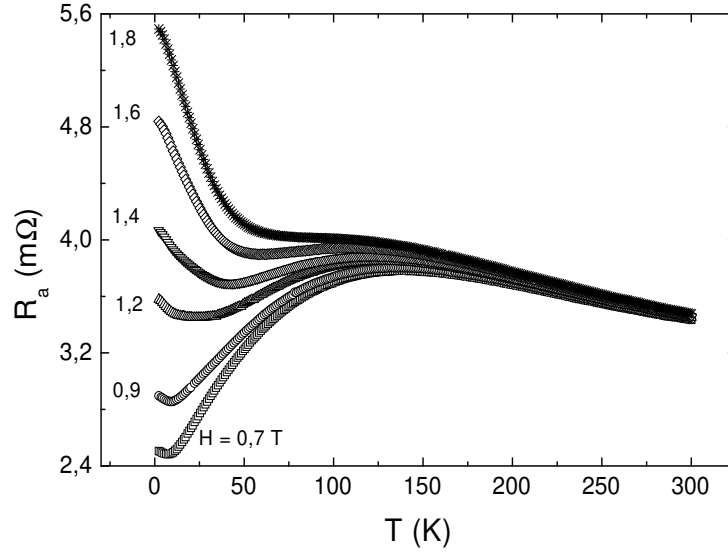


Figura 6.10: Resistência basal $R_a(T, H)$ medida para a amostra HOPG-UC para vários campos magnéticos aplicados paralelos aos planos de grafeno.

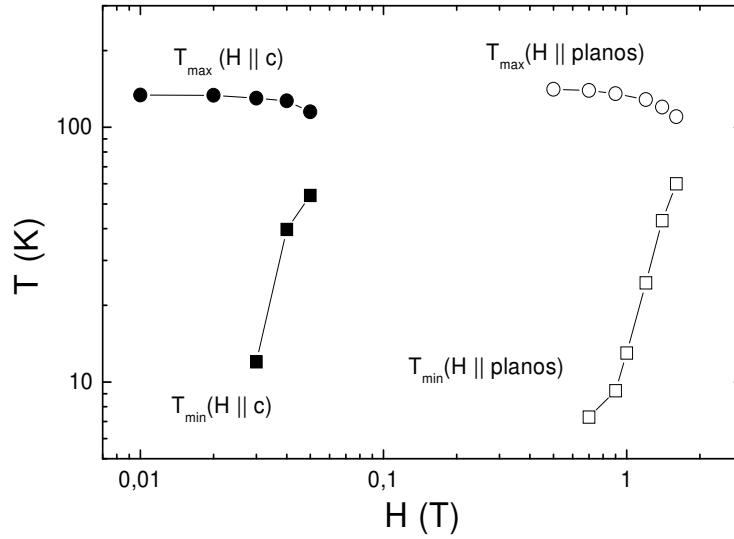


Figura 6.11: $T_{min}(H)$ e $T_{max}(H)$ medidos para a amostra HOPG-UC com o campo magnético aplicado tanto paralelo como perpendicular ao eixo-c da amostra.

que os dados escalam com $H \sin \gamma$. Recentes medidas angulares de alta resolução [193] mostraram, no entanto, que não somente um desalinhamento extrínseco mas também intrínseco, caracterizado pela largura da “rocking curve”, é importante para entender as observações em

campos paralelos.

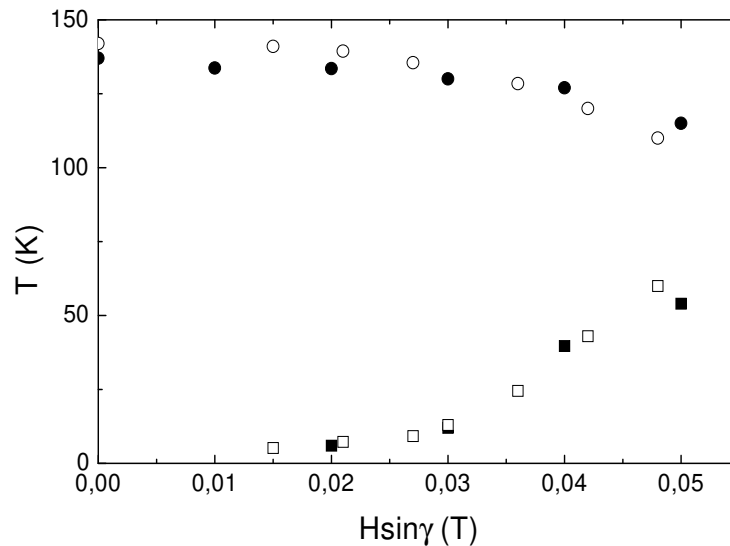


Figura 6.12: Mesmos dados da figura 6.11 graficados agora em função da componente perpendicular ao plano basal do campo magnético aplicado tomando um desalinhamento de $\gamma = 1,7^\circ$ para o ângulo entre o campo e os planos na geometria $H \parallel \text{planos}$ e $\gamma = 90^\circ$ para a geometria $H \perp \text{planos}$.

Na figura 6.13 mostramos a escala segundo a teoria da transição supercondutor - isolante da resistência basal para a amostra HOPG-UC com campo magnético aplicado paralelo aos planos basais. Observa-se o colapso das curvas para a região isolante e supercondutora para uma faixa de temperatura entre 20 e 150 K. O campo crítico observado foi de $H_c = 1,6T$ e o expoente $\alpha = 0,65$. Se levarmos em conta somente a componente paralela ao eixo-c do campo magnético, o valor do campo crítico é $H_c \sin \gamma = 475 Oe$, mesmo valor observado para as amostras quando medidas com o campo aplicado na geometria $H \parallel c$. Isto indica que somente efeitos orbitais (no plano) são responsáveis pela transição observada em grafite.

De acordo com Phillips et al. [141] e Das et al. [181, 182], o estado metálico em sistemas 2D como no MoGe ou até em Si-MOSFET é de fato um estado metálico de Bose com ausência de coerência de fase entre pares de Cooper. A semelhança entre grafite e outros sistemas bidimensionais que apresentam transições do tipo supercondutor-isolante pode indicar a ocorrência de um estado metálico de Bose no grafite também. De fato, medidas de magnetização mostraram a ocorrência de grãos supercondutores em grafite puro e em grafite dopado com enxofre [119–122].

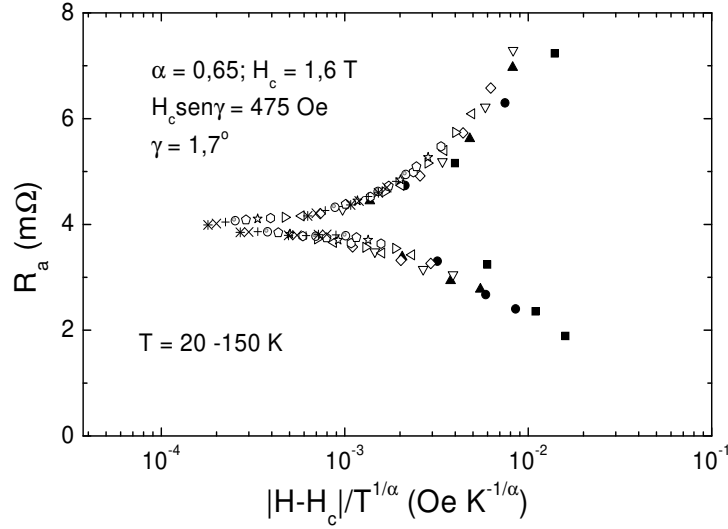


Figura 6.13: Escala da resistência basal para a amostra HOPG-UC com o campo magnético aplicado paralelo aos planos basais. O campo crítico é $H_c = 1,6T$ e $\alpha = 0,65$. Se levarmos em conta um desalinhamento de $\gamma = 1,7^\circ$, obtemos um campo crítico de $H_c \sin \gamma = 475 \text{ Oe}$.

