

UNIVERSIDADE DE SÃO PAULO

INSTITUTO DE FÍSICA

**MAGNETO-RESISTÊNCIA EM BAIXOS E ALTOS CAMPOS
MAGNÉTICOS EM SUPERCONDUTORES GRANULARES**

MARIA JOSÉ RAMOS SANDIM

Orientador: Prof. Dr. Renato de Figueiredo Jardim

Tese apresentada ao Instituto de Física da
Universidade de São Paulo para a obtenção do
título de Doutor em Ciências.

Banca examinadora:

Prof. Dr. Renato de Figueiredo Jardim (IFUSP)

Prof. Dr. Carlos Castilla Becerra (IFUSP)

Prof. Dr. Carlos Rettori (UNICAMP)

Prof. Dr. Enzo Granato (INPE)

Prof. Dr. José Albino Oliveira de Aguiar (UFPE)

Renato de Figueiredo Jardim

Silvio Canuto
Prof. Dr. Roberto Acelyo Canuto
Presidente da Comissão de Pós-Graduação

de 22/08

São Paulo



SBI-IFUSP



305M810T3184

S 214 m
P. 1

FICHA CATALOGRÁFICA

Preparada pelo Serviço de Biblioteca e Informação
do Instituto de Física da Universidade de São Paulo

Sandim, Maria José Ramos

Magneto-resistência em Baixos e Altos Campos
Magnéticos em Supercondutores Granulares.
São Paulo, 1999.

Tese (Doutoramento) - Universidade de São Paulo.
Instituto de Física - Departamento de Física dos Materiais
e Mecânica

Orientador: Prof. Dr. Renato de Figueiredo Jardim
Área de Concentração: Física do Estado Sólido

Unitermos: 1. Supercondutividade; 2. Magneto-resistência;
3. Granularidade; 4. Acoplamento Josephson.

USP/IF/SBI-053/99

*Dedico esta Tese ao meu esposo Hugo e
ao meu filho Fernando por todo apoio e
incentivo.*

Resumo

Neste trabalho foram realizadas medidas de transporte em campos magnéticos aplicados no intervalo $0 \leq H \leq 18$ T em supercondutores granulares $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17$ e 0.18 , constituídos de ilhas supercondutoras embutidas em uma matriz isolante e pertencentes a uma transição do tipo supercondutor-isolante (SI). Amostras que apresentam coerência de fase supercondutora via acoplamento Josephson em temperaturas abaixo de T_{cJ} mostraram ser sensíveis a aplicação de baixos campos magnéticos ($0 < H \leq 200$ Oe) e os resultados de magneto-resistência $R(T,H)$ permitiram concluir que o movimento de vórtices de Josephson é governado por uma energia de ativação intergranular do tipo $U_J(T,H) \propto (1-T/T_{cJ})(H^{0.6})$. Foi ainda observado que a supressão da fase do parâmetro de ordem supercondutor ocorre preferencialmente nos contornos de grão nesses supercondutores granulares. Nas amostras constituídas de ilhas supercondutoras isoladas e pertencentes ao lado dielétrico de uma transição SI, observou-se um aumento abrupto na resistência elétrica $R(T,H=0)$ abaixo da temperatura crítica supercondutora T_{ci} . A aplicação de campos magnéticos intensos promove a supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor e resulta em uma magneto-resistência negativa em $T < T_{ci}$. Uma análise quantitativa do excesso de resistência elétrica ΔR em $T < T_{ci}$ revela que em $0.6 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$ como previsto pela teoria semi-fenomenológica de dois-fluidos. Em temperaturas $(T/T_{ci}) < 0.6$, as medidas de magneto-transporte mostraram ser sensíveis a alterações provocadas pela aplicação de campo magnético na rede de vórtices das ilhas supercondutoras. Estas alterações são discutidas dentro do cenário de óxidos supercondutores que apresentam alta anisotropia.

Abstract

We have performed transport measurements in applied magnetic fields as high as 18 T on granular superconductors of $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$; $x = 0.17, 0.18$. These materials are comprised of small superconducting islands embedded in a non-superconducting host and belong to a superconductor-insulator transition (SI). Transport properties of samples which show long-range phase ordering through Josephson coupling below a given temperature T_{ci} are very sensitive to applied magnetic fields as low as 200 Oe. The results of magnetoresistance $R(T,H)$ enabled us to conclude that dissipation due to Josephson flux flow is governed by an intergranular activation energy given by $U_j(T,H) \propto (1-T/T_{ci})(H^{0.6})$. We have also observed that the phase of the superconducting order parameter is depressed at intergranular regions or more appropriately at the grain boundaries in these granular materials. In samples that superconducting islands are essentially isolated, an abrupt increase of the electrical resistance $R(T,H)$ below the superconducting transition temperature T_{ci} occurs. The application of high magnetic fields suppresses the amplitude of the superconducting order parameter and an appreciable magnetoresistance below T_{ci} is observed. A quantitative analysis of the excess of the electrical resistance ΔR below T_{ci} reveals that $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$; $0.6 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$; as predicted by the semi-phenomenological two-fluid theory of superconductivity. At temperatures $(T/T_{ci}) < 0.6$ and under high applied magnetic fields, transport measurements showed to be very sensitive to changes in the dissipation of the vortex lattice of the isolated superconducting islands. These changes are discussed within a scenario of high anisotropic layered superconductors.

Agradecimentos

Ao Dr. Renato de Figueiredo Jardim, pela orientação deste trabalho e pela importante contribuição a minha formação profissional.

Ao Dr. Alex Hugo Lacerda pela oportunidade da realização de medidas em altos campos magnéticos durante meu estágio no Los Alamos National Laboratory, NM, USA.

Ao Dr. Stefano Spagna, Quantum Design, CA, USA, pela colaboração em relação às medidas de magneto-resistência.

Ao Dr. Carlos Henrique Westphal, pelo incentivo e pela colaboração durante a realização da parte experimental.

Ao Departamento de Engenharia de Materiais da Faculdade de Engenharia Química de Lorena (DEMAR-FAENQUIL), pelo apoio técnico dispensado e pela concessão de meu afastamento parcial para a realização deste trabalho.

A Paulo Atsushi Suzuki, pela colaboração na etapa de preparação das amostras e nas medidas de difração de raios-X.

A Carlos Yujiro Shigue, pela elaboração de alguns *softwares* necessários para o tratamento de dados.

À Márcia Tsuyama Escote, pelo companheirismo e constante apoio.

À Sarita Lea Montagna, do CTM-SP, pelo auxílio na etapa de caracterização microestrutural das amostras com o auxílio do microscópio eletrônico de varredura.

A Walter Soares de Lima e Olímpio Ribeiro da Fonseca Neto (IF-USP) pelo suporte técnico durante a realização dos experimentos.

À CAPES, em especial ao Programa PICDT, pela concessão de uma bolsa parcial.

Este trabalho foi financiado pelos Projetos FAPESP Nos. 93/4204-4, 96/8416-4 e 98/0019-1.

Lista de Figuras

- Figura 1.1:** Célula unitária associada com os supercondutores **(a)** do tipo **pag. 2** p $(La_{1-x}Sr_x)_2CuO_4$ (fase T); **(b)** do tipo p $La_{2-x-y}R_ySr_xCuO_4$; (fase T*); **(c)** do tipo n $Nd_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ (fase T').
- Figura 1.2 :** Transição resistiva de um filme homogêneo de Bi em **pag. 10** função da sua espessura.
- Figura 1.3 -** Transição resistiva para um filme granular de Ga em função **pag. 11** da sua espessura [41]. As notações **a, b, c** e **d** estão definidas no texto.
- Figura 1.4:** Curvas $\rho(T)$ de compostos policristalinos $Sm_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$ **pag. 15** nos limites de: **(a)** supercondutividade global [13] e **(b)** supercondutividade local.
- Figura 1.1.1:** *Clusters* aleatórios bidimensionais de grãos **pag. 16** supercondutores [56].
- Figura 1.1.2:** $\rho(T)$ para amostras policristalinas de $Sm_{2-x}Ce_xCuO_{4-y}$, com **pag. 20** **(a)** $x = 0.15$, **(b)** $x = 0.16$, **(c)** $x = 0.17$ e **(d)** $x = 0.18$.
- Figura 2.2.1:** Fluxograma do processamento das amostras de **pag. 32** $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$ pelo método sol-gel.
- Figura 2.8.1:** Representação esquemática do sistema de medidas. **pag. 38**
- Figura 3.1.1:** Fotomicrografia do composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$ com **pag. 42** aumento de **(a)** 1000 vezes e **(b)** 2500 vezes.
- Figura 3.2.1:** $\rho(T)$ para o $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$ policristalino, em **pag. 43** $T \leq 250$ K, campo magnético nulo e corrente de excitação $10^2 \mu A$.
- Figura 3.2.2:** $R(T)$ para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$ a campo **pag. 44** magnético nulo, para corrente de excitação de 1 mA.
- Figura 3.2.3:** $R(T)$ para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$ para **pag. 45** **(a)** $0 \leq H \leq 10$ Oe e **(b)** $1.5 \leq H \leq 4.5$ Oe, para $I_{ex} = 1$ mA.
- Figura 3.2.4:** Curvas de $\ln R$ em função de $1/T$, para $I_{ex} = 1$ mA, para **pag. 47** $0 \leq H \leq 5.5$ Oe.

Figura 3.2.5: Energia de ativação $U_J(H)$, para $I_{ex} = 1$ mA, $T = 4.2$ K, e **pag. 48**
 $0.5 \leq H \leq 5.5$ Oe.

Figura 3.2.6: $\log U_J \times \log H$, para $I_{ex} = 1$ mA, em $T = 4.2$ K. **pag. 50**

Figura 3.2.7: Dados de U/U_{max} em função de H/H_{max} para o composto **pag. 51**
 $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, juntamente com os dados normalizados de $U(H)$ para
o $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ monocristalino [6].

Figura 3.2.8: Curvas de $R(H)$ para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, em **pag. 53**
 $T = 4.2$ K, para $1 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, para **(a)** $-200 \leq H \leq 200$ Oe e
(b) $-50 \leq H \leq 50$ Oe.

Figura 3.2.9: Curvas de $R(H)$ para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, para **pag. 54**
 $0 \leq H \leq 20$ Oe, em $T = 4.2$ K, com $I_{ex} = 1, 5, 10$ e 18 mA.

Figura 3.2.10: $R(H)$ para $I_{ex} = 3$ mA, para $0.1 \leq H \leq 20$ Oe. **pag. 54**

Figura 3.2.11: Curva de H_x em função da corrente de excitação para **pag. 56**
 $0.25 \leq I_{ex} \leq 18$ mA, em $T = 4.2$ K. H_x é definido no texto.

Figura 3.2.12: Curvas de $R(H)$ para $0 \leq H \leq 180$ Oe, nos sentidos **pag. 59**
crescente e decrescente de H , em $T = 4.2$ K, para **(a)** $I_{ex} = 2$ mA e
(b) $I_{ex} = 3$ mA.

Figura 3.2.12: Curvas de $R(H)$ para $0 \leq H \leq 180$ Oe, nos sentidos **pag. 60**
crescente e decrescente de H , em $T = 4.2$ K, para **(c)** $I_{ex} = 4$ mA e
(d) $I_{ex} = 5$ mA.

Figura 3.2.13: $\Delta R \equiv (R_d - R_c)$ em função de H , $H < 200$ Oe, em **pag. 62**
 $T = 4.2$ K, para $1 \leq I_{ex} \leq 5$ mA.

Figura 3.2.14: $\Delta R(0) \equiv R_0$ em função da corrente de excitação. **pag. 62**

Figura 3.2.15: Representação do perfil de fluxo em um supercondutor **pag. 63**
granular, segundo o Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis [12].

Figura 3.2.16: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação **pag. 67**
 $0 < I_{ex} \leq 50$ mA, em $T = 4.2$ K, **(a)** $0 \leq H \leq 50$ Oe e **(b)** $10 \leq H \leq 50$.

Figura 3.2.16.c: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação **pag. 68**

$0 < I_{ex} \leq 50$ mA, em $T = 4.2$ K, para $H = 50, 100, 150$ e ~ 200 Oe.

Figura 3.2.17: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação **pag. 68**

$0 < I_{ex} \leq 20$ mA, para $0 \leq H \leq 50$, em $T = 4.2$ K.

Figura 3.2.18: $I_{cJ}(H)$ obtida a partir dos dados da tabela 3.2.4. **pag. 69**

Figura 3.2.19: Curvas de $\log V \times \log I$, em $T = 4.2$ K, para $H \leq 50$ Oe. **pag. 72**

Figura 3.2.20: Curvas I-V para ambos os sentidos crescente e **pag. 75**
decrecente da corrente de excitação no intervalo $0 \leq I_{ex} \leq 50$ mA, em
 $T = 4.2$ K, para **(a)** $H = 0$ Oe **(b)** $H = 30$ Oe.

Figura 3.2.21: Curvas I-V, em $T = 4.2$ K, tomadas em $0 \leq I_{ex} \leq 90$ mA **pag. 76**
para $0 \leq H \leq 15$ Oe e, no intervalo $0 \leq I_{ex} \leq 50$ mA para
 $50 \leq H \leq 192$ Oe.

Figura 4.1.1: Difratoograma de raios-X obtido para o pó de **pag. 84**
 $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$ antes de ser prensado na forma de pastilhas.

Figura 4.1.2: Fotomicrografias com aumento de 2500 vezes das **pag. 85**
amostras **(a)** S-116, **(b)** S-147, **(c)** S-196 e **(d)** S-245.

Figura 4.1.3: Fotomicrografias com aumento de 7000 vezes das **pag. 86**
superfícies de fratura das amostras **(a)** S-147 e **(b)** S-245.

Figura 4.2.1: Curvas de $M(T)$ do composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, **pag. 88**
 $H = 20$ Oe para as amostras **(a)** S-116, **(b)** S-147, **(c)** S-196 e **(d)** S-245.

Figura 4.2.2: Curvas de magnetização FC e ZFC das amostras S-116, **pag. 90**
S-147 e S-196, para $H = 7$ T.

Figura 4.3.1: Resistividade elétrica a $H = 0$ T das amostras **(a)** S-116, **pag. 91**
(b) S-147, **(c)** S-196 e **(d)** S-245.

Figura 4.3.2: **(a)** $R(T)$ e **(b)** $M(T)$ para a amostra S-147. **pag. 92**

Figura 4.3.3: Curvas de $R(T)$ para a amostra S-147, para $H = 0$ T, com **pag. 94**
 $I_{ex} = 10, 50, 100, 500$ e 1000 μ A.

Figura 4.3.4: $R(T)$ para a amostra S-147 para diversos valores de campo **pag. 95**
magnético aplicado no intervalo **(a)** $0 < H < 2$ T e **(b)** $0 < H < 8.8$ T.

Figura 4.3.5: Curva de $R(T)$ para a amostra S-147, para **pag. 96**
 $H = 0$ T, juntamente com a curva que representa a extrapolação a
menores temperaturas do comportamento de $R(T)$ no estado normal.

Figura 4.3.6: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, **pag. 98**
sendo $0.6 < (T/T_{ci}) < 1$, para **(a)** $0 \leq H \leq 1.75$ T e **(b)** $0 \leq H \leq 8.8$ T.

Figura 4.3.7: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, **pag. 99**
sendo $0.8 < (T/T_{ci}) < 1$, para $0 \leq H \leq 1$ T.

Figura 4.3.8: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, **pag.100**
sendo $0.6 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$, para $0 \leq H \leq 8.8$ T.

Figura 4.3.9: $R(T)$ para diversos valores de campo magnético aplicado **pag.101**
no intervalo $0 < H < 18$ T para as amostras **(a)** S-116 e **(b)** S-147.

Figura 4.3.9: $R(T)$ para diversos valores de campo magnético aplicado **pag.102**
no intervalo $0 < H < 18$ T para as amostras **(c)** S-196 e **(d)** S-245.

Figura 4.3.10: Curva de $R(T)$ da amostra S-245, para $H = 18$ T, **pag.104**
juntamente com a curva que representa a extrapolação da resistência
elétrica do estado normal em temperaturas mais baixas.

Figura 4.3.11: ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-147, em **pag.106**
 $T/T_{ci} < 0.6$.

Figura 4.3.12: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-147, **pag.107**
para campos magnéticos no intervalo $9 \leq H \leq 17$ T.

Figura 4.3.13: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-116, **pag.108**
sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para **(a)** $H = 0, 3$ e 17 T e **(b)** $3 \leq H \leq 17$ T.

Figura 4.3.14: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-196, **pag.109**
sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para **(a)** $0 \leq H \leq 5$ T e **(b)** $10 \leq H \leq 18$ T.

Figura 4.3.15: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245, **pag.110**
sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para **(a)** $0 \leq H \leq 18$ T e **(b)** $7.5 \leq H \leq 18$ T.

Figura 4.3.16.: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-116 para **pag.114**

(a) $T = 1.96, 2.5, 3$ e 4 K, (b) $10 \leq T \leq 25$ K e (c) $11 \leq T \leq 17.5$ K.

Figura 4.3.17.a: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-147 para **pag.115**
 $1.95 \leq T \leq 4$ K.

Figura 4.3.17: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-147 para **pag.116**
(b) $12 \leq I_{ex} \leq 17.5$ K e (c) $10 \leq I_{ex} \leq 25$ K.

Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para valores fixos de campo **pag.121**
magnético nos intervalos (a) $0 < H < 4$ T e (b) $5 < H < 10$ T.

Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para (c) $H = 12.5, 14$ e 14.5 T **pag.122**
e (d) $H = 15, 15.5$ e 16 T.

Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para (e) $H = 16.5$ e 17 T e **pag.123**
(f) $H = 17.5$ e 18 T.

Figura 4.3.19: $R(T)$ para a amostra S-245, para $H = 10$ T. **pag.126**

Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a **pag.127**
amostra S-245 para (a) $H = 1, 2.5$ e 5 T e (b) $H = 4, 6$ e 8 T.

Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a **pag.127**
amostra S-245 para (c) $H = 10, 12.5$ e 14 T e (d) $H = 14$ e 14.5 T.

Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a **pag.129**
amostra S-245 para (e) $H = 15, 16$ e 17 T e (f) $H = 17$ e 18 T.

Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em **pag.131**
(a) $T = 3, 5$ e 10 K e (b) $11.5 < T < 12.5$ K.

Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em **pag.132**
(c) $T = 13$ e 13.5 K e (d) $T = 14, 14.5$ e 15 K.

Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em **pag.133**
(e) $16 < T < 19$ K e (f) $20 < T < 50$ K.

Figura 4.3.22: $\Delta R \times (T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245, $14.5 \leq H \leq 18$ T. **pag.136**

Figura 4.3.23: Diagrama de fases H *versus* T mostrando os dados de **pag.137**
 $H_{max}(T)$ relativos aos picos de dissipação da amostra S-245, juntamente
com os dados de $H_{c2}(T)$ para o $Nd_{1.84}Ce_{0.16}CuO_{4-y}$ monocristalino.

Lista de Tabelas

- Tabela 1.1:** Principais famílias de óxidos supercondutores conhecidos até 1988 e seus respectivos valores de T_{ci} [3]. **pag. 1**
- Tabela 1.2:** Temperatura crítica (T_{ci}) e valores estimados do campo crítico superior (H_{c2}) para os óxidos supercondutores dopados com elétrons [19-23]. **pag. 5**
- Tabela 1.3:** Valores estimados do comprimento de coerência (ξ) e do fator de anisotropia (γ) nos óxidos supercondutores dopados com elétrons [19-23]. **pag. 5**
- Tabela 1.4:** Valores estimados da profundidade de penetração (λ) nos óxidos supercondutores dopados com elétrons [21-23]. **pag. 5**
- Tabela 1.5:** Valores estimados do campo crítico superior (H_{c2}) para os óxidos supercondutores YBaCuO [21,26] e BiSrCaCuO [27,28]. **pag. 6**
- Tabela 1.6:** Valores estimados do comprimento de coerência (ξ) e do fator de anisotropia (γ) nos óxidos supercondutores YBaCuO e BiSrCaCuO [21, 26-32]. **pag. 6**
- Tabela 3.2.1:** Valores de $U_J(H)$ para $0.5 \leq H \leq 5.5$ Oe, para $I_{ex} = 1$ mA. Os valores de $U_J(H)$ foram estimados a partir das curvas de $\ln R \times 1/T$. **pag. 49**
- Tabela 3.2.2:** Valores encontrados para H_x e correspondentes valores de A , para correntes de excitação no intervalo $0.25 \leq I_{ex} \leq 18$ mA, em $T = 4.2$ K. **pag. 57**
- Tabela 3.2.3:** Valores de R_0 e $H_{crossover}$ obtidos a partir das curvas irreversíveis de $R(H)$, para $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA. **pag. 61**
- Tabela 3.2.4:** Valores de corrente crítica de Josephson, I_{cJ} , para $0 \leq H \leq 30$ Oe. **pag. 66**
- Tabela 3.2.5:** Intervalos de corrente nos quais $V = kI^n$ e os respectivos valores de n , de acordo com o campo magnético H . **pag. 72**

- Tabela 3.2.6:** Intervalos de corrente para os quais $V \propto I$. **pag. 74**
- Tabela 4.3.1:** Intervalos de temperatura para os quais **pag. 111**
 $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-116.
- Tabela 4.3.2:** Intervalos de temperatura para os quais **pag. 111**
 $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-147.
- Tabela 4.3.3:** Intervalos de temperatura para os quais **pag.112**
 $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-196.
- Tabela 4.3.4:** Intervalos de temperatura para os quais **pag. 112**
 $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-245.
- Tabela 4.3.5:** Características dos picos de dissipação da amostra **pag. 125**
S-245, obtidas a partir da figura 4.3.18.
- Tabela 4.3.6:** Intervalos de temperatura em função do campo **pag. 135**
magnético para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245.

ÍNDICE

1. Introdução	1
1.1 Supercondutividade Global	14
Modelo de <i>pseudo-spin</i> aplicado a um supercondutor granular	14
Enfoque deste trabalho no limite de supercondutividade global	19
1.2 Supercondutividade Local	22
Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos	23
Enfoque deste trabalho no limite de supercondutividade local	25
Referências	26
2. Procedimento Experimental	30
2.1 Sobre o método de preparação de amostras	30
2.2 Preparação dos compostos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$	31
2.3 Caracterização por difração de raios-X	33
2.4 Compactação das amostras	34
2.5 Sinterização das amostras	34
2.6 Microscopia eletrônica de varredura	34
2.7 Medidas de susceptibilidade magnética em função da temperatura	35
2.8 Medidas de transporte	36
Medidas de transporte no limite de baixos campos magnéticos	37
Medidas de transporte no limite de altos campos magnéticos	40
Referências	41
3. Propriedades de transporte no limite de baixos campos magnéticos	42
3.1 Caracterização microestrutural do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$	42

3.2 Propriedades de transporte	43
Curvas de R(T) para valores fixos de H	43
Curvas de R(H) em T = 4.2 K	52
Irreversibilidade nas curvas de R(H)	58
Curvas I-V para valores fixos de H, em T = 4.2 K	65
Conclusões Preliminares	79
Referências	82
4. Propriedades de transporte no limite de altos campos magnéticos	84
4.1 Caracterização estrutural e microestrutural do composto	84
$\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$	
4.2 Caracterização magnética	87
4.3 Propriedades de transporte	90
Curvas de R(T) para valores fixos de H	90
Curvas de R(H) para valores fixos de T	113
Picos de dissipação da amostra S-245	120
Curvas de R(T) para valores fixos de H	120
Curvas de R(H) para valores fixos de T	130
Sobre a fusão da rede de vórtices	140
Picos de dissipação da amostra S-245 e a fusão da rede de vórtices	141
Conclusões Preliminares	144
Referências	147
5. Conclusões Finais	150

1. Introdução

A descoberta da supercondutividade de alta temperatura crítica em compostos do tipo LaBaCuO por Bednorz e Müller [1], em 1986, deu início a uma nova geração de materiais supercondutores.

Até o final de 1988, sabia-se que os portadores de carga responsáveis pela supercondutividade nestes compostos eram buracos móveis confinados aos planos de CuO_2 , a estrutura básica desses novos materiais [2]. Na tabela 1.1 são mostradas as principais famílias de óxidos supercondutores descobertas até 1988 e seus respectivos valores de temperatura crítica supercondutora (T_{ci}) [3].

Material	T_{ci} (K)	Ano
$\text{Ba}_x\text{La}_{5-x}\text{Cu}_5\text{O}_{5(3-y)}$ $x = 0.75 \text{ e } 1; y > 0$	30-35	1986
$(\text{La}_{0.9}\text{Ba}_{0.1})_2\text{Cu}_{4.8}$ a 1 GPa	52	1986
$\text{YBa}_2\text{Cu}_3\text{O}_{7-\delta}$	95	1987
$\text{Bi}_2\text{Sr}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$	110	1988
$\text{Tl}_2\text{Ba}_2\text{Ca}_2\text{Cu}_3\text{O}_{10}$	125	1988

Tabela 1.1: Principais famílias de óxidos supercondutores conhecidos até 1988 e seus respectivos valores de T_{ci} [3].

A idéia de que todos os supercondutores de alta temperatura crítica (HTSC) eram do tipo p, ou seja, que os planos de CuO_2 eram dopados com buracos, parecia ser um fator essencial para a existência da supercondutividade nesses materiais. Por essa razão, o anúncio da descoberta do primeiro supercondutor dopado com elétrons, $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ ($T_{ci} \sim 25$ K), em 1989 [4], causou grande impacto na comunidade científica. Logo em seguida à descoberta de Tokura, Takagi e Uchida [4,5], vários trabalhos concluíram que

os óxidos supercondutores do tipo n tem a fórmula geral $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$, onde $\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}$; $\text{M} = \text{Ce}, \text{Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$ [6-9].

Os supercondutores dopados com elétrons apresentam a estrutura cristalina tetragonal T' [4], relativa ao sistema $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$, com parâmetros de rede com valores tipicamente da ordem de $a \approx 3.9 \text{ \AA}$ e $c \approx 12.1 \text{ \AA}$ [4] e grupo espacial $I4/mmm$ [10]. Esse sistema apresenta três variações estruturais, T , T^* e T' , sendo que as estruturas cristalinas T e T^* são associadas a supercondutores do tipo p. Essas estruturas cristalinas são mostradas na figura 1.1 para fins de comparação.