A seguir, verificaremos as previsões da teoria da catálise magnética. Apesar deste modelo sugerir que o estado isolante é um isolante excitônico, ele não exclui a possibilidade de supercondutividade em grafite.

Observando mais atentamente as curvas de resistividade basal em função da temperatura, notamos a ocorrência de mínimos para as amostras HOPG-UC e Kish-1 (figuras 6.4 e 6.5, respectivamente). Na figura 6.14 mostramos uma visão mais detalhada destes mínimos que apresentam um comportamento crescente com o campo magnético. Na figura 6.15 mostramos $T_{min}(H)$ para a amostra Kish-1. Estas figuras dão mais evidências da existência do campo crítico H_c abaixo do qual o estado metálico persiste. Na figura 6.15 as linhas pontilhada e contínua foram obtidas das equações:

$$T_{min}(H) = A(H - H_c)^{1/2} \quad (6.2)$$

e

$$T_{min}(H) = B[1 - (H_c/H)^2]H^{1/2} \quad (6.3)$$

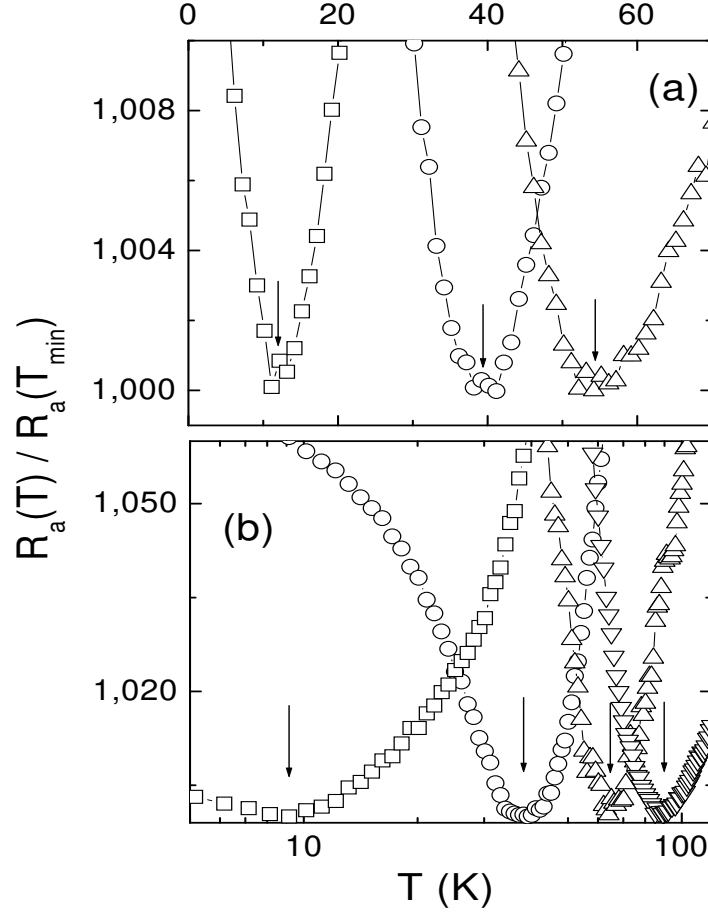


Figura 6.14: (a) Resistência basal reduzida $R_a(T)/R_a(T_{min})$ medida para a mostra HOPG-UC com campos $H = 300$ Oe ($\square$), $H = 400$ Oe ($\circ$) e $H = 500$ Oe ($\triangle$); (b) $R(T)/R(T_{min})$ para a amostra monocristalina Kish-1 com campos $H = 400$ Oe ($\square$), $H = 500$ Oe ($\circ$), $H = 750$ Oe ($\triangle$) e $H = 1$ kOe (∇). As setas indicam $T_{min}(H)$, que separa a fase isolante ($T < T_{min}$) da fase metálica ($T > T_{min}$).

onde A , B e H_c são parâmetros de ajuste. Estas equações são previstas pelas teorias [164, 165, 167] (veja equações 5.4 e 5.5) que assumem que $T_{min}(H)$ corresponde à temperatura de transição metal-isolante $T_{cmc}(H)$.

Mais especificamente, quando o campo magnético é aplicado perpendicularmente aos planos de grafite, abre-se um gap isolante no espectro de férmions de Dirac associado com o pareamento elétron-buraco. A abertura deste gap é responsável também pelo ferromagnetismo observado em grafite [194], porém não discutiremos este ponto nesta tese.

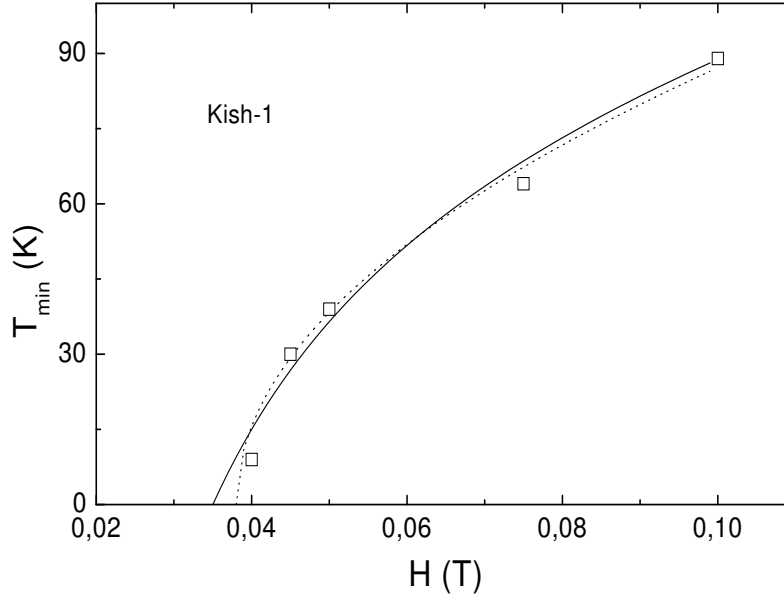


Figura 6.15: $T_{min}(H)$ obtido para a amostra Kish-1. A linha pontilhada foi obtida da equação (6.2) com parâmetros $A = 350 K/T^{1/2}$ e $H_c = 0,038 T$. A linha contínua foi obtida da equação (6.3) com parâmetros $B = 320 K/T^{1/2}$ e $H_c = 0,035 T$.

Se esta interpretação estiver correta, esta é a primeira observação da ocorrência da catálise magnética em um sistema de matéria condensada.