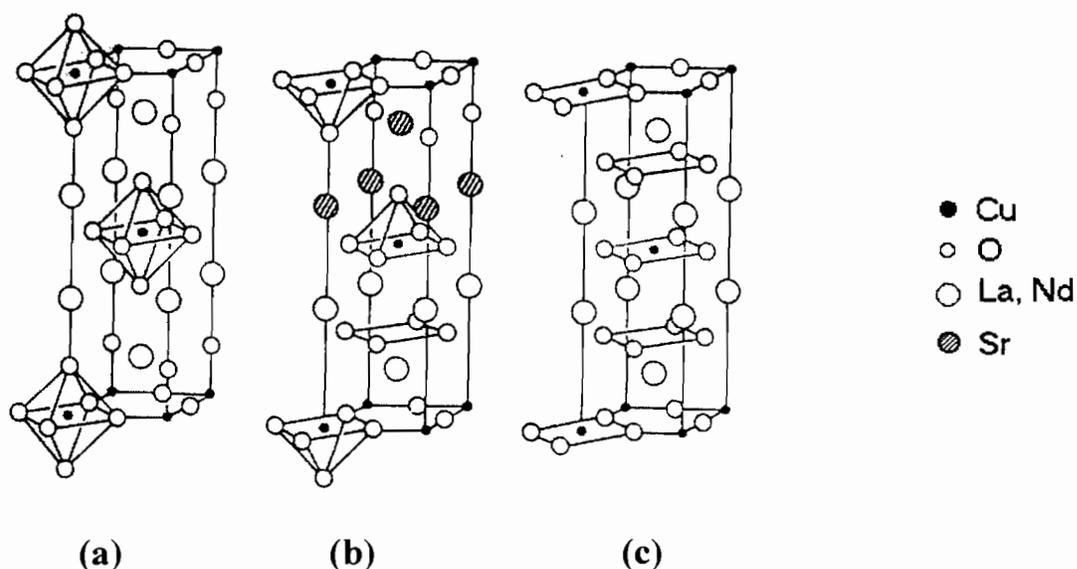


Figura 1.1: (a) Célula unitária associada com os supercondutores do tipo p $(\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x)_2\text{CuO}_4$ (fase T); (b) célula unitária dos supercondutores do tipo p $\text{La}_{2-x-y}\text{R}_y\text{Sr}_x\text{CuO}_4$, onde $\text{R} = \text{Sm}, \text{Eu}, \text{Gd}$ e Tb (fase T^*). A fase T^* é uma estrutura cristalina híbrida, sendo a parte superior da célula unitária do tipo T e a inferior do tipo T' ; (c) célula unitária dos supercondutores do tipo n $\text{Nd}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ (fase T'). Os átomos de La na estrutura cristalina da esquerda são substituídos por átomos de Nd na estrutura cristalina da direita [3].

As estruturas cristalinas T^* e T são constituídas por camadas bidimensionais de CuO_2 com um ou dois átomos de oxigênio na posição apical formando, respectivamente, pirâmides ou octaedros de Cu-O . A estrutura cristalina T' , relacionada aos supercondutores do tipo n, consiste de planos de

CuO_2 nos planos ab, nos quais os íons de cobre estão no centro de um arranjo quadrado de íons de oxigênio. Os planos condutores de CuO_2 são separados por planos isolantes de Ln_2O_2 [4].

A diferença entre as estruturas cristalinas T, T* e T', quanto ao sinal dos portadores de carga, está relacionada ao processo de dopagem que converte o sistema não dopado $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$ em um supercondutor [3]. Por exemplo, para induzir propriedades supercondutoras no sistema $\text{La}_2\text{CuO}_{4-y}$ (estrutura cristalina T) é preciso substituir uma pequena quantidade de La (trivalente) por Sr (divalente), resultando em uma dopagem com buracos nos planos de CuO_2 , produzindo um supercondutor do tipo p. Para que o sistema $\text{Nd}_2\text{CuO}_{4-y}$ (estrutura cristalina T') torne-se supercondutor é preciso introduzir Ce (tetraivalente) nos sítios do elemento Nd (trivalente), doando elétrons para os planos de CuO_2 . A investigação das propriedades supercondutoras dos compostos $\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}; 0.0 \leq x \leq 0.2$), tem demonstrado que amostras com $x = 0.15$ usualmente apresentam maiores valores de T_{ci} . Essa concentração do elemento dopante também maximiza os valores de T_{ci} para os supercondutores do tipo p, com estruturas cristalinas T e T* [11,12,13]. Para os supercondutores do tipo n verifica-se que, além do processo de dopagem, a remoção de uma pequena quantidade de oxigênio é crucial para a indução da supercondutividade, indicando um aumento do número de portadores de carga através do processo de redução [4,14,15]. Os supercondutores dopados com elétrons apresentam temperaturas críticas tão altas quanto 25 K, como a obtida para o $\text{Pr}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$, onde $y \sim 0.02$ [4].

Em função da dopagem anteriormente descrita, os supercondutores de fórmula geral $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}; \text{M} = \text{Ce}, \text{Th}; 0.0 \leq x \leq 0.2$) foram classificados como supercondutores do tipo n, ou supercondutores dopados com elétrons. Entretanto, posteriormente a sua descoberta, medidas de transporte e de efeito Hall em monocristais de alta qualidade evidenciaram que

ambos, buracos e elétrons, participam no transporte de carga destes óxidos supercondutores [16]. Atualmente, a existência de duas bandas associada aos supercondutores do tipo n é bem aceita, porém ainda existem controvérsias acerca da influência de cada uma delas nas propriedades de transporte e supercondutoras desses óxidos [17].

Devido à estrutura lamelar dos HTSC, constituída de planos de CuO_2 altamente condutores, uma característica comum a esses compostos é a alta anisotropia. Nos HTSC os planos condutores de CuO_2 são separados na direção cristalográfica c por planos isolantes de Ln_2O_2 [4]. Isto sugere um acoplamento fraco entre os planos condutores, levando a um sistema anisotrópico e essencialmente bidimensional. Desse modo, acredita-se também que no estado supercondutor o acoplamento entre os planos condutores ocorra via efeito Josephson [18]. Em consequência desta estrutura, a profundidade de penetração λ , o comprimento de coerência ξ e os campos críticos dos HTSC são também anisotrópicos. Nas tabelas 1.2-4 são apresentados os valores dos campos críticos, comprimentos fundamentais e fator de anisotropia para os supercondutores do tipo n [19-23]. Estes parâmetros, λ e ξ , foram estimados a partir dos valores de $H_{c2}(T)$, obtidos a partir de medidas de magneto-resistência [19,20,23] e de magnetização [21-23]. Nas referências 19, 20, 21 e 23, os valores de $H_{c2}(0)$ foram estimados utilizando-se a relação $H_{c2}(0) = -0.69T_{ci}(dH_{c2}/dT)$, sendo dH_{c2}/dT obtido em $T \sim T_{ci}$ [24]. Na referência 22, $H_{c2}(0)$ foi estimado a partir do ajuste da curva de $H_{c2}(T)$ à lei empírica $H_{c2}(T) = H_{c2}(0)(1-T/T_{ci})^{3.3}$ [25]. Os demais parâmetros supercondutores foram obtidos a partir dos valores de campos críticos, utilizando-se a teoria de Ginzburg-Landau [19-23]. A análise desses dados torna evidente que, para os supercondutores dopados com elétrons, não existe um consenso quanto aos valores dos parâmetros supercondutores fundamentais.

Uma característica interessante dos supercondutores do tipo n é que os valores estimados para $H_{c2}(0)$ são muito menores do que para a maioria dos supercondutores do tipo p [22]. Para fins de comparação, na tabela 1.5 são mostrados valores típicos de $H_{c2}(0)$ para dois supercondutores do tipo p, YBaCuO e BiSrCaCuO. A partir das tabelas 1.3 e 1.6 pode ser observado que o valor estimado para $\xi(0) // ab$ para os supercondutores do tipo n, da ordem de 80 Å, é bem superior aos valores correspondentes estimados para esses óxidos.

Composto	Ref.	T_{ci} (K)	$H_{c2}(0) // ab$ (T)	$H_{c2}(0) \perp ab$ (T)
$Nd_{1.84}Ce_{0.16}CuO_{4-y}$	[19]	22.5	137	6.69
$Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[20]	11.4	28.2	5.23
$Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[21]	19.7	23.9	6.48
$Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[22]	19.2	/	7
$Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[23]	22	/	/

Tabela 1.2: Temperatura crítica (T_{ci}) e valores estimados do campo crítico superior (H_{c2}) para os óxidos supercondutores dopados com elétrons [19-23].

Composto	Ref.	$\xi(0) // ab$ (Å)	$\xi(0) \perp ab$ (Å)	γ
$Nd_{1.84}Ce_{0.16}CuO_{4-y}$	[19]	70.2	3.4	21
$Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[20]	79	14.7	5
$Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[21]	59.2	16.1	3.7
$Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[22]	70	/	/
$Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[23]	80	/	/

Tabela 1.3: Valores estimados do comprimento de coerência (ξ) e do fator de anisotropia (γ) nos óxidos supercondutores dopados com elétrons [19-23].

Composto	Ref.	$\lambda(0) // ab$	$\lambda(0) \perp ab$
$Sm_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[21]	456 nm	1675 nm
$Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[22]	700 Å	/
$Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$	[23]	1100 ± 300 Å	/

Tabela 1.4: Valores estimados da profundidade de penetração (λ) nos óxidos supercondutores dopados com elétrons [21-23].

Composto	Ref.	$H_{c2}(0) // ab$ (T)	$H_{c2}(0) \perp ab$ (T)
YBaCuO	[21,26]	674	122
BiSrCaCuO	[27]	523	22
BiSrCaCuO	[27]	2640	44
BiSrCaCuO	[28]	1210	39

Tabela 1.5: Valores estimados do campo crítico superior (H_{c2}) para os óxidos supercondutores YBaCuO [21,26] e BiSrCaCuO [27,28].

Composto	Ref.	$\xi(0) // ab$ (Å)	$\xi(0) \perp ab$ (Å)	γ
YBaCuO	[21,26,29,30]	16	3	5-10
BiSrCaCuO	[27,28,31,32]	15-38	0.2-1.6	55-250

Tabela 1.6: Valores estimados do comprimento de coerência (ξ) e do fator de anisotropia (γ) nos óxidos supercondutores YBaCuO e BiSrCaCuO [21, 26-32].

A família de óxidos supercondutores do tipo $Ln_{2-x}M_xCuO_{4-y}$ ($Ln = Pr, Nd, Sm, Eu$; $M = Ce, Th$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) apresenta características interessantes, tanto do ponto de vista estrutural e dos portadores de carga, como também quanto às propriedades de transporte. Para os monocristais verifica-se que, em $T > T_{ci}$, as resistividades elétricas paralelas tanto aos planos de CuO_2 (ρ_{ab}) como ao eixo cristalográfico c (ρ_c) apresentam uma dependência da temperatura tal que $d\rho/dT > 0$, ou seja, $\rho(T)$ no estado normal possui caráter metálico [19]. Observou-se que a dependência da resistividade com a temperatura é melhor expressa por uma relação do tipo $\rho(T) \cong \rho_0 + AT^2$ [33,34], explicada em termos de um mecanismo de espalhamento do tipo elétron-elétron [33]. Comportamento bem diferente é observado para os supercondutores do tipo p, onde $\rho(T)$ em $T > T_{ci}$ varia linearmente com a temperatura, o que é característico de um espalhamento baseado na interação elétron-fonon [33,34]. Em $T < T_{ci}$ e na presença de campos magnéticos observa-se que as transições resistivas dos supercondutores dopados com elétrons são mais estreitas que as

observadas nos supercondutores do tipo p. Este tipo de comportamento assemelha-se ao observado nos supercondutores convencionais. Na presença de um campo magnético H paralelo ao eixo cristalográfico c , o alargamento da transição supercondutora é mais pronunciado, com o deslocamento paralelo da transição supercondutora em direção a menores temperaturas com o aumento de H [19,35]. Além das propriedades de transporte mencionadas acima, alguns dos supercondutores dopados com elétrons $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Sm}, \text{Nd}$; $\text{M} = \text{Ce}, \text{Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) apresentam coexistência entre supercondutividade e magnetismo em baixas temperaturas ($T < 5 \text{ K}$) [10,20,35,36].

As propriedades de transporte das amostras policristalinas dos supercondutores do tipo n são bem diferentes das anteriormente descritas para os monocristais. O processo de redução [4,14,15], essencial para o desenvolvimento da supercondutividade nos óxidos $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}, \text{Eu}$; $\text{M} = \text{Ce}, \text{Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) resulta em uma variação no teor de oxigênio desses compostos de apenas 0.02 por fórmula. Isto sugere que as regiões supercondutoras sejam criadas apenas nas vizinhanças de onde o oxigênio é removido [13]. Por essa razão, as amostras policristalinas dos supercondutores do tipo n são descritas como compósitos, ou seja, materiais que são constituídos de regiões supercondutoras imersas em uma matriz isolante [13]. De fato, as frações volumétricas supercondutoras calculadas nessas amostras são muito pequenas, nunca maiores que 30% [13]. No estado normal observa-se que $\rho(T)$ aumenta com o decréscimo da temperatura, ou seja, apresenta um comportamento semicondutor [37]. Isto significa que os contornos de grão de amostras policristalinas de supercondutores do tipo n não apresentam caráter metálico e, portanto, determinam a natureza da resistividade elétrica do estado normal nessas amostras [12]. Esta é uma característica típica de um sistema supercondutor granular. Entretanto, deve ser observado que os grãos físicos do material não são necessariamente os grãos supercondutores. Esses

grãos físicos podem ser constituídos de pequenas ilhas supercondutoras cercadas de material não supercondutor [13].

Supercondutores clássicos com estrutura granular há bastante tempo tem sido investigados, como por exemplo os filmes finos de Al-Al₂O₃ [38]. Nestes filmes as partículas de alumínio são oxidadas de tal forma que o resultado final são partículas pequenas de alumínio envolvidas por uma fina camada de Al₂O₃. Quando essas partículas coalescem, é estabelecida uma junção SIS (supercondutor-isolante-supercondutor) entre elas, do tipo Al-Al₂O₃-Al [38]. No caso dos HTSC a granularidade assume um caráter fundamental, devido ao pequeno comprimento de coerência ($\sim 10 \text{ \AA}$) destes materiais, se comparados aos supercondutores clássicos ($\sim 10^2\text{-}10^4 \text{ \AA}$) [39]. Isto faz com que a supercondutividade nos HTSC seja altamente sensível às imperfeições estruturais de pequena escala, as quais podem causar a supressão a nível local do parâmetro de ordem supercondutor [39]. Portanto, mesmo as amostras monocristalinas dos HTSC possuem uma estrutura granular intrínseca. Devido a isso, a investigação das propriedades de transporte nesses compostos tem aumentado o interesse em sistemas supercondutores granulares e desordenados.

O entendimento de propriedades supercondutoras em sistemas supercondutores desordenados é baseado na distinção entre os limites de desordem chamados de homogêneo e não-homogêneo [40]. O que determina a fronteira entre estes dois limites é a razão entre o comprimento de coerência supercondutor (ξ_s) e o comprimento característico de desordem (ξ_d). Para sistemas supercondutores com desordem em escala atômica, ou seja, $\xi_d \ll \xi_s$, o meio supercondutor é considerado homogêneo. No limite oposto, para $\xi_d \gg \xi_s$, os sistemas supercondutores são considerados não-homogêneos ou granulares. Nesse limite, a morfologia do sistema supercondutor influencia fortemente as propriedades supercondutoras [40,41].

Experimentos utilizando filmes finos são bastante úteis para a investigação de sistemas supercondutores desordenados. Pode-se investigar a transição do estado isolante para o estado supercondutor e vice-versa, apenas através da variação da espessura desses filmes. A transição supercondutor-isolante (SI) ocorre de forma muito diferente para os sistemas supercondutores homogêneos e granulares, o que é um reflexo do comportamento do parâmetro de ordem supercondutor [42] através dessa transição. O parâmetro de ordem supercondutor, denotado como $\Psi(r)$, foi introduzido dentro da teoria fenomenológica de Ginzburg-Landau [42] para caracterizar o grau de supercondutividade em um determinado ponto do material. $|\Psi(r)|$ é definido como sendo igual a zero para uma região normal e igual à unidade para uma região supercondutora. $\Psi(r)$ é tomada como uma função complexa e interpretada como uma função de onda para a supercondutividade, tal que $\Psi = \Delta e^{i\phi}$, onde a amplitude de Ψ é o *gap* supercondutor (Δ) e ϕ é a fase do parâmetro de ordem supercondutor [42].

De volta aos filmes, na figura 1.2 são mostradas as curvas de $R(T)$ para diferentes espessuras de um filme homogêneo de Bi [41,43]. A partir dessa figura observa-se que o filme supercondutor homogêneo exibe uma transição direta do estado isolante para o estado supercondutor com o aumento da espessura do filme. No caso do Bi, a transição SI ocorre para $R \sim 6.5 \text{ k}\Omega/\square$, correspondente a um filme de espessura $\sim 6.7 \text{ \AA}$ [43]. De fato, verificou-se em filmes de diferentes metais que o estado supercondutor somente é atingido quando o valor de resistência elétrica no estado normal está abaixo de $\sim 6.45 \text{ k}\Omega/\square$ [43]. Outra importante característica de um sistema supercondutor homogêneo diz respeito à variação da temperatura crítica supercondutora T_{ci} na transição supercondutor-isolante. Neste sistema, observa-se uma diminuição sistemática de T_{ci} com a diminuição da espessura do filme. Este comportamento pode ser observado na figura 1.2 quando a espessura do filme de Bi é diminuída

a partir de 74.27 Å. Essa variação em T_{ci} implica também em uma variação do *gap* supercondutor (Δ), uma vez que Δ é dependente de T_{ci} . De fato, a partir de medidas de tunelamento observou-se que Δ e T_{ci} decrescem monotonicamente através da transição SI, de forma que $2\Delta/T_{ci} \sim \text{constante}$ [44]. Isto significa que o desaparecimento da supercondutividade nesse sistema ocorre devido à supressão da amplitude do parâmetro de ordem ou do *gap* supercondutor [41].

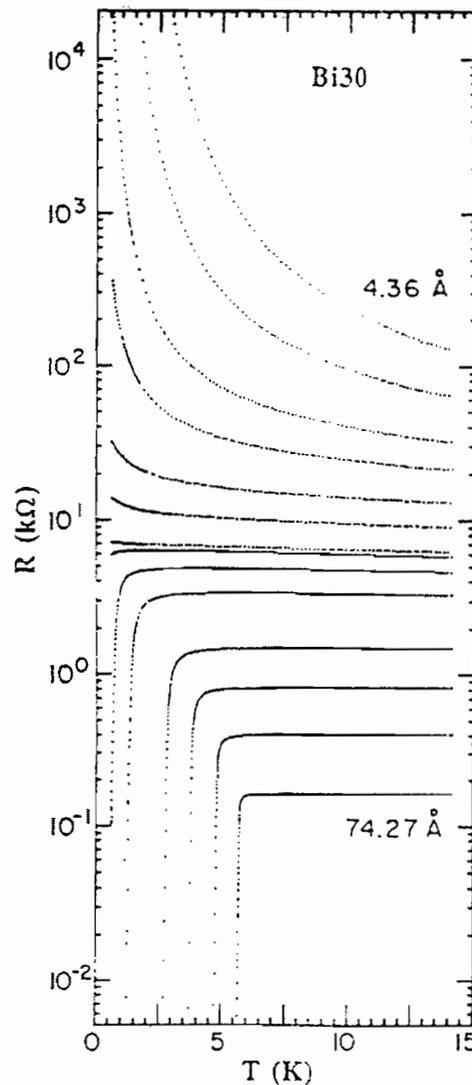


Figura 1.2 : Transição resistiva de um filme homogêneo de Bi em função da sua espessura [41,43].

Contrastando com a transição SI em um sistema supercondutor homogêneo, na figura 1.3 é mostrada a transição resistiva para filmes granulares de Ga [41] em função da espessura.

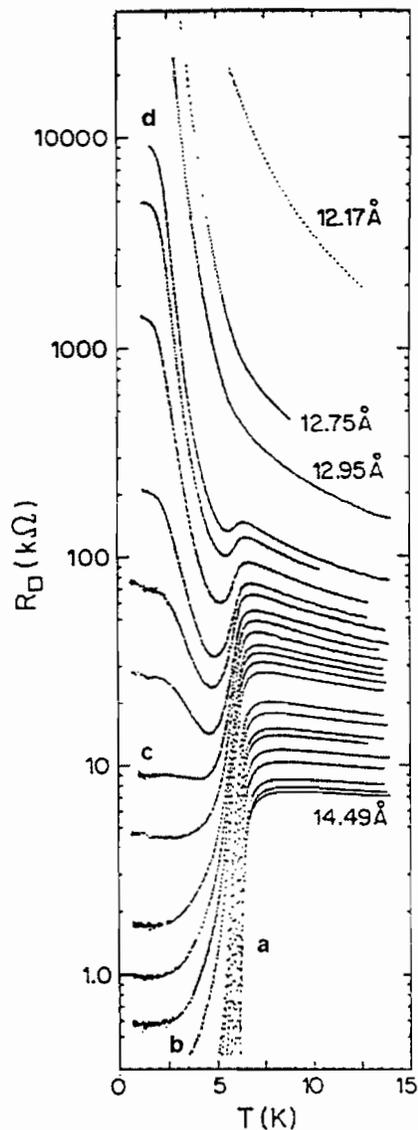


Figura 1.3 - Transição resistiva para um filme granular de Ga em função da sua espessura [41]. As notações **a**, **b**, **c** e **d** estão definidas no texto.

Como exemplificado na figura 1.3, na transição SI de um sistema supercondutor granular existe uma sucessão de comportamentos físicos distintos. Entretanto, o valor de T_{ci} permanece constante durante toda a transição, o que significa que o

gap supercondutor é preservado através da transição supercondutor-isolante. Partindo-se do estado de supercondutividade global (resistência elétrica zero), o comportamento resistivo do sistema evolui para os estados metálico e de supercondutividade local antes de atingir o estado isolante. Seguem abaixo as principais características de cada um desses comportamentos resistivos, utilizando-se como exemplo as curvas de $R(T)$ para filmes granulares de Ga [41], as quais são mostradas na figura 1.3:

1) a supercondutividade global, exibida nas curvas entre a e b na figura 1.3, é caracterizada por um estado de coerência de fase do parâmetro de ordem supercondutor através do material. Nesse caso, mesmo que a fração volumétrica supercondutora seja inferior ao limite de percolação, o acoplamento entre os grãos supercondutores ocorre em $T < T_{ci}$, levando o composto para o estado de resistência elétrica zero. Dependendo da natureza da matriz, este acoplamento ocorre via efeito Josephson ou pelo efeito de proximidade, no caso de matrizes isolantes ou metálicas, respectivamente [45]. Nesse limite, os efeitos de flutuação de fase do parâmetro de ordem supercondutor são dominantes e o desaparecimento do estado de supercondutividade global ocorre devido à supressão da coerência de fase de longo alcance do parâmetro de ordem supercondutor [41];

2) o estado resistivo caracterizado como metálico é aquele no qual ocorre a diminuição da resistência elétrica com o decréscimo da temperatura, em $T < T_{ci}$. Entretanto, o sistema não evolui para o estado de resistência elétrica zero. Nesse caso, o sistema atinge um valor não-nulo de resistência elétrica que persiste até temperaturas mais baixas. Na figura 1.3 esse comportamento da transição resistiva é observado nas curvas entre b e c ;

3) o estado de supercondutividade local ou reentrante pode ser observado nas curvas entre c e d na figura 1.3. Com a diminuição da temperatura, observa-se uma queda parcial na resistência elétrica logo abaixo de T_{ci} , seguida de um

aumento abrupto na magnitude de $R(T)$ até o limite de baixas temperaturas. Este comportamento resulta em um mínimo na curva de $R(T)$ logo abaixo de T_{ci} . Com a diminuição da espessura do filme, a queda de resistência elétrica em $T = T_{ci}$ torna-se cada vez menos evidente, enquanto que o aumento de resistência elétrica em $T < T_{ci}$ é cada vez mais abrupto;

4) ao término da transição SI, o sistema evolui para o estado isolante onde o processo de condução é ativado termicamente. Esta característica de $R(T)$ é observada para os filmes de Ga [41] com espessura variando entre 12.17 e 12.95 Å.

Os estados de supercondutividade local e isolante pertencem ao chamado lado dielétrico da transição SI de sistemas granulares [46]. O regime dielétrico é característico de sistemas granulares nos quais a fração volumétrica da fase isolante ou semicondutora é grande, tal como o que se observa quando inclusões metálicas são distribuídas em uma matriz isolante. Além disso, se a fração volumétrica supercondutora estiver abaixo do limite de percolação e não for possível o acoplamento entre os grãos supercondutores via efeito Josephson, a condutividade elétrica será pequena e ativada [46].

As propriedades acima descritas para sistemas descontínuos clássicos tem sido investigadas em um amplo espectro de sistemas bi (2D) e tridimensionais (3D) tais como: filmes de In (2D) [46,47], filmes ultra-finos de Sn (2D) [48], filmes granulares de Al-Ge (2D) [49], filmes de Pb e Bi (2D) [43], filmes finos de MoC (2D) [50], partículas metálicas prensadas (3D) [51] e alumínio granular (3D) [52].

Neste trabalho investigou-se o comportamento de compostos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17$ e 0.18 , em dois limites da transição SI, ou seja, a supercondutividade local e a supercondutividade global, respectivamente.

Os comportamentos resistivos dos compostos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17$ e 0.18 , nestes dois limites são mostrados na figura 1.4. No limite de supercondutividade global (figura 1.4(a)) foram investigadas as correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor devido ao acoplamento Josephson, o qual é altamente sensível a baixos campos magnéticos ($H < 200$ Oe) e variações na corrente de excitação [3]. No limite de supercondutividade local (figura 1.4(b)), investigou-se a influência da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor sobre o comportamento resistivo do sistema, mediante a aplicação de altos campos magnéticos ($H \leq 18$ T). Para melhor clareza de apresentação, os limites de supercondutividade local e global dos compostos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17$ e 0.18 , serão discutidos separadamente.

1.1 - Supercondutividade Global

No início dos anos 90, o aprimoramento das técnicas de preparação de amostras policristalinas dos supercondutores dopados com elétrons [54] possibilitou um considerável avanço na investigação das suas propriedades de transporte, principalmente no limite da supercondutividade global [12,13,55]. Nesse limite, o objetivo deste trabalho foi investigar mais profundamente as correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor nesses compostos, em continuidade ao que foi desenvolvido basicamente até a metade dessa década.

Segue abaixo uma descrição sucinta do modelo de *pseudo-spin* aplicado aos supercondutores granulares. Com base nesse modelo, serão apresentados os motivos da escolha do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ para o estudo das correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor.

Modelo de *pseudo-spin* aplicado a um supercondutor granular

Em um sistema consistindo de regiões supercondutoras fracamente conectadas, ou mesmo isoladas, as supercorrentes não podem fluir de uma

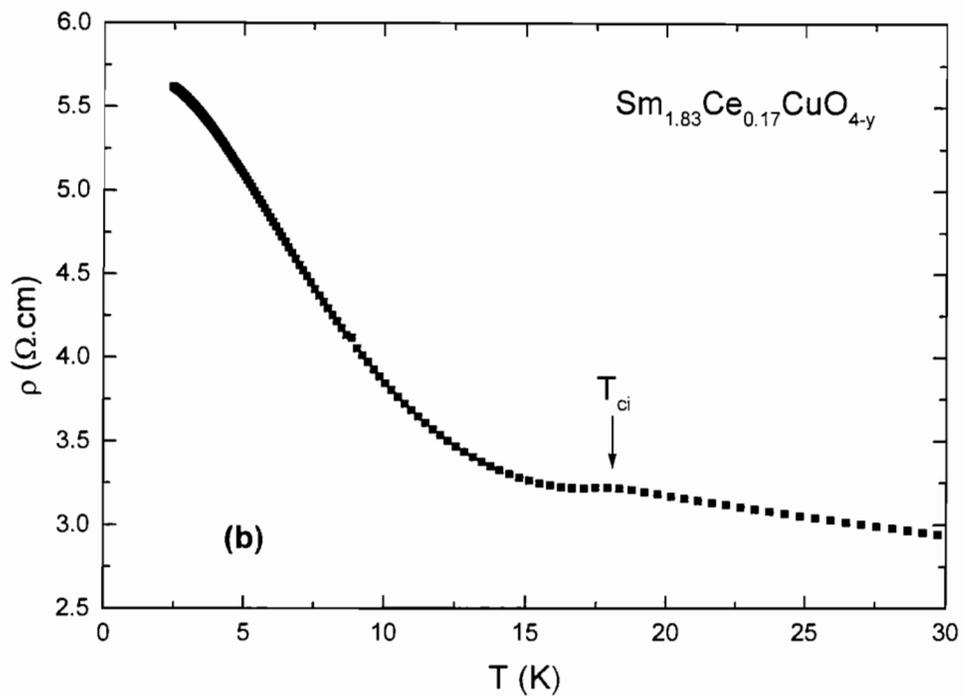
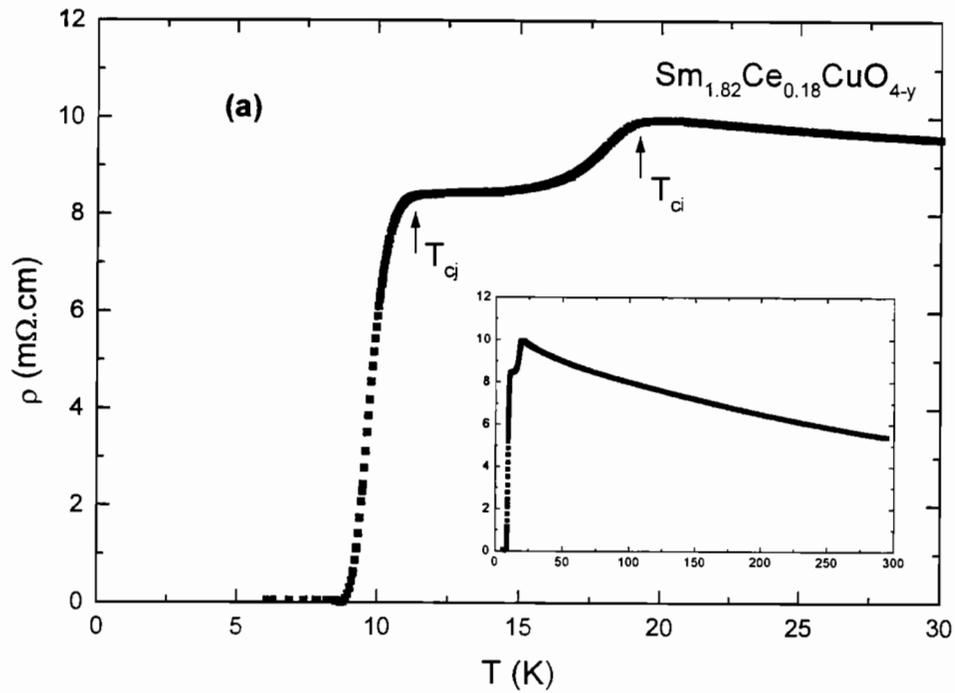


Figura 1.4: Curvas $\rho(T)$ de compostos policristalinos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ nos limites de: (a) supercondutividade global [13] e (b) supercondutividade local [53].

região para a outra e, *a priori*, não existe correlação entre as fases do parâmetro de ordem supercondutor [42] entre essas regiões. Porém, quando essas regiões são acopladas de algum modo que permita a passagem das supercorrentes de uma região para outra, como por exemplo, via efeito Josephson, observa-se o aparecimento de uma correlação entre as fases do parâmetro de ordem supercondutor nessas regiões. A partir daí o sistema torna-se efetivamente uma única região supercondutora. Dentro desse contexto, o comportamento dos supercondutores granulares pode ser descrito por um modelo denominado de *pseudo-spin* [45,56,57]. De acordo com esse modelo, cada ilha supercondutora adquire um *gap* ou parâmetro de ordem à medida que a temperatura diminui abaixo da temperatura crítica T_{ci} , característica dessas ilhas. A amplitude desse *gap* é fixada pelas características de cada ilha, porém sua fase é variável, dependendo do tipo de acoplamento entre ilhas. Dessa forma, o parâmetro de ordem supercondutor apresenta um comportamento análogo a um sistema XY de *spins* em 3 dimensões e de duas componentes [45,56].

Em campo nulo, em $T = T_{cj}$, tal que $T_{cj} < T_{ci}$, o fraco acoplamento entre as ilhas supercondutoras atua como uma interação ferromagnética entre os *spins*. Ou seja, a $T = T_{cj}$ as fases dos *gaps* adquirem ordem de longo alcance. Formam-se então *clusters* de ilhas supercondutoras no material com o estabelecimento de *loops* de junções Josephson (veja figura 1.4.(a)). Um *cluster* é definido como uma região de coerência de fase no supercondutor.

Para um composto suficientemente desordenado é razoável admitir uma grande distribuição de áreas de *loops* de junções Josephson [55,58], como esquematicamente mostrado na figura 1.1.1 [56]. A aplicação de um campo magnético afeta fortemente os fracos acoplamentos entre as ilhas supercondutoras. Sendo $\Psi_i = \Delta_i e^{(i\phi_i)}$ o parâmetro de ordem da i -ésima ilha supercondutora, o sistema é descrito pelo seguinte hamiltoniano de *spin-glass* x - y [45,56]:

$$H = -\sum J_{ij} \cos(\phi_i - \phi_j - A_{ij}) \quad (1.1.1)$$

onde $J_{ij} \equiv$ energia de acoplamento entre as ilhas supercondutoras.

$$\vec{H} = \vec{\nabla} X \vec{A} \quad (1.1.2)$$

e

$$A_{ij} = \frac{2\pi}{\phi_0} \int_i^j \vec{A} \cdot d\vec{l} \quad , \quad (1.1.3)$$

sendo ϕ_0 ($2.07 \times 10^{-7} \text{ G.cm}^2$) o *quantum* de fluxo elementar e a integral tomada ao longo de uma linha unindo as ilhas supercondutoras i e j .

Quando um *quantum* de fluxo magnético penetra em um *loop* de junções Josephson, estabelece-se um estado de frustração, não sendo possível encontrar um estado ordenado de fases que minimize todas as energias de ligação simultaneamente neste *loop*. Ou seja, alguns acoplamentos são do tipo ferromagnético, enquanto outros tendem a alinhar os *spins* em ângulos diferentes de zero. A frustração é produzida pelos fatores de fase A_{ij} definidos pela equação (1.1.3), que suprimem a coerência de fase entre as ilhas que constituem o *loop* [56]. O mínimo campo magnético H necessário para induzir frustração em tal *loop* é dado por:

$$H_x = \frac{\phi_0}{A} \quad , \quad (1.1.4)$$

onde ϕ_0 é o *quantum* de fluxo supercondutor e A é a área do *loop* de junções Josephson. Se os *loops* tem áreas aleatórias e são aleatoriamente orientados com respeito ao campo magnético aplicado, em campos magnéticos suficientemente fortes, a frustração será uniformemente distribuída através do composto. Para

campos magnéticos maiores, a distribuição de frustração deverá atingir a saturação. A partir daí, à medida que o campo magnético varia, os diversos *loops* mudam de uma configuração para outra, na tentativa de encontrar uma configuração de fases de equilíbrio. Cada mudança de configuração é acompanhada de uma mudança, por exemplo, na magnetização do sistema. Assim, a resposta do sistema dependerá da relação entre a sua taxa de relaxação e a frequência com que o campo magnético é variado. Este comportamento leva a diferenças entre as susceptibilidades magnéticas ac e dc, o que é característico de um sistema de vidro de *spins* [45,56]. Como consequência, deve-se esperar também um comportamento distinto nas curvas de grandezas macroscópicas, como a resistividade elétrica, obtidas em processos *field cooled* (FC) e *zero-field-cooled* (ZFC) [55].

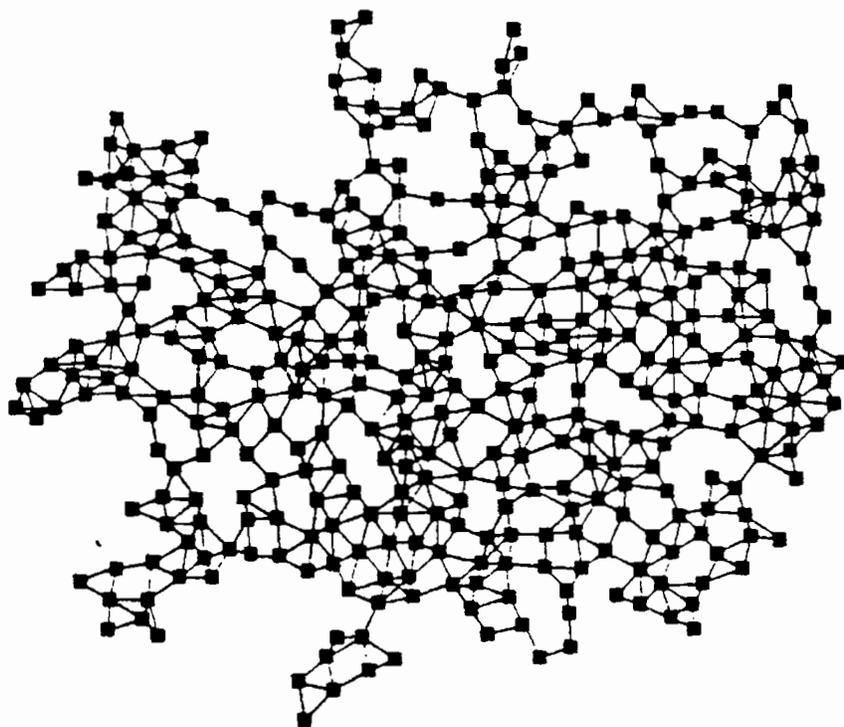


Figura 1.1.1: *Clusters* aleatórios bidimensionais de grãos supercondutores [56].

Em um processo FC, o composto é resfriado a partir de uma temperatura relativamente alta ($T > T_{c_j}$), na presença de um campo magnético aplicado. A medida que o composto é lentamente resfriado, as fases do parâmetro de ordem

supercondutor buscam uma configuração próxima ao equilíbrio para aquele campo em uma dada temperatura. Em tal configuração, espera-se uma menor magnitude da resistividade elétrica e uma transição para o estado de resistência elétrica zero em mais altas temperaturas [59]. O processo caracterizado como ZFC é aquele no qual a amostra é resfriada lentamente, na ausência de campo magnético. Neste caso, a configuração inicial das fases do parâmetro de ordem supercondutor é aquela do estado de equilíbrio a campo zero, isto é, todas as fases são paralelas. Quando o campo magnético é aplicado em baixas temperaturas, o compósito não consegue acessar estados de mais baixa energia como em um processo FC. Estes estados de mais alta energia correspondem a uma maior resistividade elétrica do compósito, permitindo que o estado de resistência elétrica zero seja obtido em mais baixas temperaturas [59].

Enfoque deste trabalho no limite de supercondutividade global

Os objetivos deste trabalho ficam mais claros após a visualização das curvas de resistividade elétrica em função da temperatura, $\rho(T)$, dos compostos policristalinos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $0.15 \leq x \leq 0.18$ [13], mostradas na figura 1.1.2. Em temperaturas menores que a ambiente, esses compostos apresentam um comportamento semicondutor característico de um compósito supercondutor com uma matriz isolante, como mostrado na figura 1.4(a) (ver página 15). Com a diminuição da temperatura, esses compostos apresentam a chamada dupla transição supercondutora, já que a transição supercondutora ocorre em duas temperaturas diferentes, T_{ci} e T_{cj} . Essas duas temperaturas de transição são indicadas na figura 1.1.2 para a amostra com $x = 0.18$. A dupla transição supercondutora do composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($0.0 \leq x \leq 0.2$) pode ser analisada de acordo com o modelo de *pseudo-spin* para supercondutores granulares [45,56,57]. A primeira queda na resistividade elétrica do composto, a qual ocorre em uma temperatura de transição superior T_{ci} , é atribuída ao

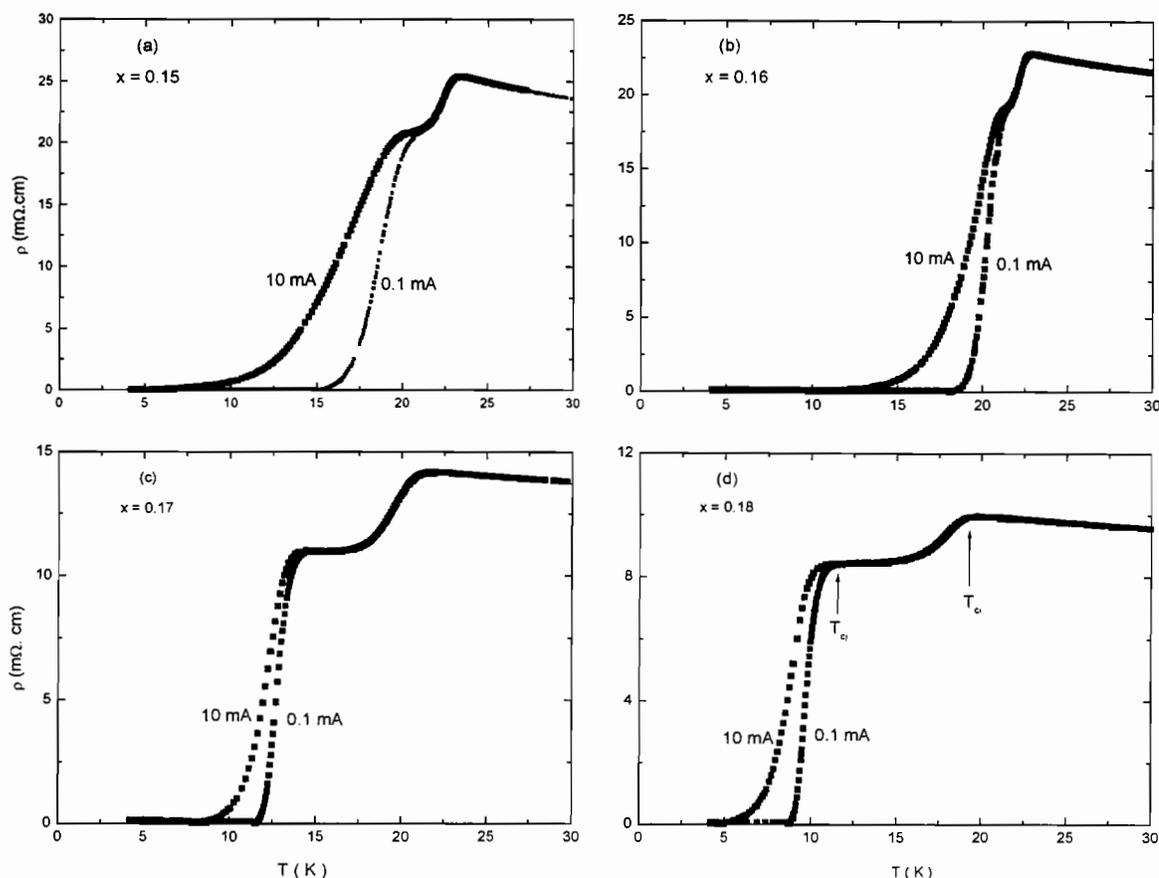


Figura 1.1.2: Resistividade elétrica em função da temperatura em amostras policristalinas de $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, para (a) $x = 0.15$, (b) $x = 0.16$, (c) $x = 0.17$ e (d) $x = 0.18$. A temperatura de transição supercondutora das ilhas T_{ci} e a temperatura de acoplamento Josephson T_{cj} estão indicadas em (d). Estão também assinaladas mudanças na corrente de excitação em todas as curvas [13].

desenvolvimento da supercondutividade em regiões isoladas do material. Porém, devido à baixa fração volumétrica supercondutora desses compostos, inferior ao limite de percolação ($\sim 30\%$) [12], observa-se apenas uma queda parcial na magnitude de $\rho(T)$ nesta primeira transição. Abaixo de T_{ci} , observa-se um notável *plateau* na resistividade elétrica do composto que se estende até uma temperatura de transição inferior, T_{cj} . Este comportamento é uma indicação de que, em $T_{cj} < T < T_{ci}$, o composto é constituído por uma coleção de ilhas supercondutoras imersas em uma matriz isolante. Em $T = T_{cj}$, ocorre a segunda

transição, que leva o composto, eventualmente, ao estado de resistividade elétrica zero, via acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras. De fato, o que ocorre em T_{cj} é uma transição a partir de um estado de incoerência de fases, no qual as fases do parâmetro de ordem supercondutor nas diferentes ilhas são aleatórias, para um estado onde existe ordenamento de fases de longo alcance, como descrito acima no modelo de *pseudo-spin* [45,56,57].

Ainda de acordo com a figura 1.1.2, observa-se que a concentração de Ce afeta fortemente o valor de T_{cj} , enquanto que o valor de T_{ci} é praticamente o mesmo para todos os valores de x no composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($0.0 \leq x \leq 0.2$). De fato, a separação entre T_{ci} e T_{cj} para esse composto pode ser controlada pela dopagem com Ce [12]. Esta é uma característica muito interessante, pois, sendo T_{cj} suficientemente menor que T_{ci} , é possível variar os parâmetros termodinâmicos T e H , de modo a investigar somente as correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor que são desenvolvidas abaixo de T_{cj} . Em temperaturas próximas de T_{cj} e campos magnéticos suficientemente baixos, é possível investigar tais correlações de fase, sem afetar a amplitude do parâmetro de ordem (ou *gap* supercondutor) que se desenvolve em T_{ci} . No caso do composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.18$, o valor de T_{cj} é ~ 8 K e a separação entre T_{ci} e T_{cj} é cerca de 10 K, a maior de toda a série. Essa grande diferença entre T_{ci} e T_{cj} torna o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ um candidato ideal para a investigação do acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras nesses compostos. Neste caso, isto é possível trabalhando-se em temperaturas abaixo de $T_{cj} \sim 8$ K, o que é relativamente fácil do ponto de vista experimental. Quanto ao valor de campo magnético aplicado, é preciso garantir que este não ultrapasse o valor do campo crítico inferior H_{c1} das ilhas supercondutoras no composto. No limite de baixas temperaturas, este valor é de aproximadamente 900 Oe [21,22]. Deste modo, é possível efetuar medidas estáticas ou dinâmicas

em campos magnéticos de até ~ 500 Oe sem que seja afetado o *gap* das ilhas supercondutoras.

No capítulo 3 serão apresentadas os resultados das medidas de $R(T,H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, no limite de baixos campos magnéticos (≤ 200 Oe), pequenas correntes de excitação e baixas temperaturas, $T < T_{cj}$.

1.2 - Supercondutividade Local

No estado normal as amostras policristalinas dos supercondutores tipo *n* são constituídas por ilhas metálicas isoladas em uma matriz isolante [13]. O mecanismo de condução é ativado termicamente, ou seja, é governado pelo tunelamento de elétrons entre as ilhas metálicas [13]. Em $T = T_{ci}$ as ilhas tornam-se supercondutoras e, com a diminuição da temperatura, a concentração de elétrons normais diminui com a formação dos pares de Cooper. Não sendo possível o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras, a diminuição da densidade de elétrons normais leva a um aumento abrupto da resistência elétrica no composto em $T < T_{ci}$. Um dos objetivos desse trabalho foi investigar este comportamento observado em amostras policristalinas do supercondutor dopado com elétrons $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, pertencentes ao lado dielétrico [46] de uma transição SI. Essas amostras apresentam supercondutividade local em $T < T_{ci}$, como mostrado na figura 1.4(b) (ver página 15).

A partir da Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos (TSFDF) [3] é prevista a dependência com a temperatura da densidade de elétrons normais em um supercondutor, em $T < T_{ci}$. Portanto, os resultados dessa teoria são muito importantes para o entendimento das propriedades de transporte do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ no limite de supercondutividade local. Em seguida, são então apresentados os principais resultados da Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos, essenciais para a discussão dos resultados experimentais mostrados no capítulo 4.

Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos

Quando um supercondutor é resfriado abaixo de T_{ci} , elétrons normais começam a se transformar em super-elétrons ou pares de Cooper. De acordo com a Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos [3], nesta condição o supercondutor é constituído de dois fluidos não interagentes: um fluido de elétrons normais e outro de elétrons supercondutores.

Ambas as densidade de elétrons normais (n_n) e a de super-elétrons (n_s) são evidentemente dependentes da temperatura, sendo que a soma destas densidades é a densidade total de elétrons de condução n , ou seja,

$$n_n(T) + n_s(T) = n \quad , \quad (1.2.1)$$

onde em $T = 0$ tem-se que $n_n(0) = 0$, $n_s(0) = n$ e em $T \gg T_{ci}$, $n = n_n$.

Da teoria de Ginzburg-Landau [3], o comprimento de penetração $\lambda(T)$ do supercondutor pode ser descrito por:

$$\lambda(T) = \lambda(0) \left[1 - \left(\frac{T}{T_{ci}} \right)^4 \right]^{-1/2} \quad . \quad (1.2.2)$$

Na equação 1.2.2 $\lambda(0)$ é dado por

$$\lambda(0) = \left(\frac{m}{\mu_0 n_s e^2} \right)^{1/2} \quad , \quad (1.2.3)$$

onde: $e \equiv$ carga do elétron, $m \equiv$ massa do elétron, $\mu_0 \equiv$ permeabilidade do espaço livre e $n_s \equiv$ densidade de super-elétrons. Assumindo-se que a equação

1.2.3 é válida em qualquer temperatura $T < T_{ci}$, a partir dessa equação pode ser escrito:

$$\lambda(T) = \left(\frac{m}{\mu_o n_s(T) e^2} \right)^{1/2} . \quad (1.2.4)$$

A partir das equações 1.2.3 e 1.2.4 a razão entre n_s e n pode ser escrita da seguinte forma:

$$\frac{n_s}{n} = \left[\frac{\lambda(0)}{\lambda(T)} \right] . \quad (1.2.5)$$

De 1.2.2 e 1.2.5, a dependência da temperatura de n_s é dada por:

$$n_s \approx n \left[1 - \left(\frac{T}{T_{ci}} \right)^4 \right] . \quad (1.2.6)$$

Finalmente, substituindo-se a equação 1.2.6 na equação 1.2.1, obtém-se:

$$n_n \approx n \left(\frac{T}{T_{ci}} \right)^4 . \quad (1.2.7)$$

Portanto, de acordo com a TSFDF [3], a partir da equação 1.2.7 conclui-se que a proporção de elétrons que permanece no fluido normal abaixo de T_{ci} deve variar de acordo com $(T/T_{ci})^4$. A partir deste resultado pode-se inferir no intervalo de temperatura $T < T_{ci}$ como deve ser o comportamento de $R(T)$ de um supercondutor granular no chamado regime dielétrico [46]. Nesse caso, em $T < T_{ci}$ a diminuição da densidade de elétrons normais, segundo a equação

1.2.7, acarreta um aumento na resistência elétrica do composto que é proporcional a $(T/T_{ci})^{-4}$.

Enfoque deste trabalho no limite de supercondutividade local

Em sistemas granulares, o desenvolvimento da supercondutividade pode levar a um extremo aumento na resistência elétrica desses compostos em $T < T_{ci}$ [46]. Esse comportamento, observado para um composto polímero-metal e também para filmes de índio e de chumbo [46], foi explicado em termos da TSFDF [3] por Adkins e colaboradores [46].