Uma outra semelhança importante entre o comportamento da resistência basal no grafite e outros sistemas bidimensionais é a possibilidade de se descrever $R_a(T, H)$ para campos baixos ou zero e para $T < T_{max}$ pela equação:

$$R(T) = R_0(H) + R_1(H) \exp[-E_a(H)/k_B T], \quad (6.4)$$

onde $R_0(H)$, $R_1(H)$ e $E_a(H)$ são parâmetros de ajuste. Esta equação foi sugerida por V. M. Pudalov [195] para explicar o comportamento da resistência de estruturas de Si-MOSFET de alta mobilidade. Esta dependência compreende dois processos de espalhamento, o primeiro é independente da temperatura enquanto o segundo descreve um espalhamento através de um gap de energia E_a . Esta equação implica um comportamento metálico termicamente ativado da resistência. Na figura 6.16 mostramos este comportamento para o grafite juntamente com outros sistemas bidimensionais.

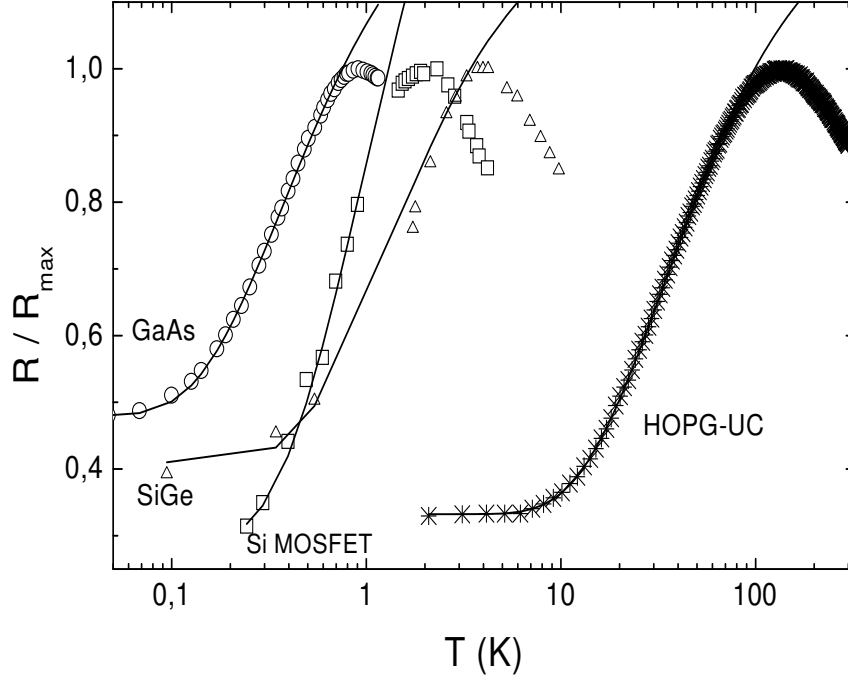


Figura 6.16: Resistência normalizada $R(T)/R(T_{max})$ na ausência de campo magnético para HOPG-UC (*), Si-MOSFET ($\square$) [133], GaAs ($\circ$) [139] e SiGe ($\triangle$) [196]. As linhas sólidas correspondem à equação (6.4) normalizada para $R(T_{max})$ com $R_0 = 0,97 \text{ m}\Omega$ (HOPG-UC), $12,955 \text{ k}\Omega/\square$ (Si-MOSFET), $1,59 \text{ k}\Omega/\square$ (GaAs) e $4,43 \text{ k}\Omega/\square$ (SiGe); $R_1(0) = 2,75 \text{ m}\Omega$ (HOPG-UC), $6,7 \text{ k}\Omega/\square$ (Si-MOSFET), $2,8 \text{ k}\Omega/\square$ (GaAs) e $9,1843 \text{ k}\Omega/\square$ (SiGe); $E_a = 34 \text{ K}$ (HOPG-UC), $0,97 \text{ K}$ (Si-MOSFET), $0,37 \text{ K}$ (GaAs) e $1,25 \text{ K}$ (SiGe).

Estimando a temperatura de Fermi $T_F = \pi \hbar^2 n_{2D} / 2k_B m^* = 7,5 \text{ K}$ (n_{2D} é a densidade de portadores em 2D e m^* é a massa efetiva) para SiGe ($p = 1,2 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $m^* = 0,22m_0$), $T_F = 1,1 \text{ K}$ para GaAs ($p = 0,3 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $m^* = 0,38m_0$), e $T_F = 6 \text{ K}$ para Si-MOSFET ($n = 0,88 \times 10^{11} \text{ cm}^{-2}$, $m^* = 0,2m_0$), e usando $T_F = 240 \text{ K}$ [125] para o grafite, pode-se ver na figura 6.16 que o comportamento exponencial metálico em todos estes sistemas ocorre para $T < T_F$. A razão $E_a/E_F = 0,14$ encontrada para a amostra HOPG-UC praticamente coincide com a encontrada para Si-MOSFET ($\sim 0,16$) e SiGe ($\sim 0,17$), enquanto que para GaAs estes valores diferem por um fator ~ 2 ($E_a/E_F = 0,34$).

O aumento exponencial da resistência com a temperatura e sua saturação a baixas temperaturas tem sido observado em vários sistemas com pares de Cooper, tais como filmes de

MoGe [158] e junções Josephson artificiais [180]. Na figura 6.17 mostramos este comportamento para um filme de MoGe [158] (veja também a figura 5.8) junto com o ajuste da equação 6.4 para estes dados.

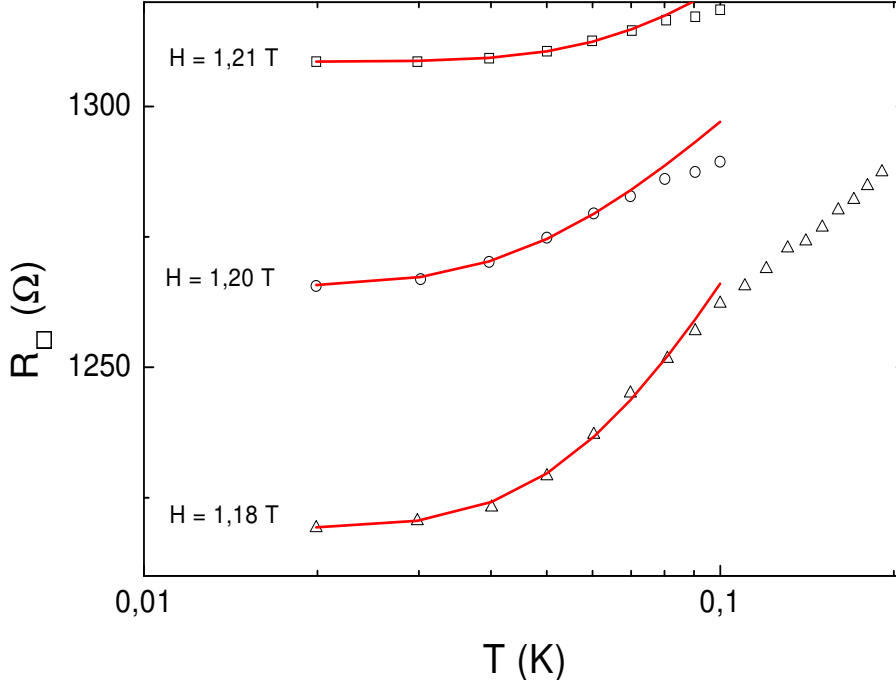


Figura 6.17: Resistência $R_{\square}(T)$ para uma amostra de MoGe em campo magnético da ref. [158], veja figura 5.8(a). As linhas sólidas correspondem à equação 6.4 com os seguintes parâmetros $R_0(H) = 1,3 \text{ k}\Omega/\square$, $R_1(H) = 107 \text{ }\Omega/\square$ e $E_a(H) = 0,2 \text{ K}$ para $H = 1,21 \text{ T}$; $R_0(H) = 1,265 \text{ k}\Omega/\square$, $R_1(H) = 110 \text{ }\Omega/\square$ e $E_a(H) = 0,125 \text{ K}$ para $H = 1,2 \text{ T}$ e $R_0(H) = 1,22 \text{ k}\Omega/\square$, $R_1(H) = 210 \text{ }\Omega/\square$ e $E_a(H) = 0,15 \text{ K}$ para $H = 1,18 \text{ T}$.

Por outro lado, enquanto E_a diminui com o aumento do campo paralelo em Si-MOSFET [197], e é independente do campo em GaAs [198], $E_a(H)$ em grafite aumenta com o campo. A figura 6.18 mostra este fato onde $R_a(T, H)$ para a amostra HOPG-UC cresce exponencialmente com a temperatura para campos baixos ou zero. Devido a ocorrência do mínimo em $R_a(T)$ em campos mais altos, não é possível chegar a uma conclusão sobre $E_a(H)$ para $H \geq 200 \text{ Oe}$.

O mecanismo por trás do gap E_a para campo zero e sua dependência com o campo não está claro ainda. Nós enfatizamos, entretanto, que se o espectro eletrônico do grafite

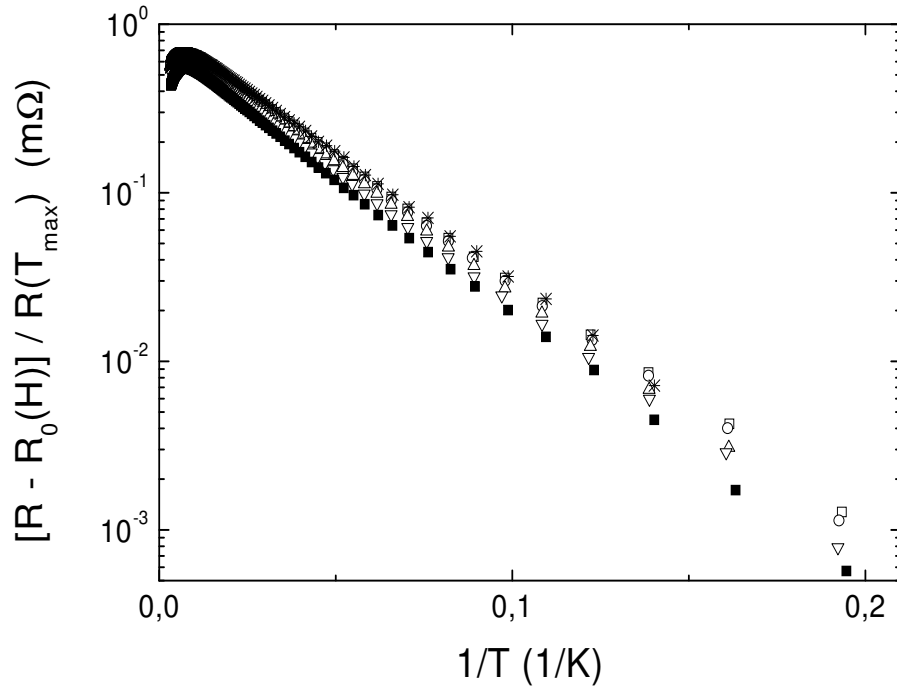


Figura 6.18: Resistência basal reduzida versus $1/T$ medida para a amostra HOPG-UC para campos $H = 0$ (*), $H = 100 \text{ Oe}$ ($\square$), $H = 500 \text{ Oe}$ ($\circ$), $H = 1 \text{ kOe}$ ($\triangle$), $H = 2 \text{ kOe}$ (∇) aplicados ao longo dos planos com um desalinhamento de $\gamma = 1,7^\circ$, e $H = 100 \text{ Oe}$ ($\blacksquare$) aplicado paralelo ao eixo-c ($\gamma = 90^\circ$), demonstrando o comportamento metálico termicamente ativado da resistência no grafite.

apresenta um gap para campo zero, como os experimentos sugerem, então a interpretação da transição metal-isolante no grafite baseado na catálise magnética precisaria ser revista.

Do exposto acima, acreditamos na ocorrência de supercondutividade a altas temperaturas, mesmo que localizada, em grafite.

Capítulo 7

Conclusão

Nesta segunda parte mostramos a possibilidade de ocorrência de supercondutividade local a altas temperaturas em grafite pirolítico altamente orientado. Encontramos uma transição do tipo supercondutor - isolante e, através de análises de escala para a resistência basal baseadas na teoria de transição de fase quântica supercondutor-isolante induzida por campo magnético, encontramos que o expoente $\alpha = 0,65 \pm 0,05$ é universal para as amostras de grafite estudadas. A grande similaridade entre grafite e outros sistemas bidimensionais demonstrando transição supercondutor-isolante pode indicar a ocorrência de correlações supercondutoras em grafite.

As recentes teorias relativísticas baseadas na catálise magnética propostas para explicar o estado isolante no grafite também foram verificadas.

Portanto há grandes evidências de que pelo menos alguns dos conceitos físicos propostos para descrever a transição tipo supercondutor-isolante induzida por campo magnético em vários sistemas bidimensionais podem também ser aplicados ao grafite.

Dopando grafite com enxofre, observamos através de medidas magnéticas supercondutividade local abaixo de 35 K. Recentemente, colaboradores na Faculdade de Engenharia Química de Lorena (FAENQUIL) observaram percolação em grafite dopado com enxofre por meios eletroquímicos com temperatura de transição supercondutora próxima a 230 K, porém as amostras apresentaram variação das propriedades com o tempo. Este resultado ainda não foi publicado.

Artigos publicados e em preparação

- 1. “Flux-line-lattice melting in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$ “, Y. Kopelevich, S. Moehlecke e J. H. S. Torres, *Physical Review B* **49**, 1495 (1994).
- 2. “Thermomagnetic flux-jump instabilities and second magnetization peak in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ high-Tc superconducting crystals“, Y. Kopelevich, S. Moehlecke, J. H. S. Torres, R. Ricardo da Silva e P. Esquinazi, *Journal of Low Temperature Physics* **116**, 261 (1999).
- 3. “Landau level quantization and possible superconducting instabilities in highly oriented pyrolytic graphite“, Y. Kopelevich, V. V. Lemanov, S. Moehlecke e J. H. S. Torres, *Physics of the Solid State* **41**, 1959 (1999).
- 4. “Ferromagnetic- and superconducting-like behavior of graphite“, Y. Kopelevich, P. Esquinazi, J. H. S. Torres e S. Moehlecke, *Journal of Low Temperature Physics* **119**, 691 (2000).
- 5. “Magnetic-field-driven superconductor-insulator-type transition in graphite“, H. Kempa, Y. Kopelevich, F. Mrowka, A. Setzer, J. H. S. Torres, R. Höhne e P. Esquinazi, *Solid State Communications* **115**, 539 (2000).
- 6. “Indication of Superconductivity at 35K in graphite-sulfur composites“, R. Ricardo da Silva, J. H. S. Torres e Y. Kopelevich, *Physical Review Letters* **87**, 147001 (2001).
- 7. “High-Temperature Superconductivity in Graphite-Sulfur Composites: Theoretical Analysis“, D. S. Galvão, B. Laks, R. Ricardo da Silva, J. H. S. Torres e Y. Kopelevich, *Material Research Society Symposium Proceedings*, Vol. 689, p. E5.2.1 (2002).
- 8. “Evidence for internal field in graphite: a conduction electron spin-resonance study“, M. S. Sercheli, Y. Kopelevich, R. Ricardo da Silva, J. H. S. Torres e C. Rettori, *Solid State Communications* **121**, 579 (2002).
- 9. “Metal-Insulator-Metal Transitions, Superconductivity and Magnetism in Graphite“,