Neste trabalho investigou-se uma série de amostras policristalinas do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, nas quais também observou-se um abrupto aumento de $R(T)$ abaixo de T_{ci} , como mostrado na figura 1.4.b. Sabe-se que a aplicação de campos magnéticos suficientemente altos pode causar a supressão do *gap* supercondutor nas regiões supercondutoras do material. Como o *gap* supercondutor é proporcional à densidade de super-elétrons ou pares de Cooper [42], com a supressão do *gap* deve ocorrer um aumento na densidade de elétrons normais, causando uma diminuição na resistência elétrica do composto, como previsto pela Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos [3]. Com este objetivo, foram obtidas as curvas de $R(T,H)$ para as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, em campos magnéticos de até 18 T. Desse modo, foi possível investigar a aplicabilidade da TSFDF [3] para o comportamento resistivo dessas amostras no intervalo de temperatura $T < T_{ci}$.

Referências

- [1] J. G. Bednorz e K. A. Müller, *Z. Phys. B* **64**, 189 (1986).
- [2] A. W. Sleight, *Science* **242**, 1519 (1988).
- [3] C. P. Poole Jr, H. A. Farach e R. J. Creswick, *Superconductivity* (Academic, San Diego, 1995).
- [4] Y. Tokura, H. Takagi e S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).
- [5] H. Takagi, S. Uchida e Y. Tokura, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1197 (1989).
- [6] J. T. Markert e M. B. Maple, *Solid State Commun.* **70**, 145 (1989).
- [7] J. T. Markert, E. A. Early, T. Bjomholm, S. Ghamaty, B. W. Lee, J. J. Neumeier, R. D. Price, C. L. Seaman e M. B. Maple, *Physica C* **158**, 178 (1989).
- [8] A. C. W. P. James, S. M. Zahurak e D. W. Murphy, *Nature* **338**, 240 (1989).
- [9] E. A. Early, N. Y. Ayoub, J. Beille, J. T. Markert e M. B. Maple, *Physica C* **160**, 320 (1989).
- [10] I. W. Sumarlin, S. Skanthakumar, J. W. Lynn, J. L. Peng, Z. Y. Li, W. Jiang e R. L. Greene, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2228 (1992).
- [11] R. J. Cava, H. Takagi, R. M. Fleming, J. J. Krajewski, W. F. Peck Jr., P. Bourdet, M. Marezio, B. Batlogg, L. W. Rupp Jr., *Physica C* **199**, 65 (1992).
- [12] E. A. Early, C. C. Almasan, R. F. Jardim e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **47**, 433 (1993).
- [13] R. F. Jardim, L. Ben-Dor, D. Stroud e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **50**, 10080 (1994).
- [14] S. Uji e H. Aoki, *Physica C* **199**, 231 (1992).
- [15] J. E. Hirsch, *Physica C* **243**, 319 (1995).
- [16] W. Jiang, S. N. Mao, X. X. Xi, X. Jiang, J. L. Peng, T. Venkatesan, C. J. Lobb e R. L. Greene, *Phys. Rev. Lett.* **73**, 1291 (1994).

- [17] F. Gollnik e M. Naito, *Phys. Rev. B* **58**, 11734 (1998).
- [18] J. R. Clem, *Phys. Rev. B* **43**, 7837 (1991).
- [19] Y. Hidaka e M. Suzuki, *Nature* **338**, 635 (1989).
- [20] Y. Dalichaouch, B. W. Lee, C. L. Seaman, J. T. Markert e M. B. Maple, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 599 (1990).
- [21] C. C. Almasan, S. H. Han, E. A. Early, B. W. Lee, C. L. Seaman e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **45**, 1056 (1992).
- [22] L. Fábrega, B. Martínez, J. Fontcuberta, X. Obradors e S. Piñol, *Phys. Rev. B* **46**, 5581 (1992).
- [23] D. H. Wu, J. Mao, S. N. Mao, J. L. Peng, X. X. Xi, T. Venkatesan, R. L. Greene, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 85 (1993).
- [24] N. R. Werthamer, E. Helfand e P.C. Hohenberg, *Phys. Rev.* **147**, 295 (1966).
- [25] M. Tinkham, *Introduction to Superconductivity* (McGraw-Hill, New York, 1975).
- [26] U. Welp, W. K. Kwok, G. W. Crabtree, K. G. Vandervoort, J. Z. Liu, *Phys. Rev. Lett.* **62**, 1908 (1989).
- [27] T. T. M. Palstra, B. Batlogg, L. F. Schneemeyer, R. B. Van Dover e J. V. Waszczak, *Phys. Rev. B* **38**, 5102 (1988).
- [28] I. Matsubara, H. Tanigawa, T. Ogura, H. Yamashita, M. Kinoshita, T. Kawai, *Phys. Rev. B* **45**, 7414 (1992).
- [29] K. Kadowaki, Y. Songliu, K. Kitazawa, *Supercond. Sci. Technol.* **7**, 519 (1994).
- [30] T. Sasagawa, K. Kishio, Y. Togawa, J. Shimoyama, K. Kitazawa, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4297 (1998).
- [31] B. Revaz, G. Triscone, L. Fabrega, A. Junod, J. Muller, *Europhys. Lett.* **33**, 701 (1996).

- [32] A. E. Koshelev, L.I. Glazman, A. I. Larkin, Phys. Rev. B **53**, 2786 (1996).
- [33] C. C. Tsuei, A. Gupta e G. Koren, Physica C **161**, 415 (1989).
- [34] M. A. Crusellas, J. Fontcuberta, S. Piñol, Physica C **226**, 311 (1994).
- [35] M. C. de Andrade, Y. Dalichaouch e M. B. Maple, Phys. Rev B **48**, 16737 (1993).
- [36] B. Jiang, B. H. O e J. T Markert, Phys. Rev. B **45**, 2311 (1992).
- [37] R. F. Jardim, E. A. Early e M. B. Maple, J. of Alloys and Compounds **221**, 1 (1995).
- [38] M. R. Beasley, J. E. Mooij e T. P. Orlando, Phys. Rev. Lett. **42**, 1165 (1979).
- [39] M. Tinkham e C. J. Lobb, Solid State Phys. **42**, 91 (1989).
- [40] A. Gerber e G. Deutscher, Phys. Rev. Lett. **63**, 1184 (1989).
- [41] A. M. Finkel'stein, Physica B **197**, 636 (1994).
- [42] Parks, R. D. Superconductivity, v. 1, (New York, 1969).
- [43] D. B. Haviland, Y. Liu e A. M. Goldman, Phys. Rev. Lett. **62**, 2180 (1989).
- [44] R. C. Dynes, A. E. White, J. M. Graybeal e J. P. Garno, Phys. Rev. Lett. **57**, 2195 (1986).
- [45] W. Y. Shih, C. Ebner e D. Stroud, Phys. Rev. B **30**, 134 (1984).
- [46] C. J. Adkins, J. M. D. Thomas e M. W. Young, J. Phys. C: Solid State Phys. **13**, 3427 (1980).
- [47] A. F. Hebard e M. A. Paalanen, Phys. Rev. Lett. **65**, 927 (1990).
- [48] B. G. Orr, H. M. Jaeger e A. M. Goldman, Phys. Rev. B **32**, 7586 (1985).
- [49] G. Eytan, R. Rosenbaum, D. S. Mclachlan e A. Albers, Phys. Rev. B **48**, 6342 (1993).
- [50] S. J. Lee e J. B. Ketterson, Phys. Rev. Lett. **64**, 3078 (1990).
- [51] Y. G. Morozov e V. I. Petinov, Sov. J. Low Temp. Phys. **2**, 353 (1976).

- [52] M. Kunchur, Y. Z. Zhang, P. Lindenfeld, W. L. Mclean e J. S. Brooks, *Phys. Rev. B* **36**, 4062 (1987).
- [53] M. J. R. Sandim, P. A. Suzuki, S. Spagna, S. Tripp, R. E. Sager e R. F. Jardim, *Physica C* **289**, 265 (1997).
- [54] R. F. Jardim, L. Ben-Dor e M. B. Maple, *J. of Alloys and Compounds* **199**, 105 (1993).
- [55] R. F. Jardim, M. C. de Andrade, E. A. Early, M. B. Maple e D. Stroud, *Physica C* **232**, 145 (1994).
- [56] C. Ebner e D. Stroud, *Phys. Rev. B* **31**, 165 (1985).
- [57] Sajeev John e T. C. Lubensky, *Phys. Rev. B* **34**, 4815 (1986).
- [58] K. H. Lee e D. Stroud, *Phys. Rev. B* **45**, 2417 (1992).
- [59] Z. Q. Wang e D. Stroud, *Phys. Rev. B* **44**, 9643 (1991).

2- Procedimento Experimental

2.1- Sobre o método de preparação de amostras

O procedimento para obtenção de compostos supercondutores dopados com elétrons $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} \equiv \text{Nd, Pr, Sm, Eu}$; $\text{M} \equiv \text{Ce, Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) [1] envolve duas etapas: (a) substituição do elemento Ln por Ce ou Th no composto $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$ de estrutura T' [1] e (b) redução do material resultante. Para a obtenção de amostras de boa qualidade são necessários uma efetiva difusão de Ce na estrutura T' e uma certa uniformidade na remoção de oxigênio durante o processo de redução [2].

A difusão do cério na estrutura $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$ é muito difícil quando se utilizam os respectivos óxidos elementares como materiais de partida (método cerâmico tradicional de preparação de amostras) [3]. Isto se deve à baixa razão de difusão atômica do cério na matriz de $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$ em temperaturas abaixo de ~ 1050 °C, a temperatura eutética típica desta família de compostos [4]. Neste caso, para uma completa difusão do cério na estrutura é necessário promover a sinterização assistida por uma fase líquida (~ 1100 °C). Nestas condições, apesar da boa difusão do cério na estrutura, os grãos resultantes apresentam composição estequiométrica não-homogênea. Normalmente, a sinterização assistida por uma fase líquida resulta na formação de amostras com grãos maiores e baixa porosidade [5]. Deste modo, a remoção de oxigênio durante o processo de redução não ocorre de modo uniforme, resultando em um gradiente na concentração de oxigênio através da amostra [5].

Uma rota alternativa para a obtenção de amostras de boa qualidade dos compostos $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} \equiv \text{Nd, Pr, Sm, Eu}$; $\text{M} \equiv \text{Ce, Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) é aquela que utiliza o método químico denominado de sol-gel [2,6]. Este método permite a obtenção de um precursor altamente homogêneo, a nível atômico, do ponto de vista da distribuição catiônica (Ln, Ce, Th e Cu) [2]. Os pós obtidos

através do método sol-gel apresentam também uma maior reatividade pelo fato de serem constituídos por partículas bastante pequenas (maior superfície específica). Com isto, amostras homogêneas e de alta qualidade podem ser obtidas em um intervalo de tempo mais curto e utilizando temperaturas de sinterização mais baixas do que as utilizadas no método tradicional [2]. Conseqüentemente, mesmo em temperaturas mais baixas que a eutética, ocorre uma maior difusão do cério na estrutura $\text{Ln}_2\text{CuO}_{4-y}$ [2,6].

A porosidade final das amostras sinterizadas a partir de pós obtidos pelo método sol-gel [2,6] depende da temperatura de sinterização. Se a sinterização é realizada abaixo da temperatura de formação de uma fase líquida, as amostras apresentam maior porosidade. Esta maior porosidade residual tem a vantagem de permitir uma distribuição aniônica (O) mais homogênea através da amostra durante o processo de redução. Finalmente, através do método sol-gel [2,6] é possível controlar o tamanho de grão final das amostras através da temperatura de sinterização, propiciando um melhor controle microestrutural das cerâmicas resultantes.

Devido às vantagens acima descritas para a obtenção dos compostos $\text{Ln}_{2-x}\text{M}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} \equiv \text{Nd, Pr, Sm, Eu}$; $\text{M} \equiv \text{Ce, Th}$; $0.0 \leq x \leq 0.2$) pelo método sol-gel [2,6], este foi o método escolhido para a obtenção dos compostos de $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, com $x = 0.17$ e 0.18 , investigados nesse trabalho.

2.2- Preparação dos compostos $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$

Nesta seção é descrito o procedimento de preparação de amostras policristalinas de $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ pela técnica sol-gel [2,6], cujas principais etapas são mostradas na figura 2.2.1. Para isto, quantidades estequiométricamente apropriadas de $\text{Sm}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$, $(\text{NH}_4)_2\text{Ce}(\text{NO}_3)_6$ e $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$ foram pesadas para a obtenção de aproximadamente 7g de $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$.

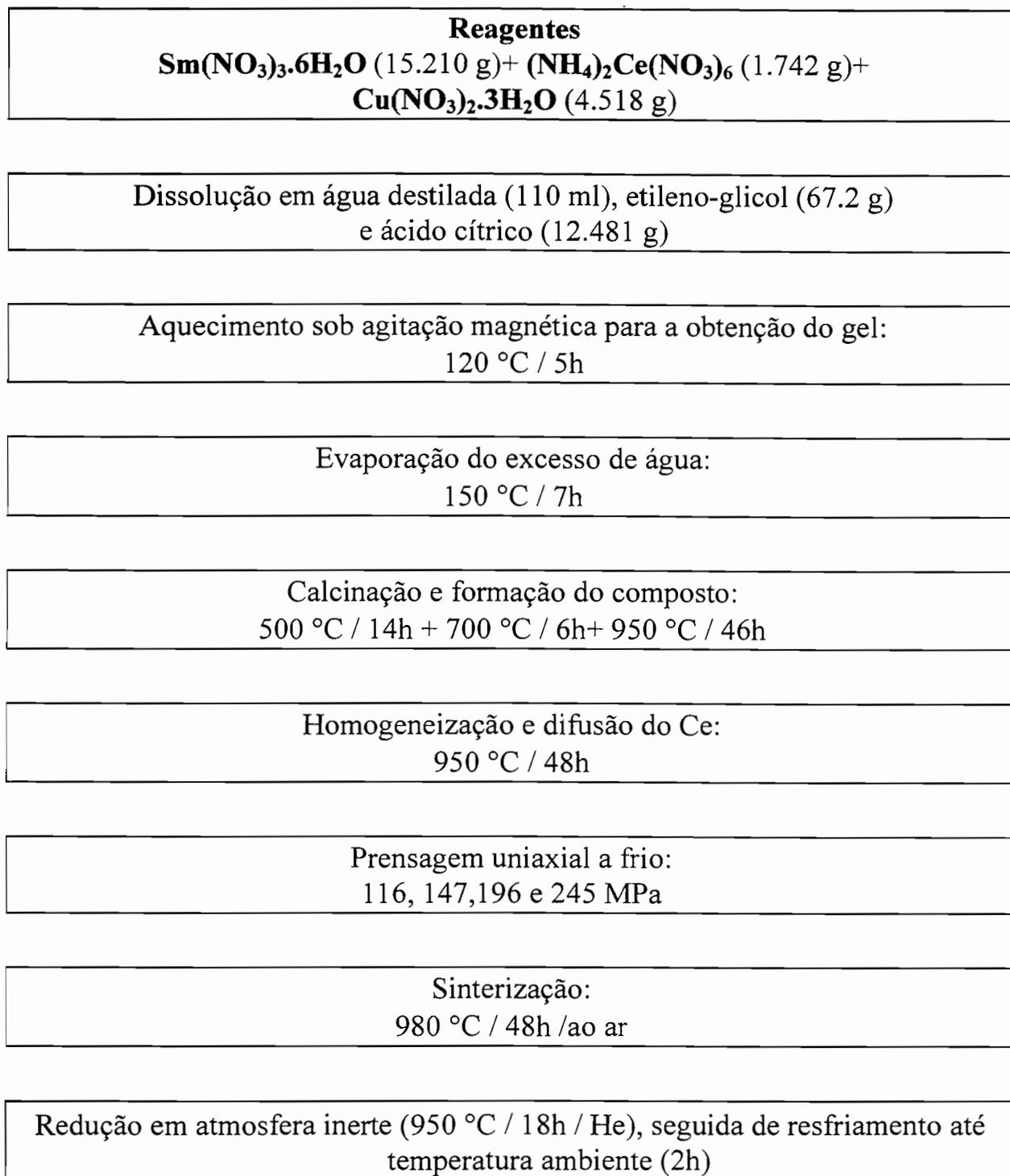


Figura 2.2.1: Fluxograma do processamento das amostras de $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ pelo método sol-gel.

O grau de pureza dos reagentes fornecidos pela Johnson Matthey é de 99.5 % para o $(\text{NH}_4)_2\text{Ce}(\text{NO}_3)_6$ e de 99.999% para o $\text{Sm}(\text{NO}_3)_3 \cdot 6\text{H}_2\text{O}$ e $\text{Cu}(\text{NO}_3)_2 \cdot 3\text{H}_2\text{O}$. Em um *beaker* de 500 ml, estes reagentes foram dissolvidos em ~ 110 ml de

água, juntamente com 12 g de ácido cítrico. Sob agitação magnética e baixas temperaturas ($T \leq 50 \text{ }^\circ\text{C}$), o ácido cítrico é completamente dissolvido em poucos minutos. Em seguida foram adicionados 67 g de etileno-glicol e a solução resultante (de coloração turquesa) foi aquecida a $120 \text{ }^\circ\text{C} / 5\text{h}$, também sob agitação magnética. Nesta etapa, ocorre a decomposição dos nitratos e a evolução de NO_2 é frequentemente observada. Ao final desse processo, a solução torna-se coloidal e o gel é formado. Após esta etapa o gel é transferido para um cadinho de alumina, o qual é colocado sobre uma placa quente. Com a evaporação do excesso de água, sob aquecimento a $150 \text{ }^\circ\text{C} / 7\text{h}$, ocorre um processo de ignição espontânea e a transformação do gel em pó. Este pó é calcinado em uma mufla em temperaturas de até $950 \text{ }^\circ\text{C}$ para a formação do composto desejado. Para a homogeneização e completa difusão do cério é necessário um tratamento térmico adicional a $950 \text{ }^\circ\text{C} / 48\text{h}$.

O pó resultante foi moído durante 1 h em um moinho de bolas modelo Retsch, fabricado pela Brinkmann. Após a moagem, retirou-se uma pequena quantidade de pó para a caracterização por difração de raios-X. Finalmente, o pó foi prensado na forma de pastilhas, as quais foram submetidas a um processo de sinterização e posterior redução. Estes processos são descritos em maiores detalhes nas seções seguintes.

2.3- Caracterização por difração de raios-X

Após a etapa de homogeneização e difusão do cério, o pó resultante foi caracterizado por meio da difração de raios-X com o auxílio de um difratômetro Philips, modelo PW1710, equipado com monocromador e filtro de Ni, instalado no Departamento de Engenharia de Minas da Escola Politécnica (USP). Utilizou-se uma radiação $\text{Cu-K}\alpha$, com comprimentos de onda $K_{\alpha 1} = 1,54060 \text{ \AA}$ e $K_{\alpha 2} = 1,54439 \text{ \AA}$. Os difratogramas de raios-X foram obtidos no intervalo de $20 \leq 2\theta \leq 80^\circ$, passo angular de 0.05° e tempo de aquisição de até 10 s.

2.4- Compactação das amostras

Amostras de compostos $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ foram compactadas em uma matriz de aço-carbono temperada, com diâmetro interno de 15 mm, utilizando uma prensa hidráulica marca Schulz, modelo PHS, com capacidade máxima de 15 tf, instalada no DEMAR-FAENQUIL. As amostras foram compactadas sob quatro diferentes pressões de compactação: 116, 147, 196 e 245 MPa.

Por convenção, as amostras provenientes das pastilhas submetidas às diferentes pressões de compactação serão identificadas como S-116, S-147, S-196 e S-245, respectivamente.

2.5- Sinterização das amostras

A sinterização das pastilhas cilíndricas foi realizada em um forno resistivo tubular, aquecido por meio de uma resistência espiralada de Kanthal-1, de fabricação própria do DEMAR-FAENQUIL. O tratamento térmico de redução do teor de oxigênio necessário para a indução de supercondutividade nas amostras, foi realizado sob fluxo de argônio (99.999 % de pureza), em um forno tubular resistivo Lindberg modelo 55035A, com controlador de temperatura, rampas de aquecimento e resfriamento, modelo 847, instalado no IF-USP.

2.6- Microscopia eletrônica de varredura

A caracterização microestrutural das amostras foi realizada com o auxílio de um microscópio eletrônico de varredura JEOL, modelo JXA-6400, instalado no CTM, São Paulo. A análise morfológica utilizou imagens geradas por elétrons secundários (SEI– *secondary electron image*), com aumentos no intervalo de 1000-7000 vezes, para evidenciar aspectos microestruturais tais como a topologia e a porosidade das amostras. As amostras foram fraturadas e então recobertas com um filme de ouro utilizando-se dois equipamentos para

deposição de filmes: um *sputtering* Bal-Tec, modelo SCD 050, instalado no Departamento de Engenharia de Minas (POLI-USP) e um *sputtering* Balzers-Union, modelo SCD 040, instalado no IPEN. O *sputtering* Bal-Tec foi utilizado para recobrir a amostra S-245 com um filme de ouro após um tempo de exposição de 80 s, sob vácuo de 2×10^{-2} mbar. As demais amostras também foram recobertas com um filme de ouro utilizando-se o *sputtering* Balzers, com tempo de exposição de 60 s, sob vácuo de 5.0×10^{-2} mbar.

2.7 - Medidas de susceptibilidade magnética em função da temperatura

Foram obtidas curvas de susceptibilidade magnética das amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ utilizando-se um magnetômetro de amostra vibrante Foner e um *squid* da Quantum Design, modelo MPMS-XL. Estas curvas foram obtidas pelos processos *zero-field-cooled* (ZFC) e *field-cooled* (FC).

No processo ZFC, as amostras são resfriadas a partir do estado normal até ~ 3.5 K, em campo magnético nulo. Quando a temperatura de 3.5 K é atingida, o campo magnético é aplicado e a curva de susceptibilidade magnética é tomada durante o aquecimento da amostra. Para o processo caracterizado como FC, essa curva é obtida durante o lento resfriamento da amostra a partir do estado normal, na presença de campos magnéticos.

As curvas de susceptibilidade magnética foram obtidas sob campos magnéticos da ordem de 2 Oe, para a determinação da fração supercondutora das amostras. Estas curvas também foram obtidas para $H = 7$ T para verificação do ordenamento anti-ferromagnético da sub-rede dos íons Sm^{+3} em baixas temperaturas.

2.8 - Medidas de transporte

O presente trabalho trata da investigação das propriedades de transporte de $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17, 0.18$, no limite de baixos ($0 < H < 200$ Oe) e altos campos magnéticos ($0 < H < 18$ T). No limite de baixos campos magnéticos foram investigadas amostras de $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ [7], preparadas a partir de precursores sol-gel [2,6]. As amostras de $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ obtidas com diferentes graus de compactação foram investigadas no limite de altos campos magnéticos.

As medidas de transporte foram efetuadas utilizando-se o método das quatro pontas ac e dc. Todas as amostras foram cortadas na forma de paralelepípedos com aproximadamente $2 \times 2 \times 8$ mm³ com o auxílio de uma cortadeira de baixa velocidade modelo Isomet, da Buehler. Os contatos elétricos foram colocados nas amostras de acordo com o seguinte procedimento:

a) um filete de ouro coloidal foi depositado em quatro regiões em uma das faces das amostras (*bright brushing gold*);

b) cada amostra foi então tratada termicamente a 300 °C por 3 minutos para a transformação dos filetes em filmes de ouro sobre o material;

c) em seguida, quatro fios (Cu e/ou Pt) foram fixados sobre os filmes de ouro utilizando-se *epoxy* de prata;

d) o conjunto foi então submetido a um novo tratamento térmico a 150 °C por 5 minutos. Ao final desse processo, a resistência elétrica das amostras resultou no mínimo dez vezes menor que a obtida antes da colocação dos contatos (em temperatura ambiente).

Para facilitar a apresentação dos resultados, a descrição das medidas de transporte será subdividida em dois itens, o primeiro referente ao limite de baixos campos magnéticos e o segundo referente ao limite de altos campos magnéticos aplicados.

Medidas de transporte no limite de baixos campos magnéticos

O campo magnético foi gerado por uma bobina de cobre, refrigerada à água, capaz de gerar no máximo 450 Oe, com uma variação máxima de campo de 0.5 % para uma distância de ~ 60 mm a partir do centro do enrolamento. A constante da relação campo-corrente desta bobina é igual a 103.75 Oe/A. A bobina de cobre foi alimentada por uma fonte de corrente e tensão Keithley, modelo 228A. O monitoramento da corrente que passa no enrolamento foi feito a partir da medida da tensão em um *shunt* (DALE NH-25, 25 W, 0.2 Ω), ligado em série com a bobina, por um multímetro Keithley modelo 196. Devido às características da fonte de corrente Keithley 228 A e da bobina de cobre, o máximo campo magnético que pode ser gerado foi de ~ 200 Oe. Através de um programa de aquisição de dados foi possível determinar o incremento de corrente com que a bobina foi carregada. Foram utilizados dois incrementos de corrente para o carregamento da bobina: 0.001 e 0.005 A em um intervalo de tempo de 3s, o que equivale a uma variação de campo magnético aplicado de 0.1 e 0.5 Oe no mesmo intervalo de tempo, respectivamente.

O suporte de amostras foi inserido em um criostato de cauda, cuja parte inferior encontrava-se inserida no *bore* da bobina de cobre. A amostra foi fixada ao porta-amostras de tal forma que o campo aplicado fosse paralelo ao sentido de aplicação da corrente de excitação, fornecida por uma fonte de corrente Keithley modelos 220 ou 224. Próximo à amostra posicionou-se um sensor de temperatura tipo Cernox. Este sensor foi escolhido em função de ser pouco sensível à variação do campo magnético aplicado. O termômetro foi alimentado por uma corrente de excitação de 0.1 mA, fornecida por uma fonte de corrente Keithley modelos 220 ou 224. As tensões sobre a amostra e o sensor de temperatura foram lidas por um nanovoltímetro Keithley modelo 181 e por um multímetro Keithley modelo 182, respectivamente. Na figura 2.8.1 é mostrada uma representação esquemática do sistema de medidas acima descrito.