Y. Kopelevich, P. Esquinazi, J. H. S. Torres, R. Ricardo da Silva, H. Kempa, F. Mrowka and R. Ocana, a ser publicado em “Studies of High- T_c Superconductors“, Vol. **44-45**, Ed. por A. V. Narlikar, Nova Sci. Pub., New York.

- 10. “Vortex Lattice in $\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{CaCu}_2\text{O}_8$ Well Above the First-Order Phase-Transition Boundary“, J. H. S. Torres, R. Ricardo da Silva, S. Moehlecke and Y. Kopelevich, Solid State Communications (na prensa).

Referências Bibliográficas

- [1] J. G. Bednorz and K. A. Müller, Z. Phys. **64**, 189 (1986).
- [2] A. A. Abrikosov, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **32**, 1442 (1957), [Sov. Phys. JETP **5**, 1174 (1957)].
- [3] R. J. Cava, J. Am. Ceram. Soc. **83**, 5 (2000).
- [4] E. H. Brandt, Rep. Prog. Phys. **58**, 1465 (1995).
- [5] W. E. Lawrence and S. Doniach, *Proc. 12th Int. Conf. Low Temp. Phys.* (Academic Press of Japan, Kyoto, 1971), p. 361.
- [6] D. R. Nelson, Phys. Rev. Lett. **60**, 1973 (1988).
- [7] E. H. Brandt, Phys. Rev. Lett. **63**, 1106 (1989).
- [8] A. I. Larkin and Y. V. Ovchinnikov, J. Low Temp. Phys. **34**, 409 (1979).
- [9] T. Giamarchi and P. L. Doussal, Phys. Rev. B **55**, 6577 (1997).
- [10] T. Giamarchi and P. L. Doussal, Phys. Rev. B **52**, 1242 (1995).
- [11] L. I. Glazman and A. E. Koshelev, Phys. Rev. B **43**, 2835 (1991).
- [12] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity* (McGraw Hill, Inc., New York, 1996).
- [13] A. I. Larkin, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **58**, 1466 (1970), [Sov. Phys. JETP **31**, 784 (1970)].
- [14] P. W. Anderson, Phys. Rev. Lett. **9**, 309 (1962).
- [15] P. W. Anderson and Y. B. Kim, Rev. Mod. Phys. **36**, 39 (1964).

- [16] J. Bardeen and M. J. Stephen, Phys. Rev. **140**, A1197 (1965).
- [17] M. P. A. Fisher, Phys. Rev. Lett. **62**, 1415 (1989).
- [18] D. S. Fisher, M. P. A. Fisher, and D. A. Huse, Phys. Rev. B **43**, 130 (1991).
- [19] C. P. Bean, Phys. Rev. Lett. **8**, 250 (1962).
- [20] Y. Yeshurun, A. P. Malozemoff, and A. Shaulov, Rev. Mod. Phys. **68**, 911 (1996).
- [21] C. J. van der Beek, M. Konczykowski, T. W. Li, P. H. Kes, and W. Benoit, Phys. Rev. B **54**, 792 (1996).
- [22] R. Puzniak, J. Ricketts, J. Schützmann, G. D. Gu, and N. Koshizuka, Phys. Rev. B **52**, 7042 (1995).
- [23] L. N. Bulaevskii, V. M. Vinokur, and M. P. Maley, Phys. Rev. Lett. **77**, 936 (1996).
- [24] V. G. Kogan, M. M. Fang, and S. Mitra, Phys. Rev. B **38**, 11958 (1988).
- [25] P. L. Gammel, L. F. Schneemeyer, J. V. Waszczak, and D. J. Bishop, Phys. Rev. Lett. **61**, 1666 (1988).
- [26] E. Zeldov, D. Majer, M. Konczykowski, V. B. Geshkenbein, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, Nature **375**, 373 (1995).
- [27] H. Pastoriza, M. F. Goffman, A. Arribere, and F. de la Cruz, Phys. Rev. Lett. **72**, 2951 (1994).
- [28] A. Schilling, R. A. Fisher, N. E. Phillips, U. Welp, D. Dasgupta, W. K. Kwok, and G. W. Crabtree, Nature **382**, 791 (1996).
- [29] U. Welp, J. A. Fendrich, W. K. Kwok, G. W. Crabtree, and B. W. Veal, Phys. Rev. Lett. **76**, 4809 (1996).
- [30] T. Hanaguri, T. Tsuboi, A. Maeda, T. Nishizaki, N. Kobayashi, Y. Kotaka, J. Shimoyama, and K. Kishio, Physica C **256**, 111 (1996).

- [31] N. Avraham, B. Khaykovich, Y. Myasoedov, M. Rappaport, H. Shtrikman, D. E. Feldman, E. Zeldov, T. Tamegai, P. H. Kes, M. Li, M. Konczykowski, and K. van der Beek, *Physica C* **369**, 36 (2002).
- [32] R. E. Hetzel, A. Sudbo, and D. A. Huse, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 518 (1992).
- [33] M. J. W. Dodgson, V. B. Geshkenbein, H. Nordborg, and G. Blatter, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 837 (1998).
- [34] G. Blatter, V. Geshkenbein, A. Larkin, and H. Nordborg, *Phys. Rev. B* **54**, 72 (1996).
- [35] L. N. Bulaevskii, M. Ledvij, and V. G. Kogan, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 3773 (1992).
- [36] Y. Kopelevich and P. Esquinazi, *Solid State Commun.* **114**, 241 (2000).
- [37] M. Nideröst, A. Suter, P. Visani, A. C. Mota, and G. Blatter, *Phys. Rev. B* **53**, 9286 (1996).
- [38] D. R. Nelson and B. I. Halperin, *Phys. Rev. B* **19**, 2457 (1979).
- [39] V. Gotcheva and S. Teitel, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 2126 (2001).
- [40] A. B. Pippard, *Philos. Mag.* **19**, 217 (1969).
- [41] M. Isino, T. Kobayashi, N. Toyota, T. Fukase, and Y. Muto, *Phys. Rev. B* **38**, 4457 (1988).
- [42] V. N. Kopylov, A. E. Koshelev, I. F. Schegolev, and T. G. Togonidze, *Physica C* **170**, 291 (1990).
- [43] N. Chikumoto, M. Konczykowski, N. Motohira, and A. P. Malozemoff, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1260 (1992).
- [44] M. Däumling, J. M. Seuntjens, and D. C. Larbalestier, *Nature* **346**, 332 (1990).
- [45] L. Krusin-Elbaum, L. Civale, V. M. Vinokur, and F. Holzberg, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2280 (1992).
- [46] Y. Yeshurun, N. Nontemps, L. Burlachkov, and A. Kapitulnik, *Phys. Rev. B* **49**, 1548 (1994).

- [47] G. Yang, P. Shang, S. D. Sutton, I. P. Jones, J. S. Abell, and C. E. Gough, Phys. Rev. B **48**, 4054 (1993).
- [48] T. Tamegai, Y. Iye, I. Oguro, and K. Kishio, Physica C **213**, 33 (1993).
- [49] D. Ertas and D. R. Nelson, Physica C **272**, 79 (1996).
- [50] D. Giller, A. Shaulov, R. Prozorov, Y. Abulafia, Y. Wolfus, L. Burlachkov, Y. Yeshurun, E. Zeldov, V. M. Vinokur, J. L. Peng, and R. L. Greene, Phys. Rev. Lett. **79**, 2542 (1997).
- [51] V. Vinokur, B. Khaykovich, E. Zeldov, M. Konczykowski, R. A. Doyle, and P. H. Kes, Physica C **295**, 209 (1998).
- [52] S. Sarkar, D. Pal, P. L. Paulose, S. Ramakrishnan, A. K. Grover, C. V. Tomy, D. Dasgupta, B. K. Sarma, G. Balakrishnan, and D. M. Paul, Phys. Rev. B **64**, 144510 (2001).
- [53] B. Khaykovich, E. Zeldov, D. Majer, T. W. Li, P. H. Kes, and M. Konczykowski, Phys. Rev. Lett. **76**, 2555 (1996).
- [54] T. Nishizaki, T. Naito, and N. Kobayashi, Phys. Rev. B **58**, 11169 (1998).
- [55] E. M. Forgan, M. T. Wylie, S. Lloyd, S. L. Lee, and R. Cubitt, Proc. LT-21: Czechoslovak J. Phys. **46**, 1571 (1996).
- [56] S. T. Johnson, E. M. Forgan, S. H. Lloyd, C. M. Aegerter, S. L. Lee, R. Cubitt, P. G. Kealey, C. Ager, S. Tajima, A. Rykov, and D. M. Paul, Phys. Rev. Lett. **82**, 2792 (1999).
- [57] Y. Kopelevich and P. Esquinazi, J. Low Temp. Phys. **113**, 1 (1998).
- [58] Y. Kopelevich, S. Moehlecke, J. H. S. Torres, R. R. da Silva, and P. Esquinazi, J. Low Temp. Phys. **116**, 261 (1999).
- [59] P. Esquinazi, A. Setzer, D. Fuchs, Y. Kopelevich, E. Zeldov, and C. Assmann, Phys. Rev. B **60**, 12454 (1999).
- [60] P. S. Swartz and C. P. Bean, J. Appl. Phys. **39**, 4991 (1968).

- [61] E. R. Nowak, O. W. Taylor, L. Liu, H. M. Jaeger, and T. I. Selinder, Phys. Rev. B **55**, 11702 (1997).
- [62] A. Gerber, J. N. Li, Z. Tarnawski, J. J. M. Franse, and A. A. Menovsky, Phys. Rev. B **47**, 6047 (1993).
- [63] K.-H. Müller and C. Andrikidis, Phys. Rev. B **49**, 1294 (1994).
- [64] R. G. Mints and A. L. Rakhmanov, Rev. Mod. Phys. **53**, 551 (1981).
- [65] H. P. Wiesinger, F. M. Sauerzopf, and H. W. Weber, Physica C **203**, 121 (1992).
- [66] M. Däumling and D. C. Larbalestier, Phys. Rev. B **40**, 9350 (1989).
- [67] R. Wortis and D. A. Huse, Phys. Rev. B **54**, 12413 (1996).
- [68] Y. Kopelevich, F. Ciovacco, P. Esquinazi, and M. Lorenz, Phys. Rev. Lett. **80**, 4048 (1998).
- [69] Y. Kopelevich, F. Ciovacco, P. Esquinazi, and H. F. Braun, J. Low Temp. Phys. **111**, 11 (1998).
- [70] L. J. van der Pauw, Philips Technical Review **20**, 220 (1958/59).
- [71] L. J. van der Pauw, Phillips Research Reports **13**, 1 (1958).
- [72] L. Onsager, Phys. Rev. **37**, 405 (1931).
- [73] Y. Kopelevich, V. V. Makarov, and L. M. Sapozhnikova, Sov. Phys. Solid State **26**, 1607 (1984).
- [74] R. R. da Silva, *Tese de Mestrado: Crescimento e caracterização de monocristais de $Bi_2Sr_2Ca_1Cu_2O_{8+\delta}$ com alta qualidade* (Faculdade de Engenharia Química de Lorena, Lorena - SP, 1998).
- [75] W. Wu, F. Li, Y. Jia, G. Zhou, Y. Qian, Q. Qin, and Y. Zhang, Physica C **213**, 133 (1993).
- [76] Y. Kopelevich, V. V. Makarov, and S. Moehlecke, Physica C **277**, 225 (1997).

- [77] S. Moehlecke, C. H. Westphal, M. S. Torikachvili, J. A. Davis, and I. C. L. Torriani, *Physica C* **211**, 133 (1993).
- [78] J. R. Clem, *Physica C* **153-155**, 50 (1988).
- [79] M. Nideröst, R. Frassanito, M. Saalfrank, A. C. Mota, G. Blatter, V. N. Zavaritsky, T. W. Li, and P. H. Kes, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 3231 (1998).
- [80] L. Burlachkov, *Phys. Rev. B* **47**, 8056 (1993).
- [81] S. Anders, R. Parthasarathy, H. M. Jaeger, P. Guptasarma, D. G. Hinks, and R. van Veen, *Phys. Rev. B* **58**, 6639 (1998).
- [82] E. Zeldov, A. I. Larkin, V. B. Geshkenbein, M. Konczykowski, D. Majer, B. Khaykovich, V. M. Vinokur, and H. Shtrikman, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1428 (1994).
- [83] H. J. Jensen, A. Brass, and A. J. Berlinsky, *Phys. Rev. Lett.* **60**, 1676 (1988).
- [84] F. Nori, *Science* **271**, 1373 (1996).
- [85] T. Matsuda, K. Harada, H. Kasai, O. Kamimura, and A. Tonomura, *Science* **271**, 1393 (1996).
- [86] T. Tsuboi, T. Hanaguri, and A. Maeda, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4550 (1998).
- [87] A. E. Koshelev, *Physica C* **198**, 371 (1992).
- [88] A. E. Koshelev and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 3580 (1994).
- [89] Y. M. Wang, M. S. Fuhrer, A. Zettl, S. Ooi, and T. Tamegai, *Phys. Rev. Lett.* **86**, 3626 (2001).
- [90] Y. Kopelevich and P. Esquinazi, *Solid State Commun.* **122**, 33 (2002).
- [91] A. Gurevich and V. M. Vinokur, *Phys. Rev. Lett.* **83**, 3037 (1999).
- [92] Y. Eltsev, K. Nakao, S. Shibata, and N. Koshizuka, *Physica C* **341-348**, 1107 (2000).
- [93] D. López, W. K. Kwok, H. Safar, R. J. Olsson, A. M. Petrean, L. Paulius, and G. W. Crabtree, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1277 (1999).