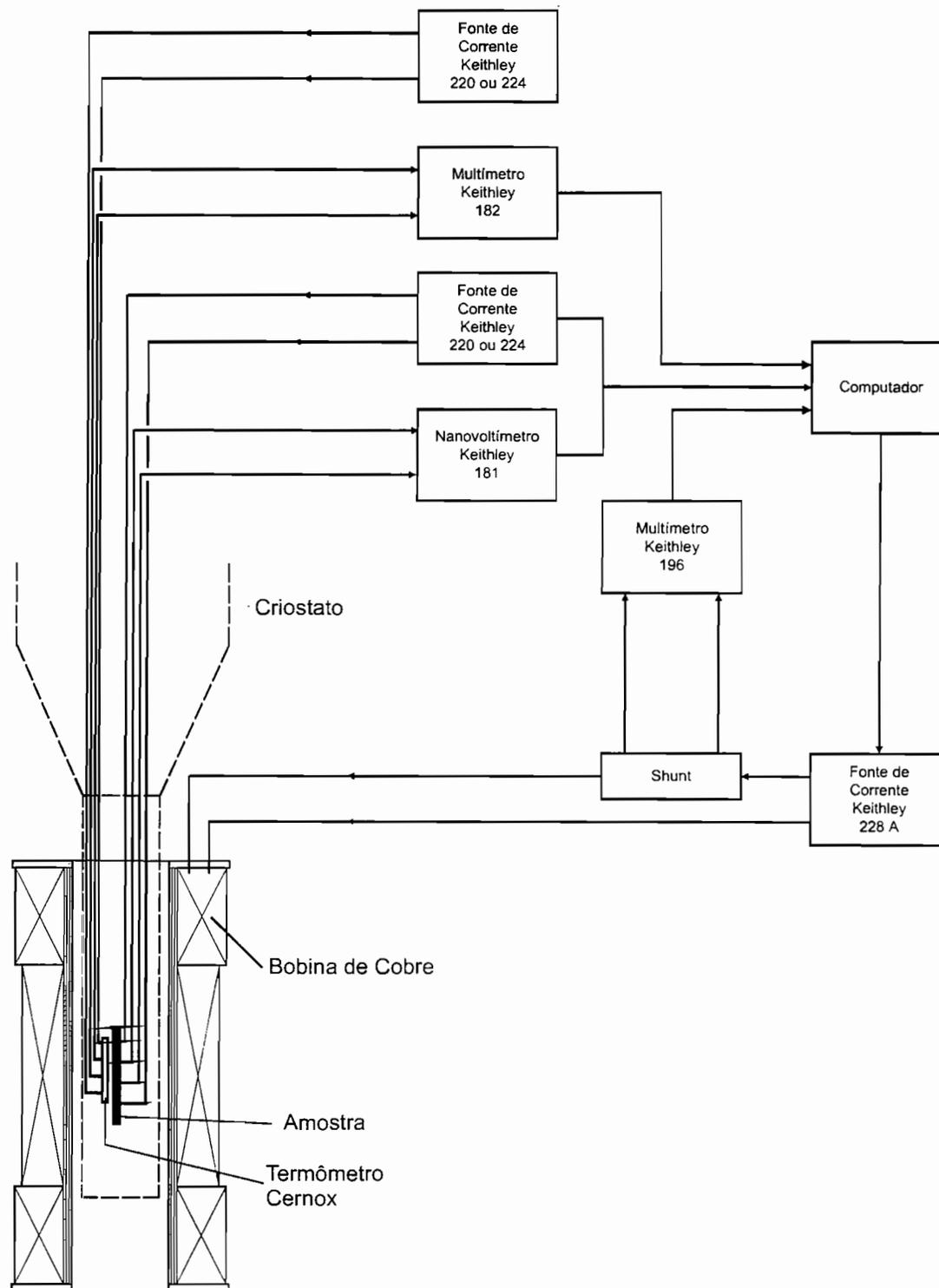


Figura 2.8.1: Representação esquemática do sistema de medidas utilizado nas medidas de transporte no limite de baixos campos magnéticos.

Para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, utilizando-se o sistema de medidas anteriormente descrito, foram obtidas curvas de resistência elétrica em função do campo magnético, $R(H)$, resistência elétrica em função da temperatura, $R(T)$,

e de tensão em função da corrente de excitação, I-V. Todas essas curvas foram obtidas após o resfriamento da amostra a partir do estado normal até $T = 4.2$ K, sob campo magnético nulo. Em geral, as medidas efetuadas em temperatura fixa de 4.2 K tiveram o propósito de evitar efeitos de auto-aquecimento da amostra.

As medidas de $R(H)$ foram realizadas no limite de baixos campos magnéticos, $0.5 \leq H \leq 200$ Oe, em uma temperatura fixa de 4.2 K, utilizando-se valores de corrente de excitação (I_{ex}) no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 18$ mA. Para valores de I_{ex} no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, as curvas de $R(H)$ foram obtidas no sentido crescente e decrescente do campo magnético aplicado, com um incremento de 0.5 Oe no intervalo de tempo de 3 s. O ramo da curva de $R(H)$ para o campo magnético no sentido decrescente foi obtido imediatamente após o campo magnético ter atingido o seu valor máximo (~ 200 Oe) no sentido crescente.

As curvas de $R(T)$, foram obtidas com $I_{ex} = 1$ mA, para valores de campo magnético H no intervalo $0 \leq H \leq 10$ Oe. A variação de temperatura foi obtida utilizando-se um enrolamento de manganina nas extremidades do suporte de amostras.

As curvas I-V foram obtidas para valores de campo magnético no intervalo $0 < H \leq 200$ Oe, em uma temperatura fixa de 4.2 K. Os incrementos da corrente de excitação utilizados foram de 0.1 e 0.25 mA para curvas I-V com corrente máxima de 50 e 90 mA, respectivamente. Para alguns valores de campo magnético aplicado, as curvas I-V foram obtidas tanto no sentido crescente como no sentido decrescente da corrente. As curvas I-V obtidas com a corrente no sentido decrescente foram obtidas imediatamente após a corrente aplicada ter atingido seu valor máximo no sentido crescente.

Medidas de transporte no limite de altos campos magnéticos

As medidas de magneto-resistência $R(T,H)$ do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ em campos magnéticos de até 8.8 T e temperaturas tão baixas quanto 4.2 K, foram realizadas utilizando-se um equipamento do tipo PPMS (*Physical Properties Measurements System*) da Quantum Design, instalado na Quantum Design, CA, USA. Foram empregadas densidades de corrente de excitação variando no intervalo $6 \times 10^{-6} \leq J \leq 1 \times 10^{-2} \text{ A/cm}^2$, com a corrente de excitação perpendicular ao campo magnético aplicado.

Para medidas de $R(T,H)$ em campos magnéticos tão altos quanto 18 T, utilizou-se um magneto supercondutor de 20 T da Oxford, instalado no Los Alamos National Laboratory, NM - USA. As amostras foram posicionadas no porta-amostras de tal forma que o sentido de aplicação do campo fosse perpendicular à corrente de excitação. As densidades de corrente de excitação utilizadas, fornecidas por uma ponte de resistência AC, modelo LR-700, da Linear Research, foram da ordem de 10^{-4} A/cm^2 para as amostras S-116 e S-147 e 10^{-3} , 10^{-4} e 10^{-5} A/cm^2 para a amostra S-245. O porta-amostras, inserido em uma câmara de variação de temperatura, permitiu que as amostras fossem resfriadas até 2.5 K, medidas por um termômetro do tipo Cernox, calibrado em campos magnéticos de até 18 T. O controle de temperatura foi feito por um equipamento modelo DRC-93C da Lake Shore. As curvas de resistência elétrica em função da temperatura $R(T)$, no intervalo $2.5 \leq T \leq 200 \text{ K}$, foram realizadas para valores fixos de campo magnético de até 18 T. Curvas de resistência elétrica em função do campo magnético $R(H)$, no intervalo $0 \leq H \leq 18 \text{ T}$, também foram obtidas. Algumas curvas de $R(H)$ foram obtidas nos sentidos crescente e decrescente do campo magnético.

Referências

- [1] Y. Tokura, H. Takagi e S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).
- [2] R. F. Jardim, L. Ben-Dor e M. B. Maple, *J. Alloys Compounds* **199**, 105 (1993).
- [3] M. E. Lopez-Morales, R. J. Savoy e P. M. Grant, *J. Mater. Res.* **5** 2041 (1990).
- [4] R. J. Cava, H. Takagi, R. M. Fleming, J. J. Krajewski, W. F. Peck Jr, P. Bordet, M. Marezio, B. Batlogg e L. W. Rupp Jr., *Physica C* **199**, 65 (1992).
- [5] R. F. Jardim, E. A. Early e M. B. Maple, *J. Alloys Compounds* **221**, 1 (1995).
- [6] P. A. Suzuki e R. F. Jardim, *Physica C* **267**, 153 (1996).
- [7] R. F. Jardim, L. Ben-Dor, D. Stroud e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **50**, 10080 (1994).

3- Propriedades de transporte no limite de baixos campos magnéticos: $0 \leq H \leq 200$ Oe

3.1- Caracterização microestrutural do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$

A observação da superfície de fratura com o auxílio de um microscópio eletrônico de varredura, utilizando imagens de elétrons secundários, foi a melhor maneira de caracterizar a microestrutura do material. Esta técnica permite observar a topologia da superfície de fratura e identificar detalhes referentes ao processo de sinterização, tais como a morfologia dos poros e o grau de densificação do material.

A figura 3.1.1 mostra a superfície de fratura da amostra do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ sob diferentes aumentos. De um modo geral, a amostra apresenta baixa porosidade. Pode-se observar a presença de planos de clivagem, característicos em superfícies de fratura de materiais frágeis. Poros esféricos isolados são observados, indicando que o material atingiu o estágio final da sinterização. O tamanho de grão d está compreendido no intervalo $1 \leq d \leq 10 \mu\text{m}$, aproximadamente.

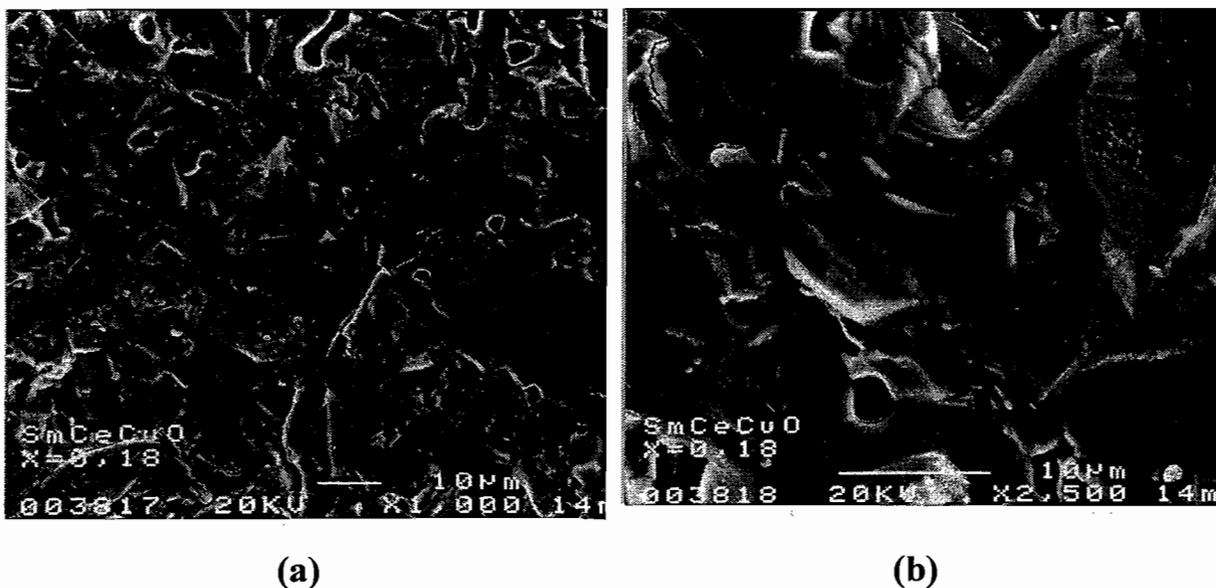


Figura 3.1.1: Fotomicrografia da superfície de fratura da amostra do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ com aumento de (a) 1000 vezes e (b) 2500 vezes.

3.2 - Propriedades de transporte

Curvas de $R(T)$ para valores fixos de H

O supercondutor granular $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ descrito na página anterior foi caracterizado por medidas de resistividade elétrica em função da temperatura $\rho(T)$. Na figura 3.2.1 é apresentada a curva de resistividade elétrica para esse composto supercondutor em temperaturas abaixo de 250 K, a campo magnético nulo, evidenciando seu comportamento semicondutor para o estado normal. Com a diminuição da temperatura este composto atinge o estado de supercondutividade global, apresentando uma dupla transição supercondutora destacada na figura 3.2.2, onde são indicadas as temperaturas $T_{ci} \approx 20$ K e $T_{cj} \approx 9$ K definidas na introdução.

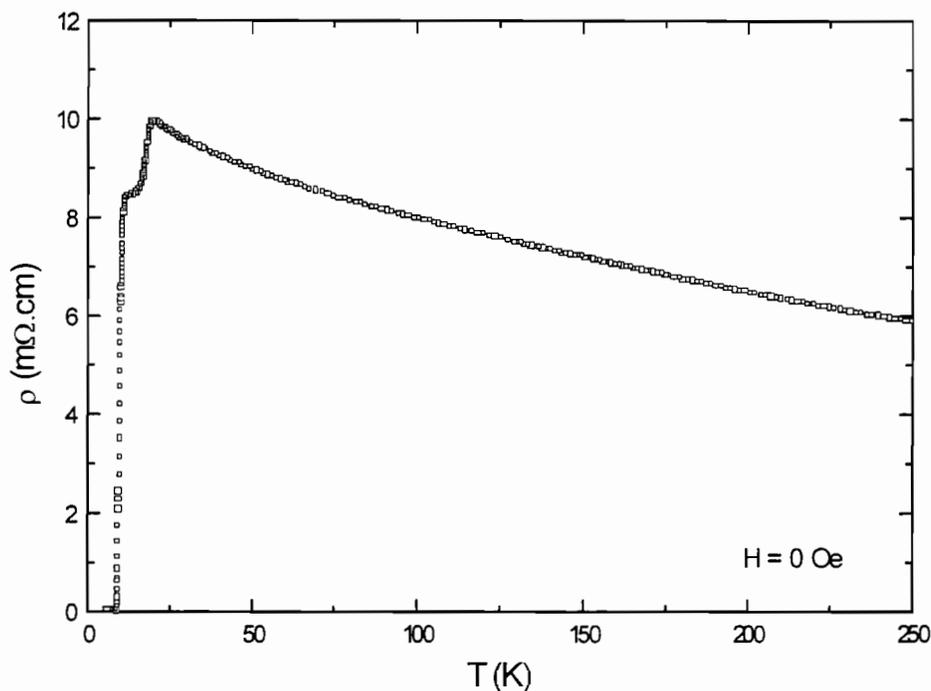


Figura 3.2.1: Resistividade elétrica em função da temperatura $\rho(T)$ para o $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ policristalino, em $T \leq 250$ K, campo magnético nulo e corrente de excitação 10^2 μA .

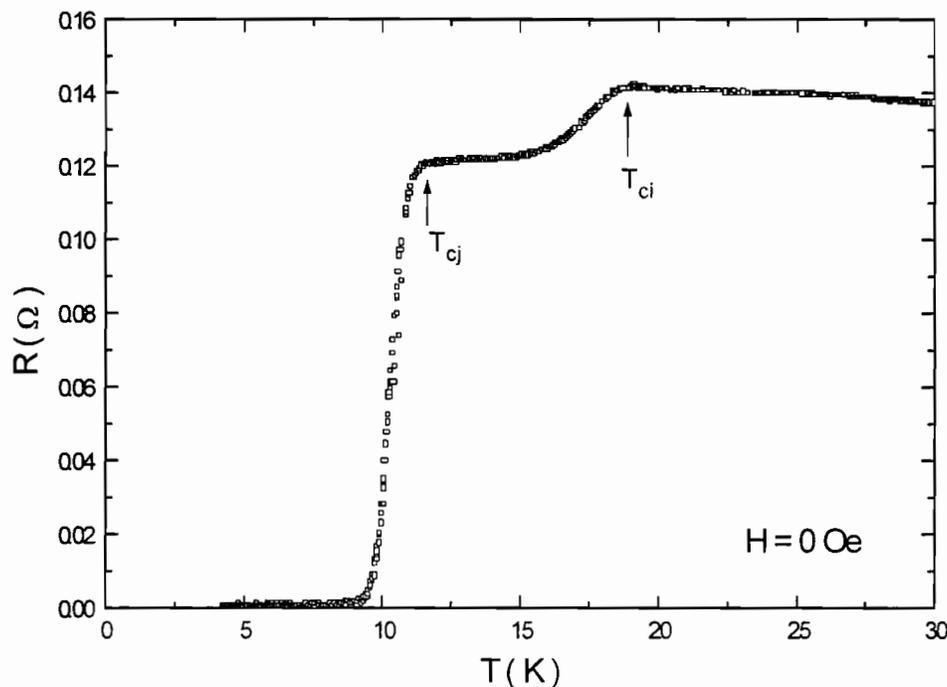


Figura 3.2.2: $R(T)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ a campo magnético nulo, para corrente de excitação de 1 mA, com destaque para a dupla transição supercondutora, através da indicação de T_{ci} e T_{cj} .

Na figura 3.2.3 são apresentadas as curvas de $R(T)$ para o $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ policristalino, para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 < H < 10$ Oe e $I_{ex} = 1$ mA. A partir dessa figura observou-se que, em temperaturas $T < T_{cj} \approx 9$ K a aplicação de campos magnéticos altera fortemente a forma das curvas de $R(T)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ causando o alargamento da transição resistiva. Semelhante alargamento da transição resistiva nesse composto foi obtido com a variação da corrente de excitação [1], o que torna evidente que o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras do material desenvolve-se abaixo de $T_{cj} \approx 9$ K. O entendimento dos resultados mostrados na figura 3.2.3 requer considerações acerca da morfologia da amostra e da forma como ocorre a penetração de campo magnético em supercondutores granulares. Acerca deste ponto é sabido que

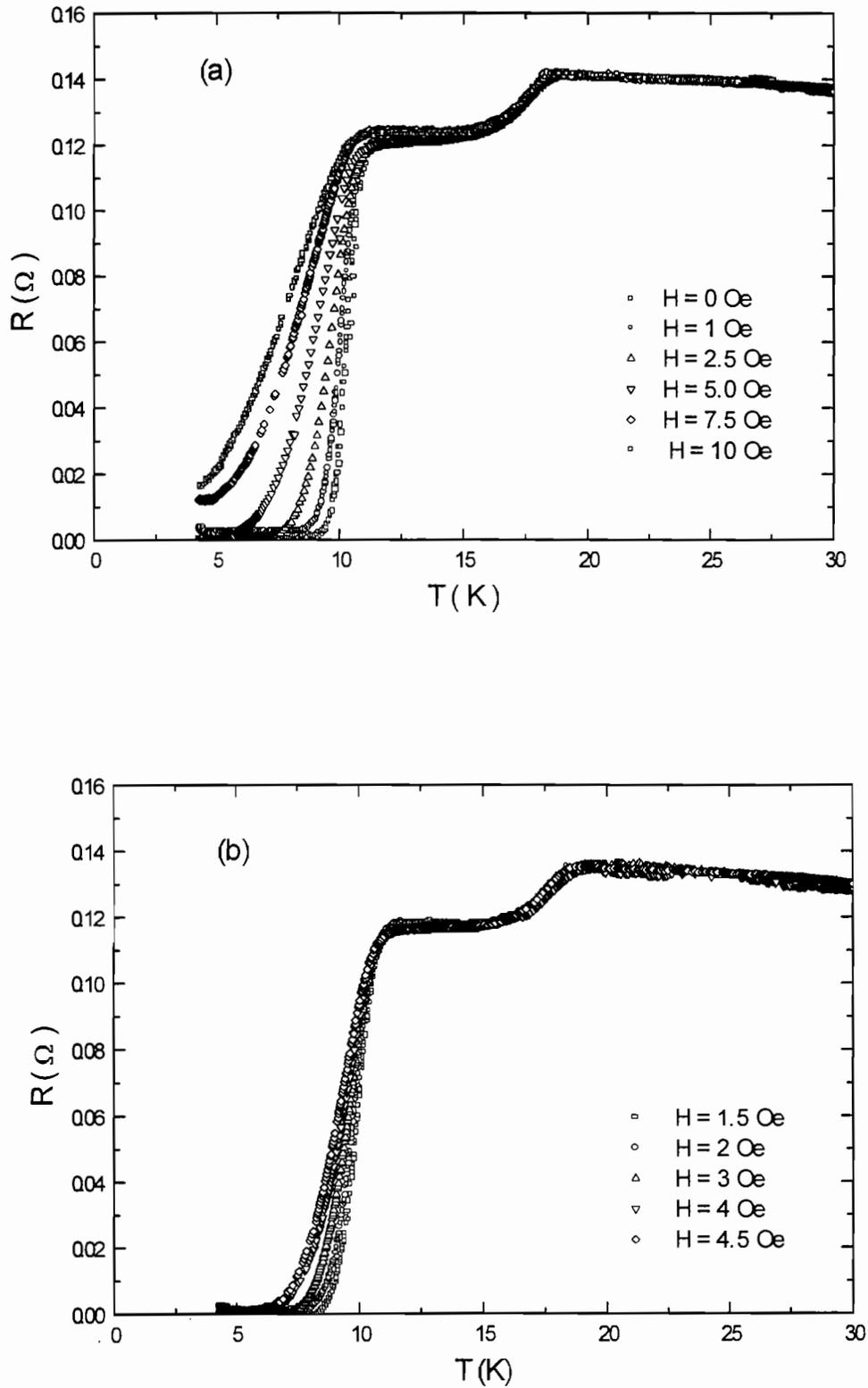


Figura 3.2.3: $R(T)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ para (a) $0 \leq H \leq 10$ Oe e (b) $1.5 \leq H \leq 4.5$ Oe, para $I_{\text{ex}} = 1$ mA.

esses compostos são constituídos de ilhas supercondutoras imersas em uma matriz isolante. Quando o campo magnético é aplicado a uma amostra resfriada em condições ZFC, ele penetra inicialmente e preferencialmente nas regiões isolantes do material, ou seja, nas regiões de contorno de grão do material policristalino. Neste caso, o máximo campo magnético aplicado ao composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ (~ 10 Oe) é muito menor do que o valor estimado do campo crítico inferior $H_{c1}(0) \sim 900$ Oe das ilhas supercondutoras neste composto [2,3]. Consequentemente, as ilhas supercondutoras do composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ não são afetadas por campos magnéticos da ordem de 10 Oe. Por outro lado, a perda da coerência de fase em regiões conectadas pelas super-correntes resulta na penetração de vórtices de Josephson no material. Neste regime, os *loops* de super-correntes atuam como centros de aprisionamento para esses vórtices. Entretanto, devido à flutuações térmicas, é inevitável a dissipação associada ao movimento dos vórtices de Josephson nas regiões de fraco aprisionamento. Com o aumento da temperatura essa dissipação aumenta consideravelmente e o resultado final é o observado nas curvas de $R(T)$ da figura 3.2.3, ou seja, um aumento apreciável na magnitude de $R(T)$.

Para os HTSC comumente se verifica um alargamento da transição resistiva em função do campo magnético aplicado, mesmo em amostras monocristalinas de boa qualidade [4]. Essa largura da transição resistiva não é governada somente pela orientação relativa entre campo magnético e corrente, mas também por mecanismos de dissipação independentes da força de Lorentz, os quais tem sua origem na flutuação da fase do parâmetro de ordem supercondutor. O alargamento da transição resistiva para os HTSC é tal que pode ser descrito por uma lei do tipo Arrhenius:

$$R(T,H,I) = R_0 \exp[-U(T,H,I)/k_B T] \quad , \quad (3.2.1)$$

a qual é típica do modelo de dissipação que pressupõe arraste de fluxo [5], onde $U(T,H,I)$ é uma energia de ativação.

No estudo das correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, um dos objetivos deste trabalho foi investigar como se processa a transição do estado de coerência de fase global para o estado resistivo nesse composto. A partir da figura 3.2.3(a) é evidente que um campo aplicado de 7.5 Oe já é suficiente para que o material apresente resistência elétrica não nula, ainda que $T = 4.2$ K. A partir das curvas de $R(T)$ para valores fixos de campo magnético no intervalo $0 \leq H \leq 5.5$ Oe, foram obtidas as correspondentes curvas de $\ln R$ versus $1/T$, as quais são mostradas na figura 3.2.4.

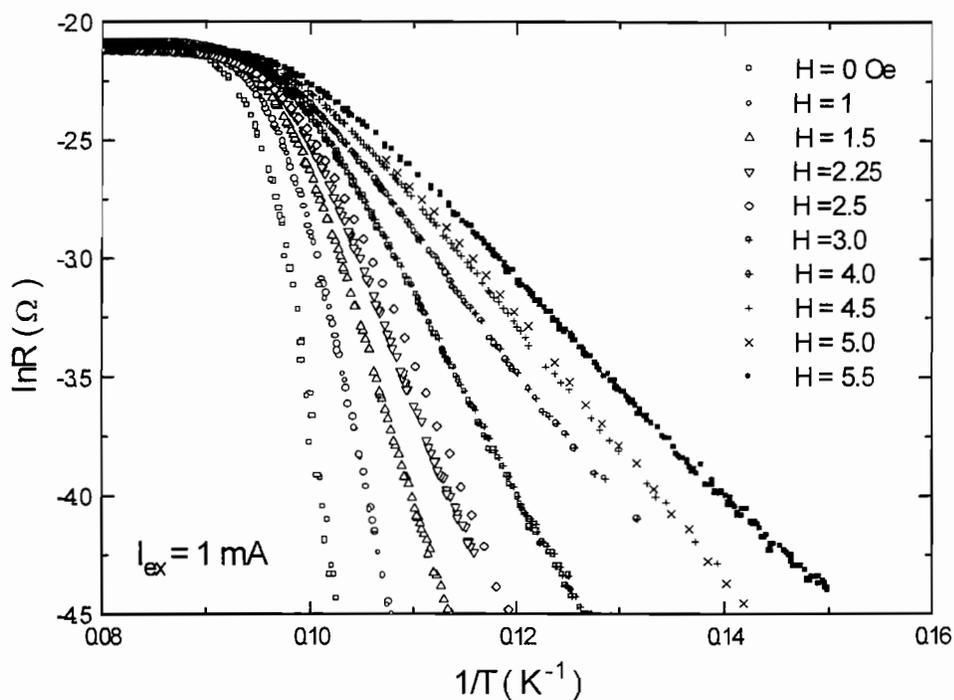


Figura 3.2.4: Curvas de $\ln R$ em função de $1/T$, para $I_{ex} = 1$ mA, para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 \leq H \leq 5.5$ Oe.