- [94] A. I. Larkin, M. C. Marchetti, and V. M. Vinokur, Phys. Rev. Lett. **75**, 2992 (1995).
- [95] D. T. Fuchs, E. Zeldov, D. Majer, R. A. Doyle, T. Tamegai, S. Ooi, and M. Koncinski, Phys. Rev. B **54**, 796 (1996).
- [96] G. Blatter, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein, A. I. Larkin, and V. M. Vinokur, Rev. Mod. Phys. **66**, 1125 (1994).
- [97] A. E. Koshelev and P. H. Kes, Phys. Rev. B **48**, 6539 (1993).
- [98] O. S. Wagner, G. Burkard, V. B. Geshkenbein, and G. Blatter, Phys. Rev. Lett. **81**, 906 (1998).
- [99] Y. Paltiel, E. Zeldov, Y. Myasoedov, M. L. Rappaport, G. Jung, S. Bhattacharya, M. J. Higgins, Z. L. Xiao, E. Y. Andrei, P. L. Gammel, and D. J. Bishop, Phys. Rev. Lett. **85**, 3712 (2000).
- [100] S. Bhattacharya and M. J. Higgins, Phys. Rev. Lett. **70**, 2617 (1993).
- [101] C. Tang, X. Ling, S. Bhattacharya, and P. M. Chaikin, Europhys. Lett. **35**, 597 (1996).
- [102] E. Granato, T. Ala-Nissila, and S. C. Ying, Phys. Rev. B **62**, 11834 (2000).
- [103] D. R. Nelson and H. S. Seung, Phys. Rev. B **39**, 9153 (1989).
- [104] C. Carraro and D. S. Fisher, Phys. Rev. B **51**, 534 (1995).
- [105] H. Safar, P. L. Gammel, D. A. Huse, S. N. Majumdar, L. F. Schneemeyer, D. J. Bishop, D. López, G. Nieva, and F. de la Cruz, Phys. Rev. Lett. **72**, 1272 (1994).
- [106] A. K. Nguyen and A. Sudbo, Phys. Rev. B **58**, 2802 (1998).
- [107] M. S. Dresselhaus, G. Dresselhaus, K. Sugihara, I. L. Spain, and H. A. Goldberg, *Graphite Fibers and Filaments* (Springer-Verlag, Berlin, 1988).
- [108] H. W. Kroto, J. R. Heath, S. C. O'Brien, R. F. Curl, and R. E. Smalley, Nature **318**, 162 (1985).
- [109] S. Iijima, Nature **354**, 56 (1991).

- [110] C. L. Mantell, *Carbon and Graphite Handbook* (John Wiley and Sons, New York, 1968).
- [111] G. R. Hennig, *Progress in Inorganic Chemistry* (Interscience Publishers, Inc., New York, 1959), Vol. 1.
- [112] N. B. Hannay, T. H. Geballe, B. T. Matthias, K. Andres, P. Schmidt, and D. MacNair, Phys. Rev. Lett. **14**, 225 (1965).
- [113] I. T. Belash, A. D. Bronnikov, O. V. Zharikov, and A. V. Palnichenko, Solid State Commun. **64**, 1445 (1987).
- [114] I. T. Belash, A. D. Bronnikov, O. V. Zharikov, and A. V. Palnichenko, Solid State Commun. **69**, 921 (1989).
- [115] R. A. Jishi and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. B **45**, 12465 (1992).
- [116] T. T. M. Palstra, O. Zhou, Y. Iwasa, P. Sulewski, R. Fleming, and B. Zegarski, Solid State Commun. **93**, 327 (1995).
- [117] O. Grunnarsson, Rev. Mod. Phys. **69**, 575 (1997).
- [118] J. Nagamatsu, N. Nakagawa, T. Muranaka, Y. Zenitani, and J. Akimitsu, Nature **410**, 63 (2001).
- [119] Y. Kopelevich, P. Esquinazi, J. H. S. Torres, and S. Moehlecke, J. Low Temp. Phys. **119**, 691 (2000).
- [120] R. R. da Silva, J. H. S. Torres, and Y. Kopelevich, Phys. Rev. Lett. **87**, 147001 (2001).
- [121] S. Moehlecke, P.-C. Ho, and M. B. Maple, Phil. Magazine B **82**, 1335 (2002).
- [122] Y. Hai-Peng, W. Hai-Hu, Z. Zhi-Wen, and L. Shi-Liang, Chin. Phys. Lett. **18**, 1648 (2001).
- [123] Y. Kopelevich, V. V. Lemanov, S. Moehlecke, and J. H. S. Torres, Physics of the Solid State **41**, 1959 (1999).
- [124] W. N. Reynolds, *Physical Properties of Graphite* (Elsevier Publishing Co. Ltd., Amsterdam, 1968).

- [125] M. S. Dresselhaus and G. Dresselhaus, *Adv. Phys.* **30**, 139 (1981).
- [126] E. Abrahams, P. W. Anderson, D. C. Licciardello, and T. V. Ramakrishnan, *Phys. Rev. Lett.* **42**, 673 (1979).
- [127] B. L. Altshuler, A. G. Aronov, and P. A. Lee, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1288 (1980).
- [128] G. J. Dolan and D. D. Osheroff, *Phys. Rev. Lett.* **43**, 721 (1979).
- [129] D. J. Bishop, D. C. Tsui, and R. C. Dynes, *Phys. Rev. Lett.* **44**, 1153 (1980).
- [130] M. J. Uren, R. A. Davies, and M. Pepper, *J. Phys. C* **13**, L985 (1980).
- [131] A. Gold, *Phys. Rev. B* **44**, 8818 (1991).
- [132] S. V. Kravchenko, W. E. Mason, G. E. Bowker, J. E. Furneaux, V. M. Pudalov, and M. D'Iorio, *Phys. Rev. B* **51**, 7038 (1995).
- [133] D. Simonian, S. V. Kravchenko, M. P. Sarachik, and V. M. Pudalov, *Phys. Rev. Lett.* **79**, 2304 (1997).
- [134] S. V. Kravchenko, G. V. Kravchenko, J. E. Furneaux, V. M. Pudalov, and M. D'Iorio, *Phys. Rev. B* **50**, 8039 (1994).
- [135] S. V. Kravchenko, D. Simonian, M. P. Sarachik, W. E. Mason, and J. E. Furneaux, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 4938 (1996).
- [136] S. V. Kravchenko, D. Simonian, M. P. Sarachik, A. D. Kent, and V. M. Pudalov, *Phys. Rev. B* **58**, 3553 (1998).
- [137] S. V. Kravchenko, D. Simonian, K. Mertes, M. P. Sarachik, and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev. B* **59**, 12740 (1999).
- [138] S. V. Kravchenko and T. M. Klapwijk, *Phys. Rev. Lett.* **84**, 2909 (2000).
- [139] Y. Hanein, U. Meirav, D. Shabar, C. C. Li, D. C. Tsui, and H. Shtrikman, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1288 (1998).
- [140] M. Y. Simmons, A. R. Hamilton, M. Pepper, E. H. Linfield, P. D. Rose, D. A. Ritchie, A. K. Savchenko, and T. G. Griffiths, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1292 (1998).