A partir dessa figura observou-se a linearidade de $\ln R$ em função de $1/T$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, em um certo intervalo de temperatura. A partir da equação 3.2.1 o comportamento de $R(T)$ pode ser escrito:

$$\ln R = \ln R_0 + (-U_J/k_B)(1/T) \quad , \quad (3.2.2)$$

onde U_J é a energia de ativação intergranular ou de Josephson. Portanto, a linearidade das curvas de $\ln R \times 1/T$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ em um certo intervalo de temperatura, confirma que o alargamento de $R(T)$ em função de H para esse composto pode ser atribuído à dissipação causada por arraste de fluxo, relativo aos vórtices de Josephson. A partir da inclinação das retas de $\ln R \times 1/T$ mostradas na figura 3.2.4 é possível estimar a energia de ativação intergranular ou de Josephson U_J para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, utilizando-se a equação 3.2.2. Os valores calculados de $U_J(H)$ encontram-se na tabela 3.2.1. A figura 3.2.5 mostra a correspondente curva de $U_J(H)$.

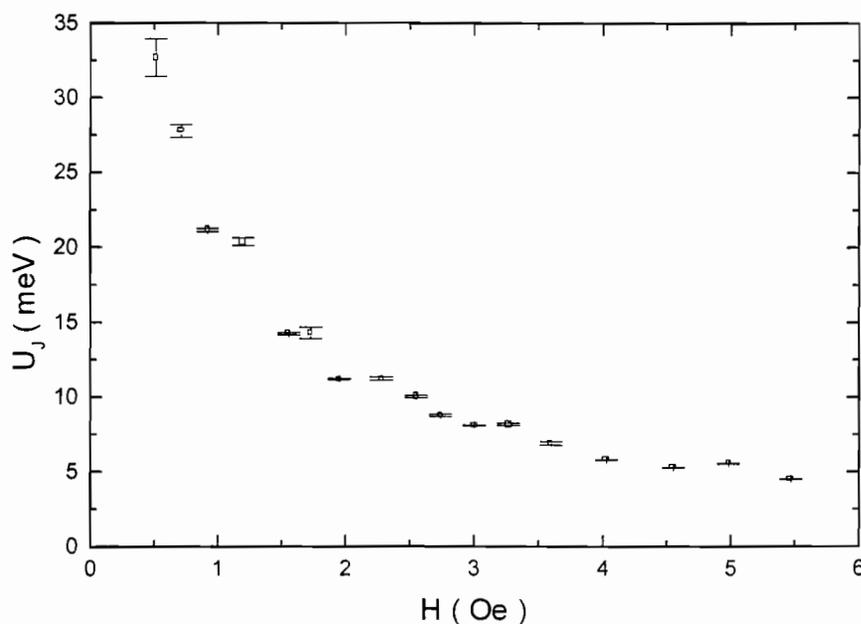


Figura 3.2.5: Energia de ativação $U_J(H)$, para $I_{ex} = 1$ mA, $T = 4.2$ K, e $0.5 \leq H \leq 5.5$ Oe.

H (Oe)	$U_J(\text{meV})$
0.5	32.69
0.75	27.77
1.0	21.16
1.25	20.39
1.5	14.25
1.75	14.31
2.0	11.23
2.25	11.24
2.5	10.04
2.75	8.78
3.0	8.12
3.25	8.2
3.6	6.92
4.0	5.8
4.5	5.28
5.0	5.56
5.5	4.51

Tabela 3.2.1: Valores de $U_J(H)$ para $0.5 \leq H \leq 5.5$ Oe, para $I_{\text{ex}} = 1$ mA. Os valores de $U_J(H)$ foram estimados a partir das curvas de $\ln R \times 1/T$.

A partir da figura 3.2.5 observou-se que existe uma grande variação de $U_J(H)$ até cerca de 3 Oe, seguido de um decréscimo suave de $U_J(H)$ para maiores valores de campo magnético aplicados. Na figura 3.2.6 é mostrada a curva de $\log U_J \times \log H$. A partir do ajuste linear dos pontos dessa curva constatou-se que $U_J(H) \propto H^{0.6}$.

A dependência do campo magnético obtida para $U_J(H)$ deve refletir o mecanismo de aprisionamento de fluxo magnético. No caso em questão, a energia de ativação $U_J(H)$ deve ser relacionada ao potencial de aprisionamento de fluxo retido nas regiões intergranulares. De fato, como dito anteriormente, o máximo valor de campo magnético aplicado é muito inferior ao valor estimado de H_{c1} para as ilhas supercondutoras nesses compostos ($H_{c1} > 500$ Oe) [2,3], no limite de baixas temperaturas.

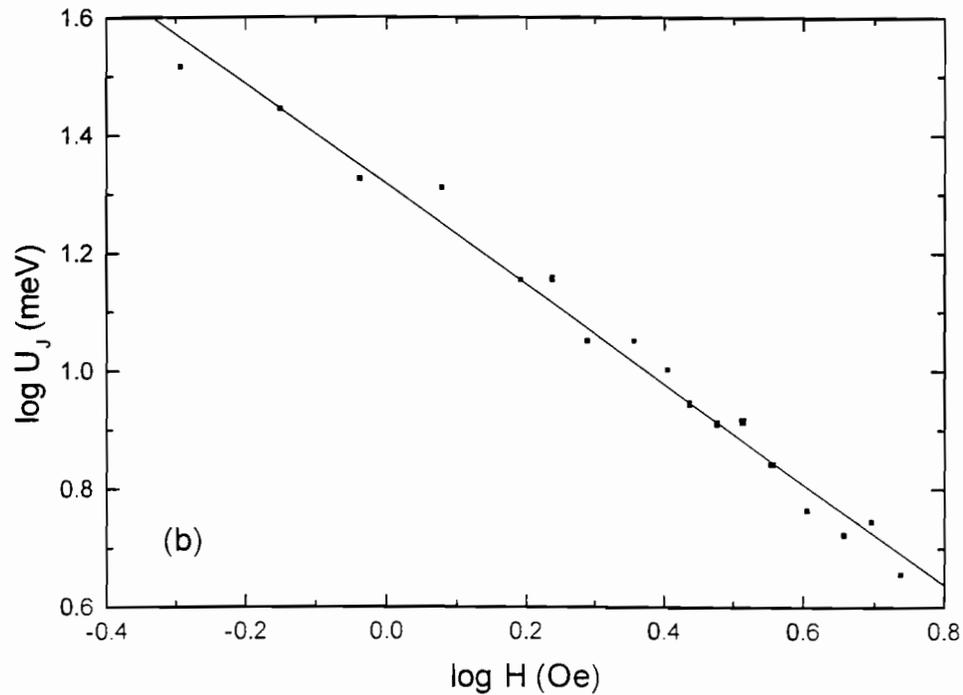


Figura 3.2.6: $\log U_J \times \log H$, para $I_{ex} = 1$ mA, em $T = 4.2$ K. A partir do ajuste linear dos pontos de $\log U_J \times \log H$ constatou-se que $U_J(H) \propto H^{-0.6}$.

É interessante observar que uma dependência $U(H) \propto H^{-0.6}$ foi encontrada por L. Fàbrega e colaboradores [6,7], investigando o movimento de vórtices de Abrikosov em monocristais de $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ e $Pr_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$, usando-se técnicas de susceptibilidade ac. Para o $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ monocristalino, $U(H)$ decresce de 140 a 20 meV, para uma variação de campo magnético de 0.08 a 2 T [6]. A título de comparação, na figura 3.2.7 são mostrados os dados de U/U_{max} em função de H/H_{max} para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, juntamente com os dados normalizados de $U(H)$ para o $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ monocristalino [6]. A partir dessa figura observou-se a similaridade formal de $U_J(H)$ para o $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$ e o $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ monocristalino [6]. Uma inspeção mais cuidadosa dessa figura mostrou que o comportamento de $U/U_{max}(H/H_{max})$ para os dois compostos é essencialmente o mesmo para altos campos magnéticos, ou $0.2 \leq H/H_{max} \leq 1$.

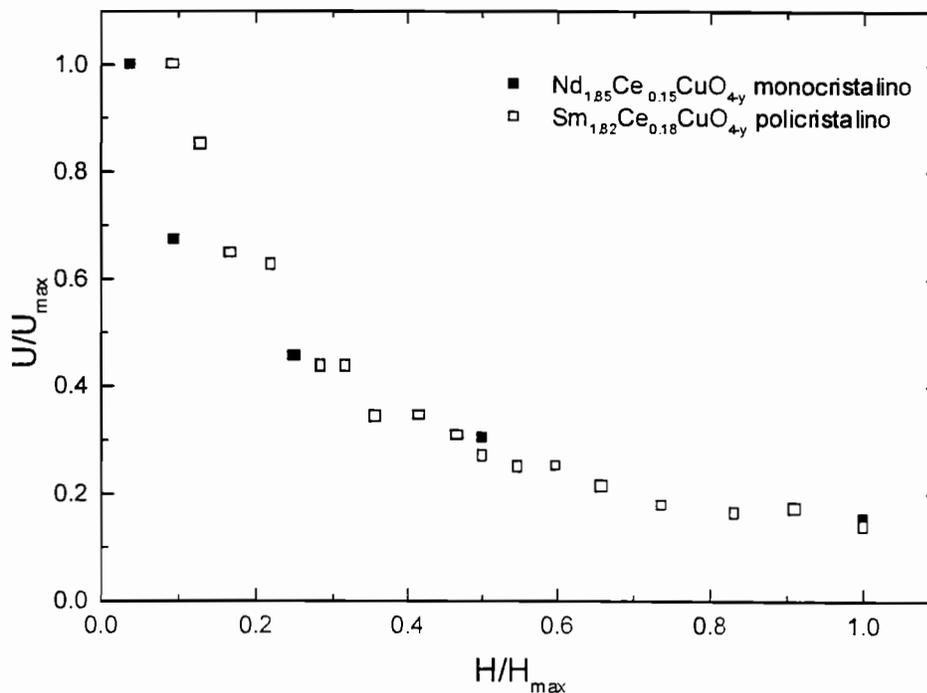


Figura 3.2.7: Dados de U/U_{max} em função de H/H_{max} para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, juntamente com os dados normalizados de $U(H)$ para o $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$ monocristalino [6].

Na região de baixos campos, $H/H_{max} \leq 0.2$, essas curvas não são mais coincidentes, porém preservam o mesmo comportamento, isto é, $U \propto H^{-0.6}$. De acordo com o modelo de Vinokur e colaboradores [8], a dependência de $U(H) \propto H^{-0.6}$ para os monocristais pode ser entendida como o movimento dissipativo de vórtices de Abrikosov na fase líquida. Segundo a referência 8, existem dois regimes diferentes de movimento dissipativo para a fase de líquido de vórtices. Acima de uma certa temperatura T_K , o líquido de vórtices evolui para um estado não aprisionado (corrente de fluxo) e eventualmente o material atinge o estado normal. Em $T < T_K$, o líquido de vórtices é governado por um mecanismo termicamente ativado, para o qual a resistividade elétrica tem a forma $\rho = \rho_0 \exp(-U_{pl}/T)$. Porém, a energia de ativação U_{pl} não depende de um potencial de aprisionamento como na teoria de arraste de fluxo convencional.

Nesse caso U_{pl} ($\propto H^{1/2}$) tem sua origem no movimento viscoso do líquido de vórtices, provavelmente consequência do embaraçamento (*entanglement*) dos vórtices. Porém, deve ser frisado que no caso do monocristal, $U(H)$ refere-se ao movimento termicamente ativado de vórtices de Abrikosov. Portanto, em se tratando de vórtices de Josephson, é preciso ter muita cautela para assumir que $U_J(H) \propto H^{-0.6}$ represente um comportamento similar ao anteriormente descrito para o monocristal. Isto decorre do fato de que os vórtices de Josephson ocupam um volume significativamente maior, por várias ordens de magnitude, em comparação com os vórtices de Abrikosov, sendo então sujeitos a diferentes mecanismos de aprisionamento [9].

Curvas de $R(H)$ em $T = 4.2$ K

Dando continuidade à investigação das propriedades de transporte do $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ policristalino, foram obtidas curvas de $R(H)$ para esse composto, para $0 \leq H \leq 200$ Oe. Essas curvas foram tomadas em 4.2 K, para valores de corrente de excitação no intervalo $0.25 \leq I_{ex} \leq 18$ mA. A amostra foi mantida em banho de hélio durante as medidas de $R(H)$ para evitar problemas de auto-aquecimento.

A figura 3.2.8 mostra as curvas de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, para $1 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, no intervalo de campo magnético $-200 \leq H \leq 200$ Oe. A partir dessa figura observou-se a perfeita simetria dessas curvas em relação a $H = 0$, atestando uma boa qualidade das medidas efetuadas. Algumas curvas de $R(H)$ com $I_{ex} < 18$ mA são mostradas na figura 3.2.9, para campos magnéticos de até 20 Oe.

A partir das figuras 3.2.8-9 observou-se que, partindo-se com a amostra no estado supercondutor, o aumento em H resulta em uma transição para o estado resistivo. Esta transição ocorre para o valor de campo magnético identificado como H_x , como mostrado na figura 3.2.10.

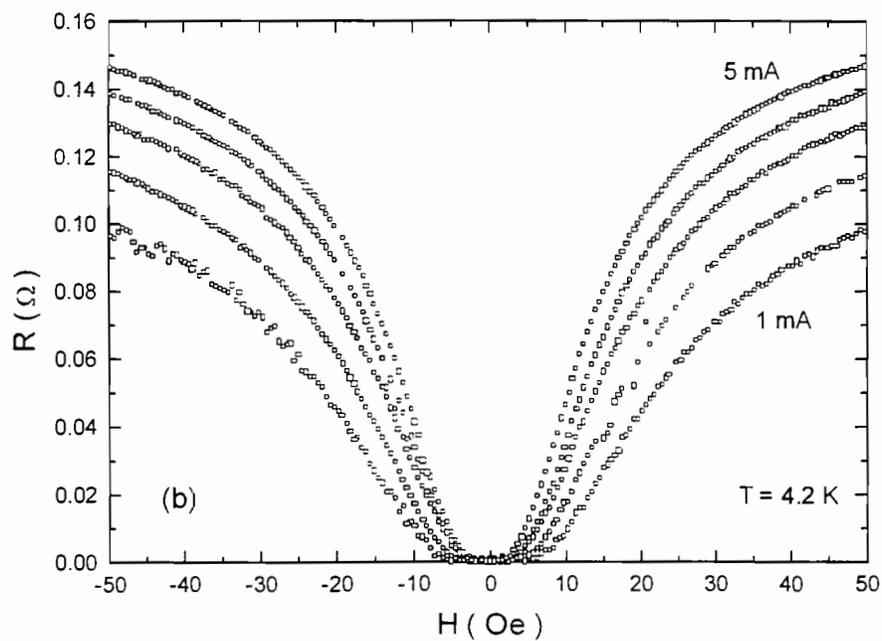
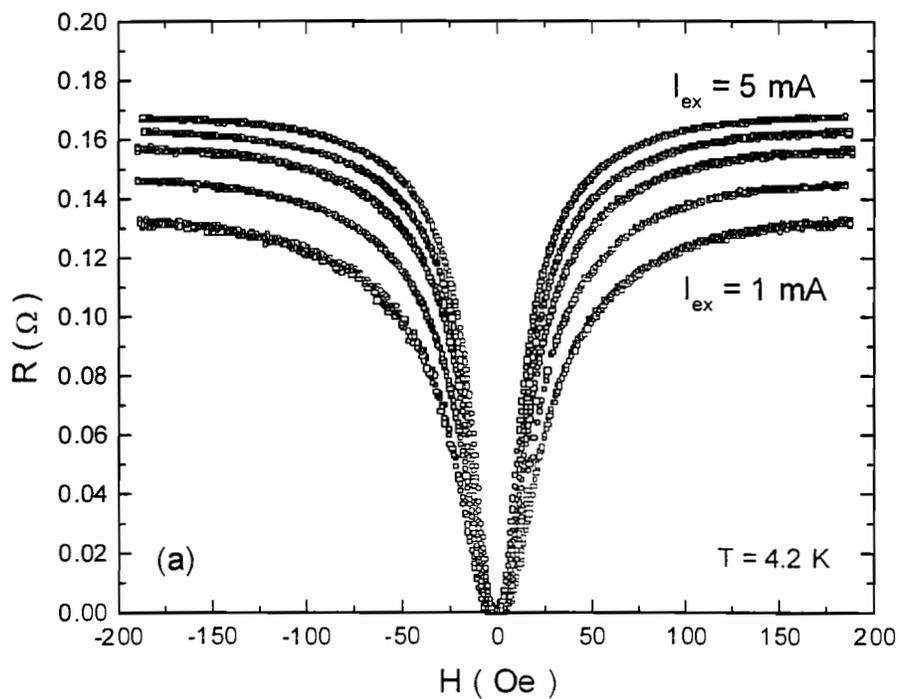


Figura 3.2.8: Curvas de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, em $T = 4.2 \text{ K}$, para $1 \leq I_{\text{ex}} \leq 5 \text{ mA}$, para (a) $-200 \leq H \leq 200 \text{ Oe}$ e (b) $-50 \leq H \leq 50 \text{ Oe}$.

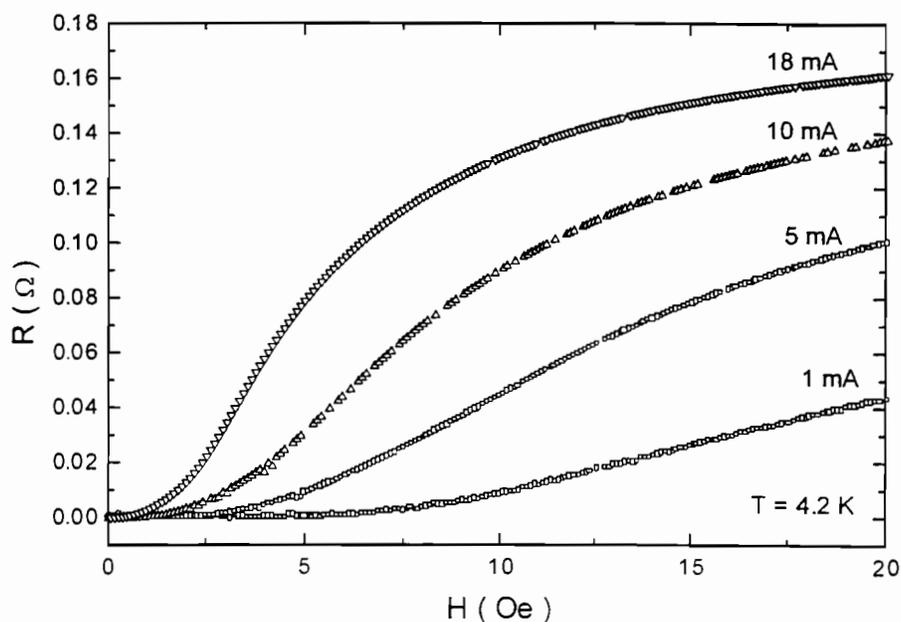


Figura 3.2.9: Curvas de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, no intervalo de campo magnético $0 \leq H \leq 20$ Oe, em $T = 4.2$ K, para $I_{\text{ex}} = 1, 5, 10$ e 18 mA.

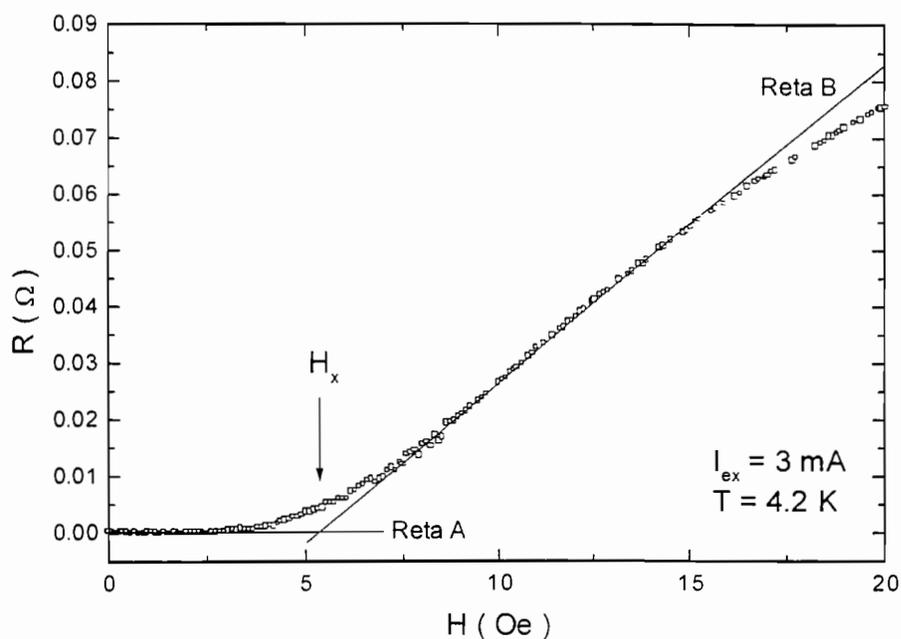


Figura 3.2.10: $R(H)$ para $I_{\text{ex}} = 3$ mA, para $0.1 \leq H \leq 20$ Oe. H_x é o valor de campo magnético aplicado para o qual temos a intersecção das retas A e B.

Após essa transição, existe um substancial aumento na magnitude de $R(H)$ no composto. De fato, para $H > H_x$ existe um pequeno intervalo de campo magnético para o qual $R(H) \propto H$ e, para $H \gg H_x$, $R(H) \propto H^{-1}$. De acordo com Barber e Dynes [10], Jardim e colaboradores [11], H_x pode ser identificado como o valor de H para o qual um *quantum* de fluxo é envolvido por uma área máxima para a qual existe coerência de fase supercondutora. Esta área é dada por $A = \phi_0/H_x$, onde ϕ_0 é o *quantum* de fluxo supercondutor ($2.07 \times 10^{-7} \text{ G.cm}^2$).

No caso de amostras policristalinas do composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, a interpretação física de H_x não é fácil, já que existe uma larga distribuição de áreas para as quais existe coerência de fase supercondutora. Devido à morfologia desses compostos supercondutores granulares, a aplicação de pequenos campos magnéticos afeta grandes áreas do material e, conseqüentemente, a resistência elétrica total do composto, como observado nas figuras 3.2.8 e 3.2.9. Aumentando-se o campo magnético, pequenas áreas são afetadas e a resistência elétrica no composto atinge um valor de saturação para $H \sim 200 \text{ Oe}$. Para este valor de campo aplicado, a coerência de fase supercondutora é destruída em praticamente todas as áreas conectadas e a amostra pode ser considerada como um compósito constituído de ilhas supercondutoras isoladas em uma matriz isolante.

O critério utilizado para a estimativa de H_x está esquematizado na figura 3.2.10 onde temos $R(H)$ para $I_{ex} = 3 \text{ mA}$ e $0.1 \leq H \leq 20 \text{ Oe}$. Na mesma figura, a reta A indica o intervalo de campo magnético para o qual $R(H)$ é aproximadamente nula. A reta B é obtida a partir do ajuste linear de $R(H)$ no intervalo de campo magnético para o qual $R(H) \propto H$. H_x é, então, o valor de campo magnético aplicado para o qual temos a intersecção das retas A e B. Por meio desse procedimento, foram obtidos os valores de H_x para as demais curvas de $R(H)$, para $0.25 \text{ mA} \leq I_{ex} \leq 18 \text{ mA}$, em $T = 4.2 \text{ K}$. A curva de H_x em função da corrente de excitação é mostrada na figura 3.2.11.

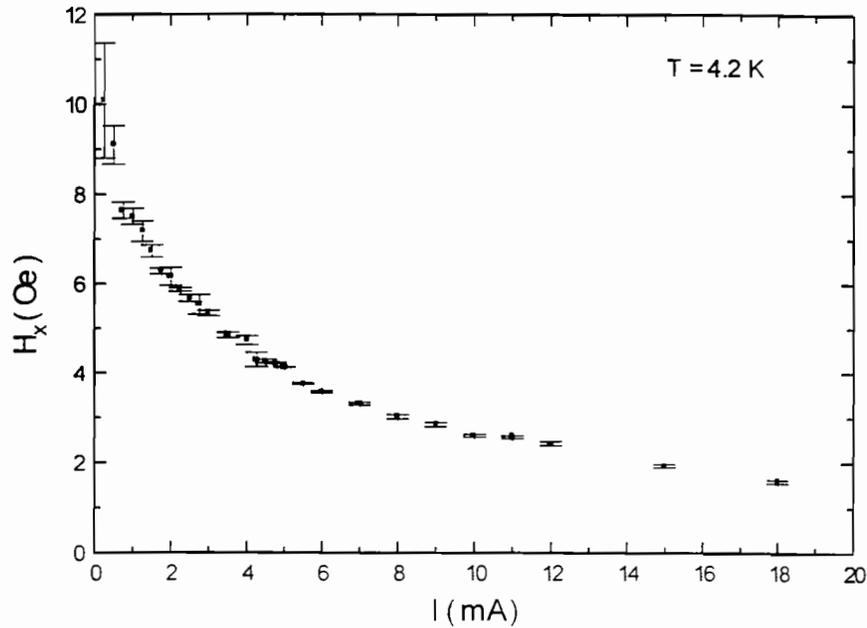


Figura 3.2.11: Curva de H_x em função da corrente de excitação para $0.25 \leq I_{ex} \leq 18$ mA, em $T = 4.2$ K. H_x é definido no texto.