- [141] P. Phillips, Y. Wan, I. Martin, S. Knysh, and D. Dalidovich, *Nature* **395**, 253 (1998).
- [142] A. M. Goldman and N. Markovic, *Physics Today* **51(11)**, 39 (1998).
- [143] P. W. Anderson, *Physical Review* **109**, 1492 (1958).
- [144] B. G. Orr, H. M. Jaeger, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **32**, 7586 (1985).
- [145] B. G. Orr, H. M. Jaeger, A. M. Goldman, and C. G. Kuper, *Phys. Rev. Lett.* **56**, 378 (1986).
- [146] H. M. Jaeger, D. B. Haviland, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **34**, 4920 (1986).
- [147] D. B. Haviland, Y. Liu, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 2180 (1989).
- [148] H. M. Jaeger, D. B. Haviland, B. G. Orr, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **40**, 182 (1989).
- [149] N. Markovic, C. Christiansen, and A. M. Goldman, *Phys. Rev. Lett.* **81**, 5217 (1998).
- [150] A. F. Hebard and M. A. Paalanen, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 927 (1990).
- [151] M. A. Paalanen, A. F. Hebard, and R. R. Ruel, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 1604 (1992).
- [152] A. Yazdani and A. Kapitulnik, *Phys. Rev. Lett.* **74**, 3037 (1995).
- [153] G. T. Seidler, T. F. Rosenbaum, and B. W. Veal, *Phys. Rev. B* **45**, 10162 (1992).
- [154] H. S. J. van der Zant, F. C. Fritschy, W. J. Elion, L. J. Geerligs, and J. E. Mooij, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 2971 (1992).
- [155] M. P. A. Fisher, G. Grinstein, and S. M. Girvin, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 587 (1990).
- [156] M. P. A. Fisher, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 923 (1990).
- [157] S. M. Girvin, *Science* **274**, 524 (1996).
- [158] N. Mason and A. Kapitulnik, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 5341 (1999).
- [159] M. Cha, M. P. A. Fisher, S. M. Girvin, M. Wallin, and A. P. Young, *Phys. Rev. B* **44**, 6883 (1991).

- [160] Y. Liu, A. McGreer, B. Nease, D. B. Haviland, G. Martinez, J. W. Halley, and A. M. Goldman, Phys. Rev. Lett. **67**, 2068 (1991).
- [161] P. Phillips, S. Sachdev, S. Kravchenko, and A. Yazdani, Proc. Natl. Acad. Sci. **96**, 9983 (1999).
- [162] E. Fradkin, *Field Theories of Condensed Matter Systems* (Addison-Wesley, Redwood City, CA, 1991).
- [163] P. R. Wallace, Phys. Rev **71**, 622 (1947).
- [164] D. V. Khveshchenko, Phys. Rev. Lett. **87**, 206401 (2001).
- [165] D. V. Khveshchenko, Phys. Rev. Lett. **87**, 246802 (2001).
- [166] J. González, F. Guinea, and M. A. H. Vozmediano, Phys. Rev. B **63**, 134421 (2001).
- [167] E. V. Gorbar, V. P. Gusynin, V. A. Miransky, and I. A. Shovkovy, Phys. Rev. B **66**, 045108 (2002).
- [168] G. Baskaran and S. A. Jafari, Phys. Rev. Lett. **89**, 016402 (2002).
- [169] J. González, F. Guinea, and M. A. H. Vozmediano, Phys. Rev. Lett. **77**, 3589 (1996).
- [170] L. Balents and M. P. A. Fisher, Phys. Rev. B **55**, 11973 (1997).
- [171] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, and I. A. Shovkovy, Phys. Rev. Lett. **73**, 3499 (1994).
- [172] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, and I. A. Shovkovy, Phys. Rev. D **52**, 4718 (1995).
- [173] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, and I. A. Shovkovy, Phys. Rev. D **52**, 4747 (1995).
- [174] V. P. Gusynin, V. A. Miransky, and I. A. Shovkovy, Nucl. Phys. B **462**, 249 (1996).
- [175] B. I. Halperin and T. M. Rice, Rev. Mod. Phys. **40**, 755 (1968).
- [176] A. A. Abrikosov, J. Less-Common Metals **62**, 451 (1978).
- [177] N. B. Brandt, A. S. Kotosonov, S. V. Kuvshinnikov, and M. V. Semenov, Sov. Phys. JETP **52**, 476 (1980).

- [178] P. Esquinazi, A. Setzer, R. Höhne, C. Semmelhack, Y. Kopelevich, D. Spemann, T. Butz, B. Kohlstrunk, and M. Lösche, Phys. Rev. B **66**, 024429 (2002).
- [179] G. Deutscher, O. Entin-Wohlman, and Y. Shapira, Phys. Rev. B **22**, 4264 (1980).
- [180] H. S. J. van der Zant, W. J. Elion, L. J. Geerligs, and J. E. Mooij, Phys. Rev. B **54**, 10081 (1996).
- [181] D. Das and S. Doniach, Phys. Rev. B **60**, 1261 (1999).
- [182] D. Das and S. Doniach, Phys. Rev. B **64**, 134511 (2001).
- [183] D. Dalidovich and P. Phillips, Phys. Rev. Lett. **84**, 737 (2000).
- [184] D. Dalidovich and P. Phillips, Phys. Rev. B **64**, 052507 (2001).
- [185] D. Dalidovich and P. Phillips, Phys. Rev. B **64**, 184511 (2001).
- [186] P. Phillips, Phys. Rev. B **64**, 113202 (2001).
- [187] M. V. Feigelman and A. I. Larkin, Chem. Phys. **235**, 107 (1998).
- [188] M. V. Feigelman, A. I. Larkin, and M. A. Skvortsov, Phys. Rev. Lett. **86**, 1869 (2001).
- [189] H. Kempa, P. Esquinazi, and Y. Kopelevich, Phys. Rev. B **65**, 241101 (2002).
- [190] B. T. Kelly, *Physics of Graphite* (Applied Science, London, 1981).
- [191] S. J. Williamson, S. Foner, and M. S. Dresselhaus, Phys. Rev. **140**, A1429 (1965).
- [192] M. P. Sharma, L. G. Johnson, and J. W. McClure, Phys. Rev. B **9**, 2467 (1974).
- [193] H. Kempa, H. C. Semmelhack, P. Esquinazi, and Y. Kopelevich, CondMat/0206565 (2002).
- [194] M. S. Sercheli, Y. Kopelevich, R. R. da Silva, J. H. S. Torres, and C. Rettori, Solid State Commun. **121**, 579 (2002).
- [195] V. M. Pudalov, JETP Lett. **66**, 175 (1997).

- [196] P. T. Coleridge, R. L. Williams, Y. Feng, and P. Zawadzki, Phys. Rev. B **56**, 12764 (1997).
- [197] V. M. Pudalov, G. Brunthaler, A. Prinz, and G. Bauer, Physica B **251**, 697 (1998).
- [198] X. P. A. Gao, J. A. P. Mills, A. P. Ramirez, L. N. Pfeiffer, and K. W. West, Phys. Rev. Lett. **88**, 166803 (2002).