Na tabela 3.2.2 são apresentados os valores de H_x em função da corrente de excitação, bem como os valores de A calculados a partir da equação $A = \phi_0/H_x$. A partir da tabela 3.2.2, assumindo-se A como uma área circular, estimou-se que o diâmetro d das regiões com coerência de fase supercondutora varia entre 0.8 e 2 μm . Na seção 3.1 estimou-se que o tamanho de grão para o supercondutor granular $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ é da ordem de 1-10 μm , portanto, a ordem de grandeza dos valores estimados para d a partir dos valores de H_x é razoável, já que se compara àquela encontrada para os grãos físicos do composto. Isto sugere que, *a priori*, ao estarmos combinando dois parâmetros distintos: I_{ex} e H , é possível obter informações acerca da coerência de fase supercondutora em sistemas granulares. Sendo assim, o modelo de *pseudo-spin* aplicado ao supercondutor granular $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ no limite de supercondutividade global, parece ser adequado para o estudo das correlações de

fase do parâmetro de ordem supercondutor no limite de baixos campos magnéticos.

I (mA)	H _x (Oe)	A (μm ²)
0.25	10.09	2.05
0.5	9.1	2.27
0.75	7.65	2.71
1	7.51	2.76
1.25	7.18	2.88
1.5	6.73	3.07
1.75	6.29	3.29
2	6.16	3.36
2.25	5.87	3.53
2.5	5.68	3.64
2.75	5.53	3.74
3	5.34	3.88
3.5	4.85	4.27
4	4.73	4.38
4.25	4.3	4.82
4.5	4.26	4.87
4.75	4.22	4.90
5	4.13	5.01
5.5	3.76	5.51
6	3.58	5.79
7	3.31	6.26
8	3.01	6.87
9	2.84	7.28
10	2.6	7.96
11	2.57	8.07
12	2.42	8.54
15	1.93	10.73
18	1.58	13.08

Tabela 3.2.2: Valores encontrados para H_x e correspondentes valores de A, para correntes de excitação no intervalo $0.25 \leq I_{ex} \leq 18$ mA, em T = 4.2 K. O valor de A é obtido pela equação $A = \phi_0/H_x$ [10,11].

Irreversibilidade nas curvas de R(H)

Para diversos valores de corrente de excitação no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, foram obtidas as curvas de R(H) do composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, nos sentidos crescente e decrescente de H, para $H < 200$ Oe. Algumas dessas curvas são mostradas na figura 3.2.12. A partir dessas curvas constatou-se um comportamento irreversível da magneto-resistência para esse composto. Observou-se que esse comportamento irreversível apresenta, no mínimo, três importantes características:

(a) existe um valor de campo magnético de *crossover*, $H = H^*$ definido na figura 3.2.12, tal que, para $H > H^*$, a magnitude da resistência elétrica no ramo decrescente da curva de R(H), $R_d(H)$, é sempre menor do que no ramo crescente, $R_c(H)$. O comportamento oposto ocorre para $H < H^*$, isto é, a magnitude de R(H) é sempre menor no ramo crescente da curva;

(b) uma análise mais cuidadosa dessas curvas e outras tomadas sob diferentes correntes de excitação, mostrou que o campo magnético de *crossover* H^* é quase insensível a mudanças na corrente de excitação e parece assumir um valor constante $H^* \approx 30$ Oe;

(c) todas as curvas começam com $R_c(H = 0) = 0$ e, para o ramo decrescente dessas curvas, $R_d(H = 0) = R_0 \neq 0$. Além disso, observou-se que R_0 aumenta com a corrente de excitação.

Na tabela 3.2.3 encontram-se resumidas as características principais das curvas mostrando o comportamento irreversível de R(H), para diversos valores de corrente de excitação no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA.

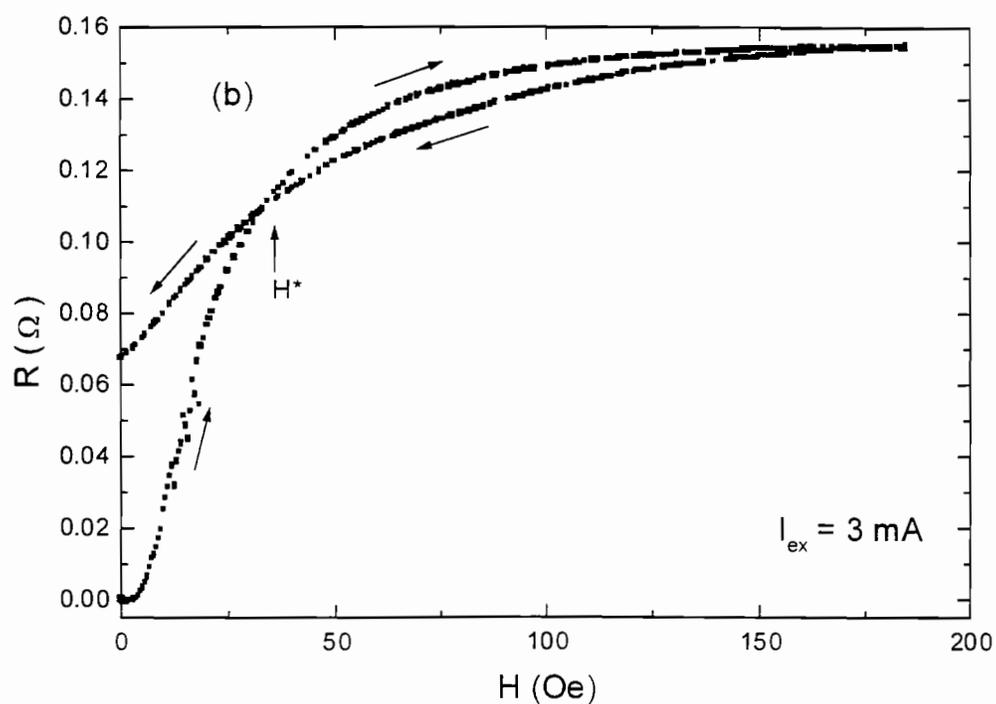
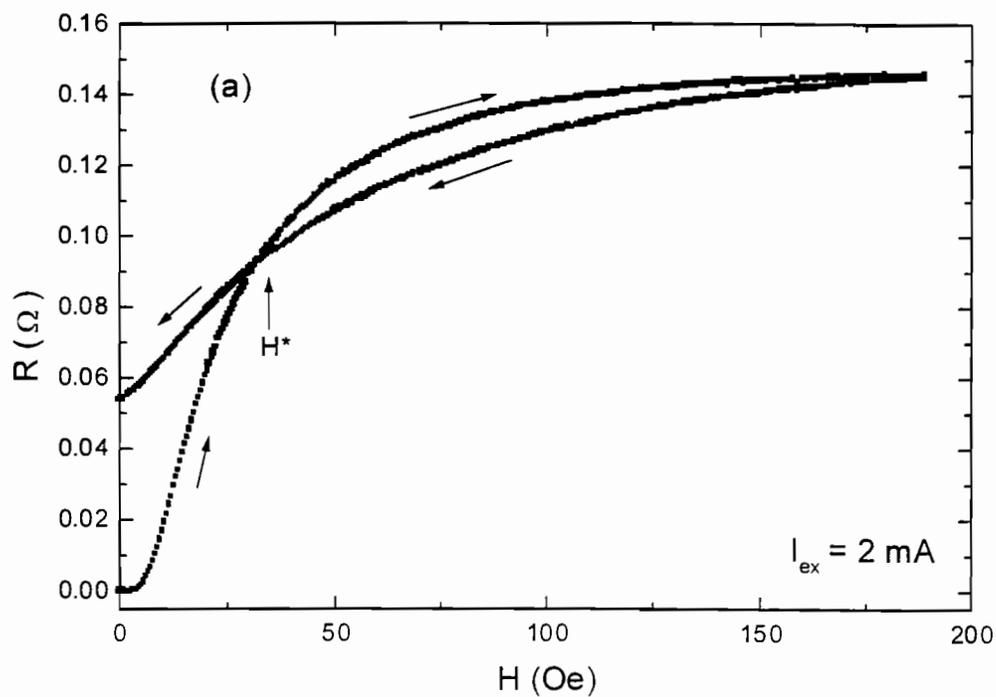


Figura 3.2.12: Curvas de $R(H)$ para $0 \leq H \leq 180$ Oe, nos sentidos crescente e decrescente de H , em $T = 4.2$ K, para (a) $I_{\text{ex}} = 2$ mA e (b) $I_{\text{ex}} = 3$ mA.

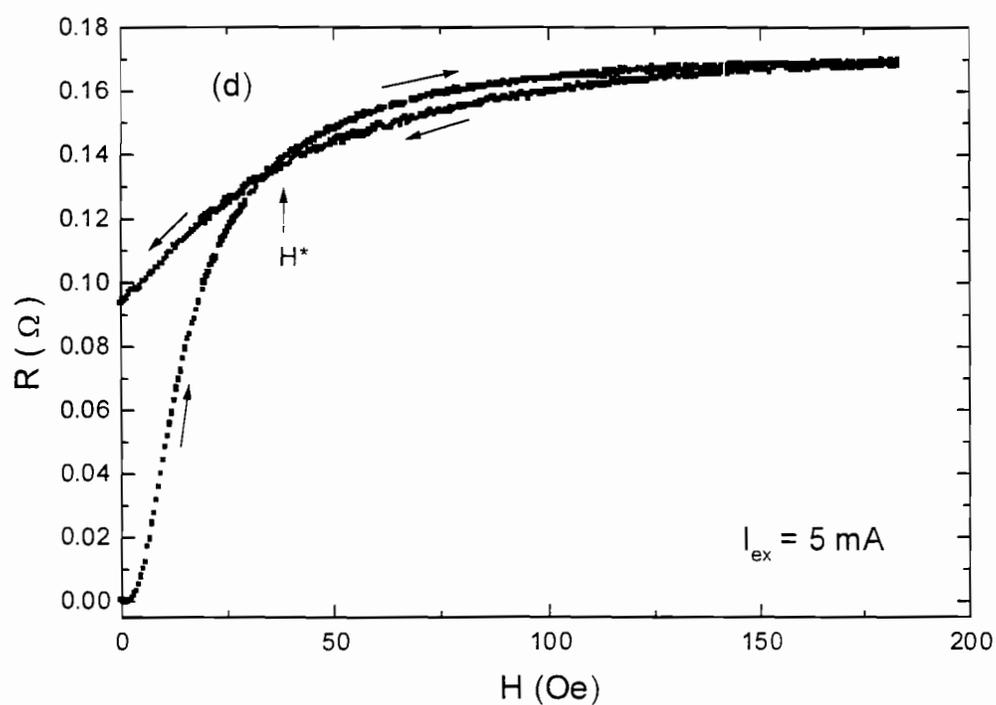
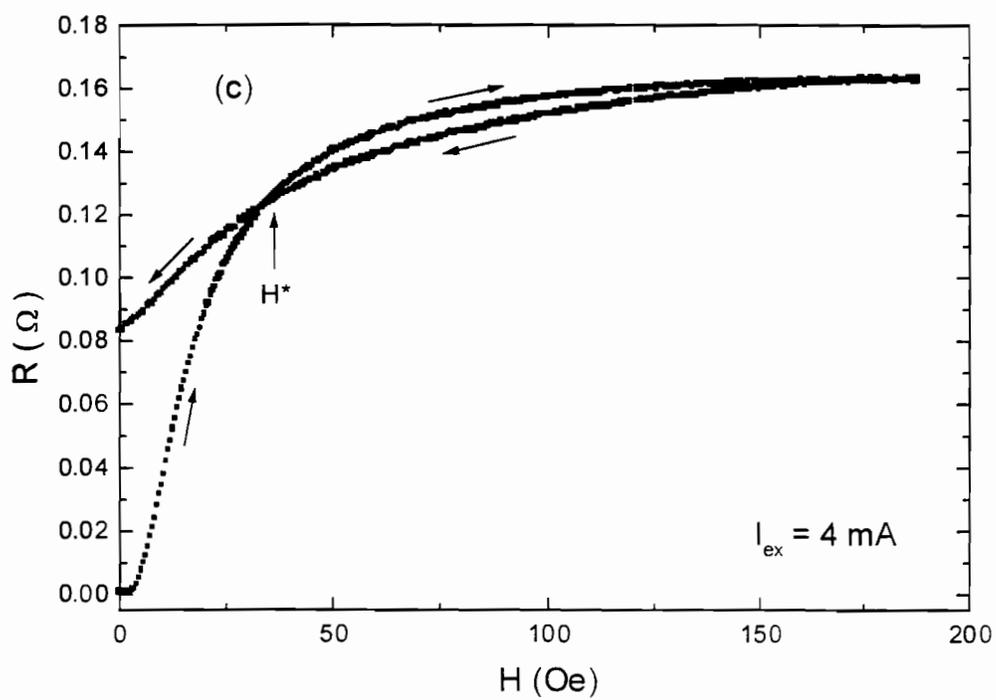


Figura 3.2.12: Curvas de $R(H)$ para $0 \leq H \leq 180$ Oe, nos sentidos crescente e decrescente de H , em $T = 4.2$ K, para (c) $I_{\text{ex}} = 4$ mA e (d) $I_{\text{ex}} = 5$ mA.

I_{ex} (mA)	R_0 (Ω)	$H_{crossover}$ (Oe)
0.5	0.033	29.5
1.0	0.040	27
1.5	0.039	28
2.0	0.055	32
2.5	0.057	34
3.0	0.067	33
3.5	0.075	33
4.0	0.084	33
4.5	0.090	33
5.0	0.093	32

Tabela 3.2.3: Valores de R_0 e $H_{crossover}$ obtidos a partir das curvas irreversíveis de $R(H)$, obtidas para diversos valores de corrente de excitação no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA. R_0 , e $H_{crossover}$ são definidos no texto.

Para quantificar as diferenças observadas entre os ramos crescente e decrescente das curvas de $R(H)$, a figura 3.2.13 mostra o valor de ΔR em função do campo magnético aplicado H , para $1 \leq I_{ex} \leq 5$ mA. ΔR é definido por $\Delta R = R_d - R_c$, sendo:

$R_c \equiv$ resistência elétrica no composto para H aplicado em sentido crescente e

$R_d \equiv$ resistência elétrica no composto para H aplicado em sentido decrescente.

A partir da figura 3.2.13 observou-se que:

(a) $\Delta R \approx 0$ para H em torno do valor máximo (~ 200 Oe);

(b) a medida que H diminui, ΔR torna-se negativo até $H \approx 30$ Oe. Além disso, a separação entre os ramos crescente e decrescente da curva de $R(H)$ aumenta com a diminuição da corrente de excitação. Este comportamento é bem evidente para $50 < H < 100$ Oe;

(c) ΔR assume um valor positivo e crescente para $H < 30$ Oe, sendo que $\Delta R(0) \equiv R_0$ é tanto maior, quanto maior é a corrente de excitação. Este comportamento pode ser melhor observado a partir da figura 3.2.14, onde é mostrado $\Delta R(0)$ em função da corrente de excitação;

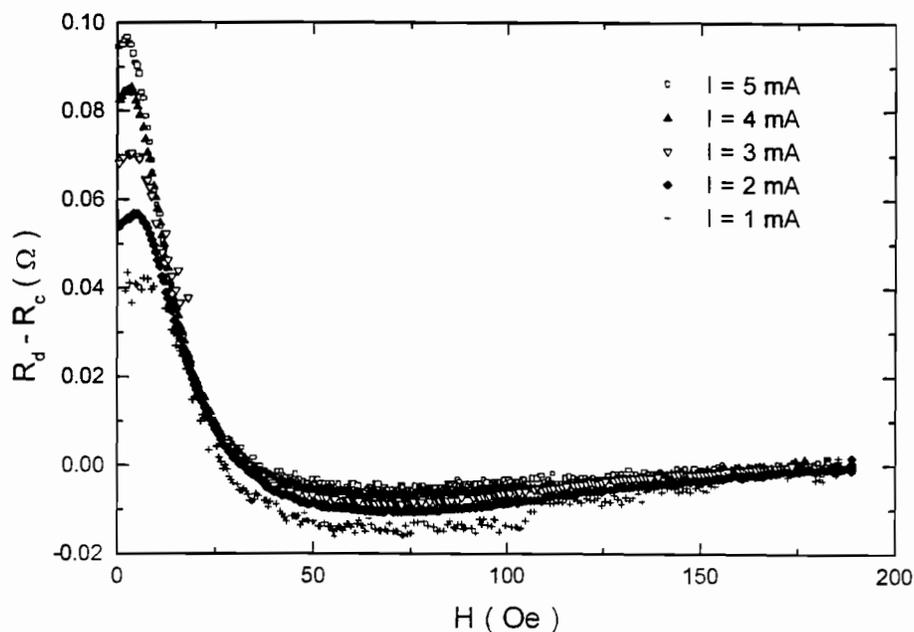


Figura 3.2.13: $\Delta R \equiv (R_d - R_c)$ em função de H , $H < 200$ Oe, em $T = 4.2$ K, para $1 \leq I_{ex} \leq 5$ mA.

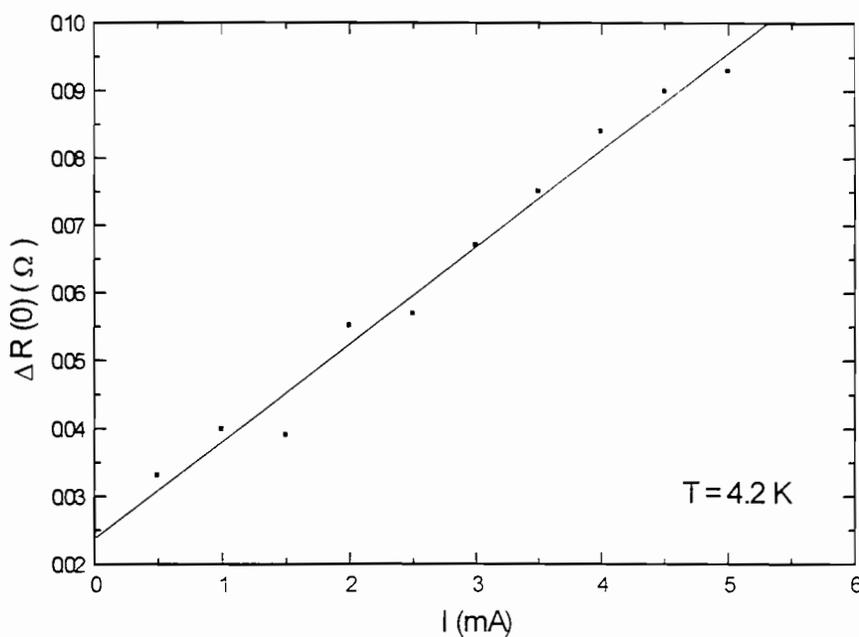


Figura 3.2.14: $\Delta R(0) \equiv R_0$ em função da corrente de excitação. A reta corresponde ao ajuste linear dos pontos. R_0 é definido no texto.

(d) a curva $\Delta R(H)$ apresenta um máximo para H próximo a $H = 0$. Este máximo ocorre para o valor de H a partir do qual R_c torna-se diferente de zero.

Os resultados mostrados anteriormente com respeito ao comportamento irreversível de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, podem ser explicados através do Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis para Supercondutores Granulares [12]. Segundo este modelo [12], para materiais granulares existem duas densidades de correntes críticas distintas: J_{cg} , a densidade de corrente crítica intragranular e J_{cj} , a densidade de corrente crítica intergranular. Por esta razão, L. Ji e colaboradores [12] consideram que o modelo de estado crítico em um sistema granular é constituído de dois níveis:

a) a nível macroscópico, o gradiente de densidade de fluxo é determinado por J_{cj} ;

b) a nível local, dentro de cada grão supercondutor, o estado crítico é estabelecido por um gradiente de densidade de fluxo determinado por J_{cg} .

Na figura 3.2.15 é mostrada uma representação do perfil de fluxo em uma amostra granular, segundo o Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis [12] para supercondutores granulares.

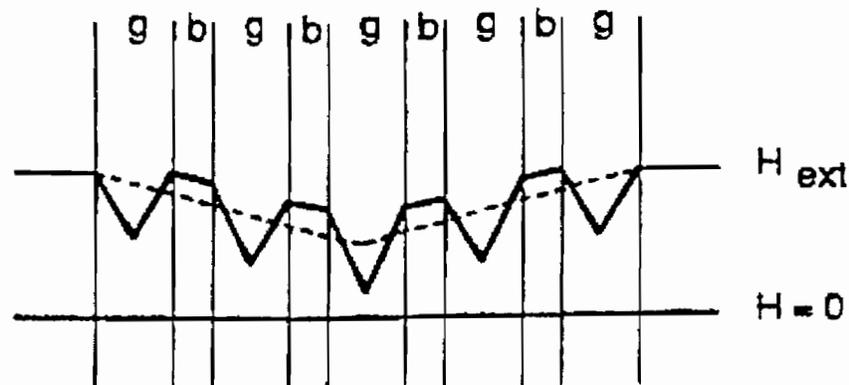


Figura 3.2.15: Representação do perfil de fluxo em um supercondutor granular, segundo o Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis, onde os grãos e as regiões intergranulares são denotados como g e b , respectivamente. A linha sólida representa o estado crítico a nível local e a linha pontilhada representa o estado crítico a nível macroscópico [12].

De acordo com este modelo, o mesmo princípio se aplica para qualquer sistema com diferentes níveis de intensidade de aprisionamento de vórtices. Por exemplo, pode ocorrer a formação de um aglomerado de grãos acoplados por junções Josephson, onde a densidade de corrente crítica dentro dele é maior do que de toda a amostra, porém menor que a densidade de corrente crítica dos grãos supercondutores.

Segundo o Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis [12], o comportamento irreversível de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ pode ser explicado como segue. A medida que H decresce a partir de $H_{\text{max}} \sim 200$ Oe, vórtices de Josephson começam a deixar a amostra de uma forma relativamente livre. Tal comportamento é espelhado na sobreposição dos ramos crescente e decrescente da curva de $R(H)$, para um pequeno intervalo de campo magnético abaixo de H_{max} . Uma inspeção mais cuidadosa das curvas de $R(H)$ para diversos valores de corrente de excitação revela que, quanto maior é a corrente de excitação, maior é o intervalo de campo magnético para o qual ocorre a sobreposição das curvas de $R(H)$. Com o maior decréscimo do campo magnético começa o acoplamento entre as ilhas supercondutoras e maiores regiões da amostra tornam-se coerentemente conectadas. Em tal configuração, algumas regiões da amostra podem ter uma alta densidade de corrente crítica, maior do que a da amostra como um todo, mas ainda menor do que a densidade de corrente crítica das ilhas isoladas. Então, a medida que H decresce, para $H < H_{\text{max}}$ vórtices de Josephson fracamente aprisionados deixam a amostra, enquanto a parte restante permanece aprisionada.

É sabido que a resistência elétrica em supercondutores granulares é causada pelo movimento dissipativo de vórtices de Josephson [12]. Portanto, como para H decrescente existe um menor número de vórtices de Josephson no material, a resistência elétrica relativa ao ramo decrescente da curva de $R(H)$ é menor do que para o ramo crescente. É também plausível assumir que aumentando a corrente de excitação resulte em uma supressão da densidade de

corrente crítica para algumas regiões conectadas por acoplamento Josephson. Conseqüentemente, ocorre um substancial aumento no número de vórtices de Josephson não aprisionados no material. Este mecanismo explica, ao menos qualitativamente, o aumento observado de R_0 com a corrente de excitação, como mostrado na figura 3.2.14. Entretanto, a dependência linear de R_0 com I_{ex} não é óbvia, já que R_0 depende da microestrutura e do fluxo aprisionado no material.

O comportamento da curva de $R(H)$ para $H < H^*$ será discutido posteriormente, juntamente com os resultados obtidos a partir das curvas I-V para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, que serão apresentados a seguir. Finalmente parece importante mencionar que L. Ji e colaboradores [12], observando o comportamento da resistência elétrica de superfície de uma amostra de YBa_2CuO_7 em função do campo magnético aplicado, constataram um comportamento irreversível similar ao apresentado na figura 3.2.10, o qual foi interpretado de acordo com o Modelo de Estado Crítico de Dois Níveis [12].

Curvas I-V para valores fixos de H, em T = 4.2 K

Nesta seção são apresentadas as curvas I-V obtidas para o composto $Sm_{1.82}Ce_{0.18}CuO_{4-y}$, para valores fixos de campo magnético aplicado no intervalo $0 \leq H \leq 200$ Oe, na temperatura $T = 4.2$ K.

Na figura 3.2.16 são mostradas as curvas I-V obtidas para corrente de excitação no intervalo $0 < I_{ex} \leq 50$ mA. Para melhor visualização do comportamento das curvas I-V em baixas correntes, a figura 3.2.17 mostra as curvas I-V no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{ex} \leq 20$ mA.

A partir da figura 3.2.16 observou-se que o intervalo de corrente para o qual não existe dissipação, ou seja, $V = 0$, diminui rapidamente com a aplicação de campo magnético de uma forma não linear. Isto deve ser espelhado na variação da corrente crítica com o campo magnético aplicado.

A corrente crítica intergranular ou de Josephson, I_{cJ} , foi obtida tomando-se a tangente à curva I-V ao nível de $V = 1 \mu\text{V}$. I_{cJ} foi definida como sendo o valor da corrente para a qual essa tangente intercepta o eixo referente a $V = 0$ [13]. Na tabela 3.2.4 encontram-se os valores de I_{cJ} para os diversos valores de campo magnético aplicado até $H = 30 \text{ Oe}$. Para $H > 30 \text{ Oe}$ o valor de I_{cJ} torna-se muito próximo de zero, sendo de difícil determinação experimental.

H (Oe)	I_{cJ} (mA)
0	25.5
1	12.5
2.5	6.2
5	4.7
7.5	2.4
10	1
15	0.8
20	0.6
25	0.5
30	0.2

Tabela 3.2.4: Valores de corrente crítica de Josephson, I_{cJ} , para $0 \leq H \leq 30 \text{ Oe}$. A corrente crítica foi obtida tomando-se a tangente à curva I-V ao nível de $V = 1 \mu\text{V}$. I_{cJ} é definida como o valor de corrente para a qual essa tangente intercepta o eixo referente a $V = 0$ [13].

Na figura 3.2.18 é mostrada a curva de I_{cJ} em função do campo magnético aplicado, referente aos valores mostrados na tabela 3.2.4. A campo magnético nulo foi calculada a densidade de corrente crítica de Josephson, J_{cJ} , sendo da ordem de 1.5 A/cm^2 na temperatura $T = 4.2 \text{ K}$. Este valor é muito baixo, pelo menos 10^5 vezes menor que os valores encontrados para a densidade de corrente crítica intragranular nestes óxidos supercondutores [14], fato que confirma a determinação da corrente crítica de Josephson neste material.

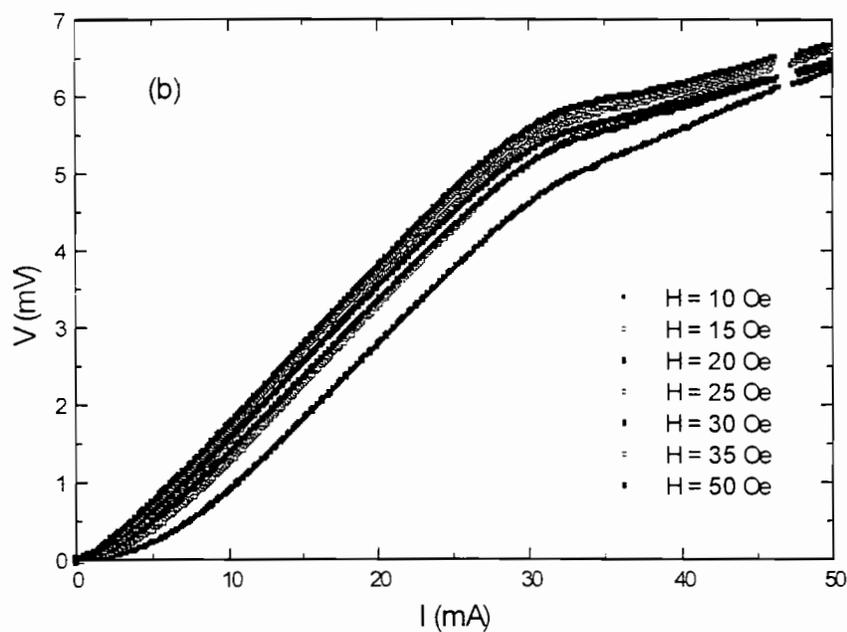
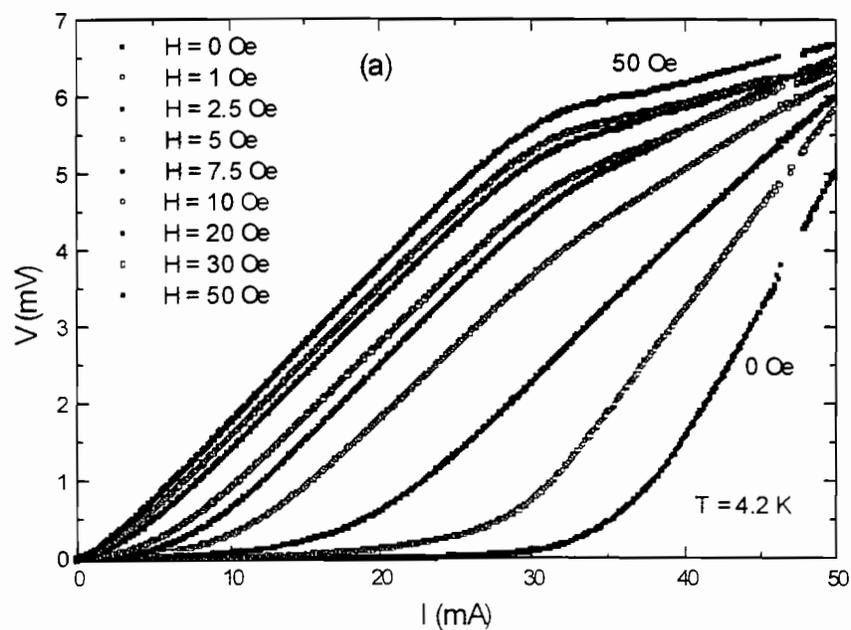


Figura 3.2.16: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{\text{ex}} \leq 50$ mA, em $T = 4.2$ K, para valores fixos de campo magnético aplicado no intervalo (a) $0 \leq H \leq 50$ Oe e (b) $10 \leq H \leq 50$.

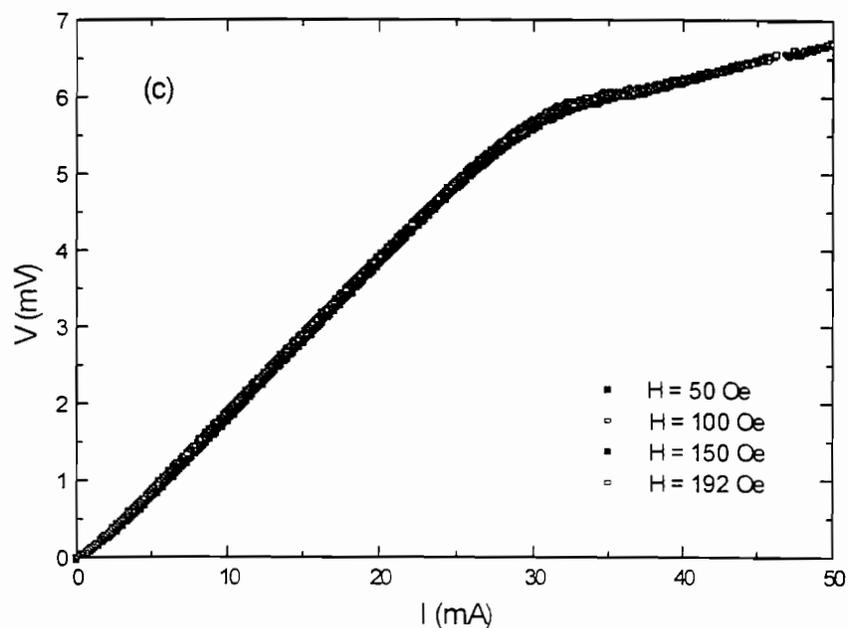


Figura 3.2.16.c: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{\text{ex}} \leq 50$ mA, em $T = 4.2$ K, para $H = 50, 100, 150$ e ~ 200 Oe.

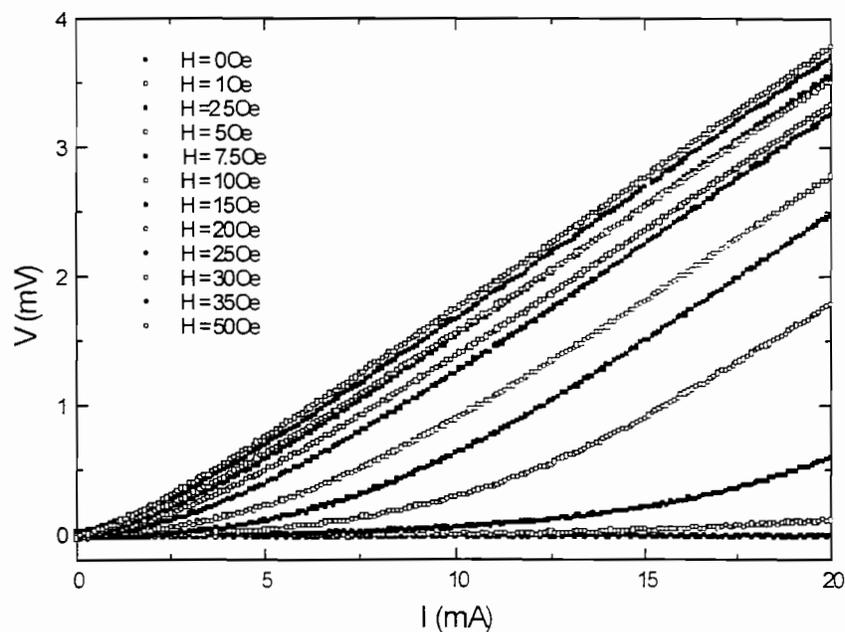


Figura 3.2.17: Curvas I-V no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{\text{ex}} \leq 20$ mA, para valores fixos de campo magnético aplicado no intervalo $0 \leq H \leq 50$, em $T = 4.2$ K.

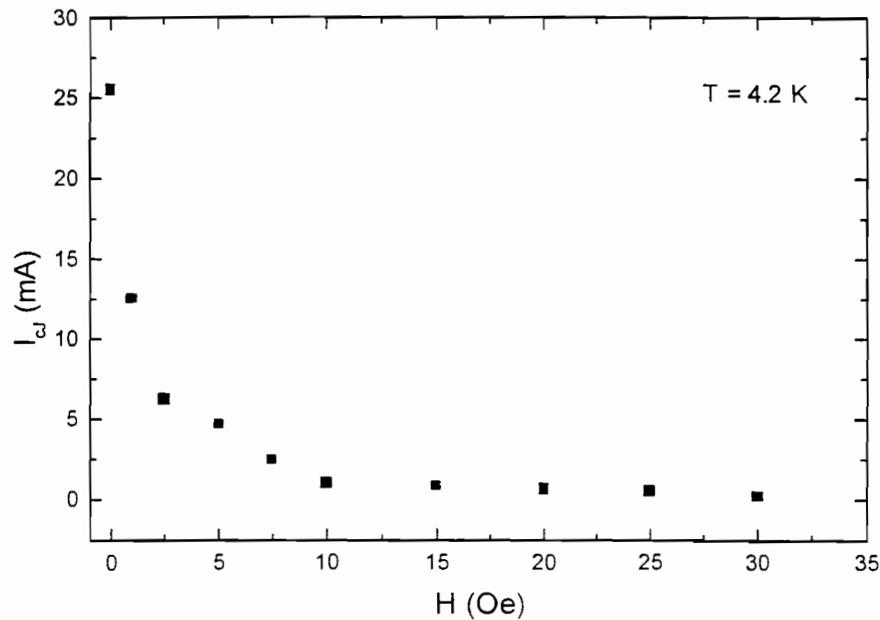


Figura 3.2.18: $I_{cJ}(H)$ obtida a partir dos dados da tabela 3.2.4.

Ainda a partir da figura 3.2.18 observou-se um decréscimo exponencial de I_{cJ} em baixos campos magnéticos. Este comportamento é similar ao apresentado pela curva de corrente crítica intragranular, $I_{cg}(H)$, obtida por Seaman e colaboradores [14] para o $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{3.98}$ policristalino, na temperatura $T = 4.2$ K. Entretanto, a campo magnético nulo, o valor estimado de J_{cg} para esse composto [14] é cerca de 10^3 vezes maior que o obtido para o $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ nesse trabalho. Os valores de $I_{cg}(H)$ da referência 14 foram obtidos a partir de curvas de magnetização, utilizando-se altos campos magnéticos (tipicamente 10^2 vezes maior do que os utilizados nesse trabalho). Já que o fraco acoplamento entre os grãos é destruído em altos campos magnéticos, Seaman e colaboradores [14] argumentam que, de fato, os valores de $I_{cg}(H)$ por eles obtidos referem-se aos grãos supercondutores isolados no composto policristalino. Isso explica a discrepância quanto à ordem de grandeza dos valores de $I_{cg}(H)$ apresentados na referência 14 e os obtidos nesse trabalho para o $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$. Essa discrepância quanto aos valores de J_{cJ} é ainda maior quando o valor de J_{cg} na

referência 14 é calculado levando-se em conta o tamanho médio de grão no composto $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{3.98}$. Nesse caso, o valor obtido para J_{cg} em 4.2 K e a campo nulo é da ordem de 10^6 A/cm^2 [14]. Este resultado é muito interessante e será retomado posteriormente.

Para o composto supercondutor granular $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, a dependência da temperatura de J_{cJ} abaixo de T_{cJ} pode ser obtida levando-se em conta o trabalho de Clem e colaboradores [15]. De acordo com a referência 15, em temperaturas $T \ll T_{ci}$, a densidade de corrente crítica J_{cJ} para os supercondutores granulares apresenta a dependência da temperatura prevista por Ambegaokar-Baratoff, $(1 - T/T_{cJ})$.

É importante frisar que, no presente trabalho, a corrente crítica obtida para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ é a corrente crítica de Josephson (I_{cJ}). Portanto, segundo a análise da referência 15, em todos os valores de T tal que $T < T_{cJ}$, obtém-se :

$$J_{cJ} = J_{co}(1 - T/T_{cJ}) \quad . \quad (3.2.3)$$

A partir dos dados de $R(T)$ para $H = 0$, verifica-se que $I_{cJ} = 0$ em $T_{cJ} \sim 8.9 \text{ K}$. Além disso, a partir das curvas I-V, $I_{cJ} (4.2 \text{ K}) \sim 25.5 \text{ mA}$, ou $J_{cJ} = 1.5 \text{ A/cm}^2$. Assumindo-se a linearidade de $I_{cJ} (T)$, pode ser estimado que $I_{cJ} (T = 0) \approx 48 \text{ mA}$ ou $J_{co} \approx 2.9 \text{ A/cm}^2$.

De acordo com Tinkham e Lobb [16], para sistemas supercondutores granulares a energia de ativação intergranular $U_J \propto J_{cJ}$. Sendo assim, a partir da equação 3.2.3 é possível obter a dependência com a temperatura de U_J . Recordando a dependência do campo magnético anteriormente obtida para a energia de ativação intergranular (página 49) pode-se concluir que para o $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ policristalino $U_J(T,H)$ é dada pela expressão:

$$U_J(T,H) \propto (1 - T/T_{cJ})(H^{-0.6}) \quad (3.2.4)$$

Tal dependência de $U_J(T,H)$ foi obtida por Fábrega e colaboradores [7] para o $\text{Pr}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ monocristalino, utilizando-se técnicas de susceptibilidade ac. Portanto, apesar dos diferentes mecanismos de aprisionamento a que são sujeitos os vórtices de Josephson e de Abrikosov e, do fato de que J_{cg} é da ordem de 10^5 vezes maior do que J_{cJ} , a energia de ativação intergranular para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ apresenta a mesma dependência do campo magnético e temperatura que o composto monocristalino.

Dando continuidade à análise da figura 3.2.16, quando a dissipação torna-se diferente de zero, as curvas I-V apresentam um comportamento do tipo $V \propto I^n$ para um pequeno intervalo de corrente de excitação, como pode ser melhor observado na figura 3.2.17. Na tabela 3.2.5 são apresentados os intervalos de corrente para os quais $V = kI^n$ e os respectivos valores de n , de acordo com o campo magnético aplicado. Os valores de n foram obtidos a partir das curvas de $\log V \times \log I$, mostradas na figura 3.2.19. Observou-se que o valor de n varia de 11 para 1.2, a medida que o campo magnético aumenta de 0 para ~ 200 Oe. Deve ser observado que para $H = 1$ Oe foram encontrados dois intervalos de corrente para os quais $V = kI^n$, com diferentes valores de n .

Ainda com relação à figura 3.2.16 observou-se que, para maiores valores de corrente de excitação, a tensão varia linearmente com a corrente. Porém, existe uma mudança de curvatura das curvas I-V, a qual muda de côncava para convexa com o aumento do campo magnético aplicado, como pode ser melhor observado na figura 3.2.16(a). Observou-se que tal mudança de curvatura ocorre no intervalo de 5 a 7.5 Oe. A partir das curvas de $R(T)$ para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, mostradas na figura 3.2.3(a) (página 45), constatou-se que, para $H = 5$ Oe a amostra atinge o estado de resistência elétrica zero e para $H = 7.5$ Oe isto já não ocorre. É interessante comparar esse comportamento com o das

H (Oe)	ΔI (mA)	n
0	28.9 - 38	11.1
1	14.7 - 27.6	4.4
1	27.6 - 32	6.3
2.5	7.3 - 23.5	3.6
5	6.6 - 13.8	2.9
7.5	5.1 - 10	2.6
10	1.9 - 9.5	2.2
15	1.9 - 8.8	1.8
20	0.8 - 5.2	1.8
25	1 - 4.6	1.7
30	0.7 - 4.6	1.5
35	1.2 - 4.3	1.4
50	0.6 - 3.7	1.5
100	0.2 - 1.8	1.3
150	0.3 - 1.3	1.3
192	0.4 - 1.5	1.2

Tabela 3.2.5: Intervalos de corrente para os quais $V = kI^n$ e os respectivos valores de n, de acordo com o campo magnético aplicado.

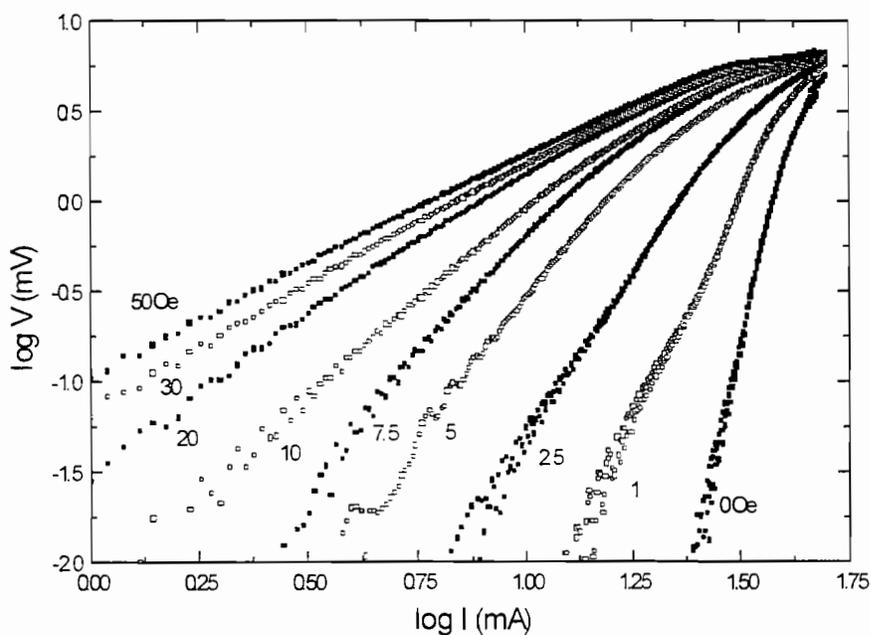


Figura 3.2.19: Curvas de $\log V$ em função de $\log I$, a $T = 4.2$ K, para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 \leq H \leq 50$ Oe.

curvas I-V para um filme de Sn granular [17], as quais apresentam uma similar mudança de curvatura. Nesse caso, a mudança de curvatura está relacionada com a espessura do filme. Tal mudança de curvatura ocorre a uma espessura tal que, acima dessa espessura, o filme apresenta supercondutividade global e, abaixo dessa espessura, o filme apresenta supercondutividade quase-reentrante. É plausível admitir que, em ambos os casos, a mudança de curvatura das curvas I-V está relacionada com a supressão da coerência de fase de longo alcance para o parâmetro de ordem supercondutor no material. Isto se deve à ação do campo magnético aplicado no caso do composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ e à diminuição da espessura no caso do filme granular de Sn [17].

Para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, a mudança de curvatura das curvas I-V faz com que existam dois intervalos distintos de corrente de excitação, ΔI_1 e ΔI_2 , para os quais $V \propto I$, apresentados na tabela 3.2.6. A partir dessa tabela constatou-se que:

a) com o aumento do campo magnético aplicado, o primeiro intervalo de corrente para o qual $V \propto I$ tem início em correntes cada vez menores;

b) para $H > 5$ Oe, a mudança de curvatura das curvas I-V ocorre para correntes de excitação no intervalo $30 < I_{ex} < 35$ mA. Isto significa que a aplicação de campo magnético tem um caráter preponderante na supressão da coerência de fase do parâmetro de ordem supercondutor para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$.

Continuando-se com as observações referentes à figura 3.2.16, constatou-se que o composto é bastante sensível à ação do campo magnético aplicado até cerca de 7.5 Oe (figura 3.2.16(a), página 67). Observou-se também que, para $H > 7.5$ Oe, a separação entre as curvas I-V diminuiu com o aumento do campo magnético aplicado. Finalmente, para $H > 50$ Oe as curvas I-V são praticamente coincidentes, como mostrado na figura 3.2.16(c) (página 68).

H (Oe)	ΔI_1 (mA)	ΔI_2 (mA)
0	38 - 50	-
1	32 - 50	-
2.5	23.6 - 50	-
5	13.9 - 34.1	34.2 - 50
7.5	10 - 31.3	33 - 46.6
10	9.6 - 30.7	32.3 - 47.5
15	8.8 - 28.9	35.3 - 45.7
20	5.3 - 28.6	31.7 - 46.1
25	4.6 - 29.3	33.1 - 50
30	4.7 - 29.2	31.1 - 50
35	4.4 - 28.4	31.3 - 50
50	3.7 - 28	31.6 - 50
100	1.9 - 26.9	32.5 - 50
150	1.4 - 27.8	32.1 - 50
192	1.6 - 28.4	35.9 - 50

Tabela 3.2.6: Intervalos de corrente para os quais $V \propto I$.

Para alguns valores de campo magnético aplicado, as curvas I-V foram obtidas nos sentidos crescente e decrescente da corrente de excitação, não sendo constatado comportamento irreversível, como mostrado na figura 3.2.20. A ausência de irreversibilidade deve-se, provavelmente, à alta desordem do sistema.

Com o objetivo de investigar o comportamento das curvas I-V para correntes de excitação maiores que 50 mA, algumas destas curvas foram obtidas variando-se a corrente de excitação até 90 mA. Essas curvas, obtidas para $H = 0, 2.5, 5$ e 15 Oe são mostradas na figura 3.2.21, juntamente com as anteriormente obtidas para $H \geq 50$ Oe. A partir dessa figura constatou-se que, para $I_{ex} > 60$ mA, todas as curvas referentes aos diversos valores de campo magnético aplicados convergem para uma única curva. Isto sugere que o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras persiste até cerca de 60 mA. Uma inspeção mais cuidadosa da figura 3.2.21 mostrou que, para correntes de excitação no intervalo $60 < I_{ex} < 78$ mA a curva I-V é linear e sua

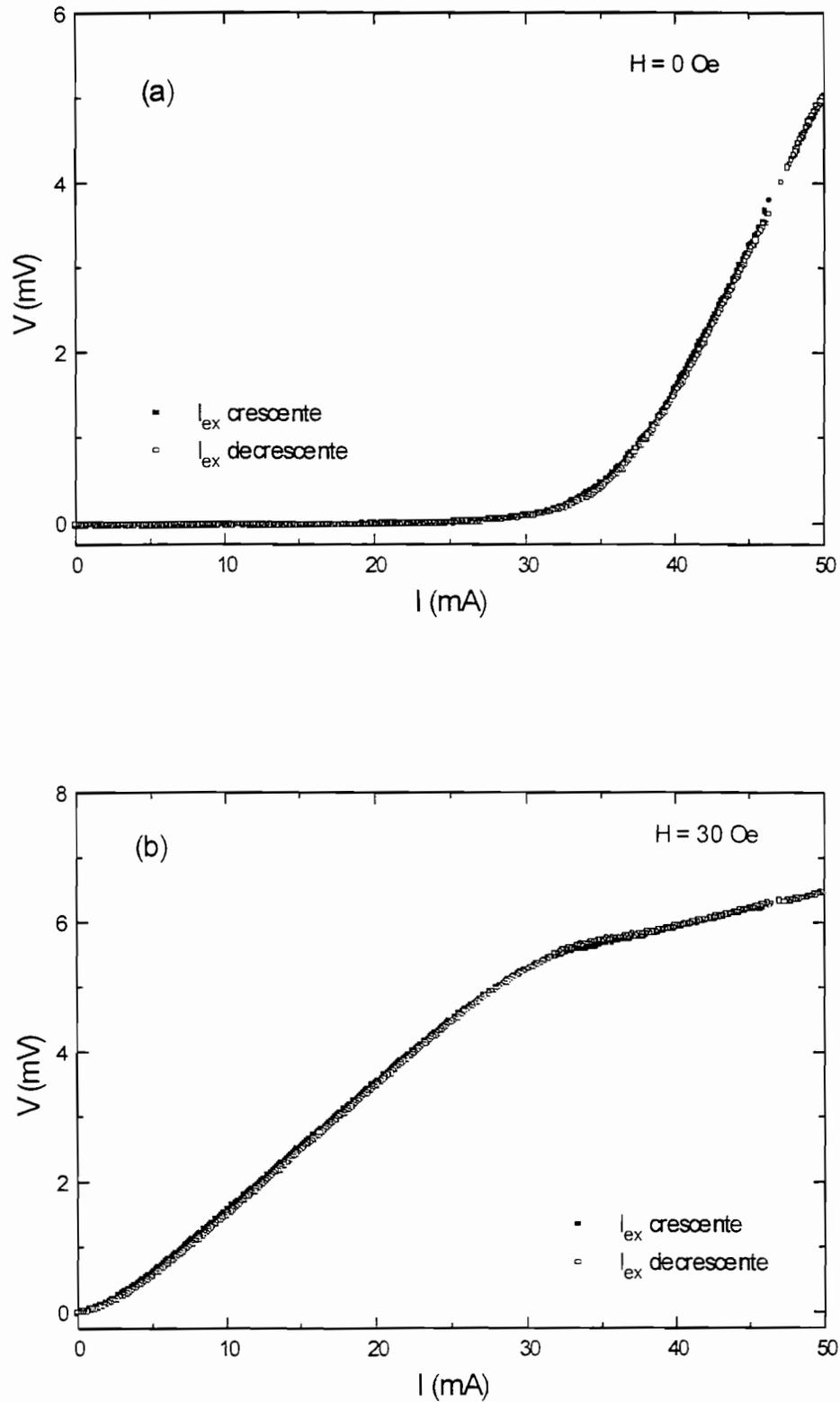


Figura 3.2.20: Curvas I-V para ambos os sentidos crescente e decrescente da corrente de excitação no intervalo $0 \leq I_{ex} \leq 50$ mA, em $T = 4.2$ K, para (a) $H = 0$ Oe (b) $H = 30$ Oe.

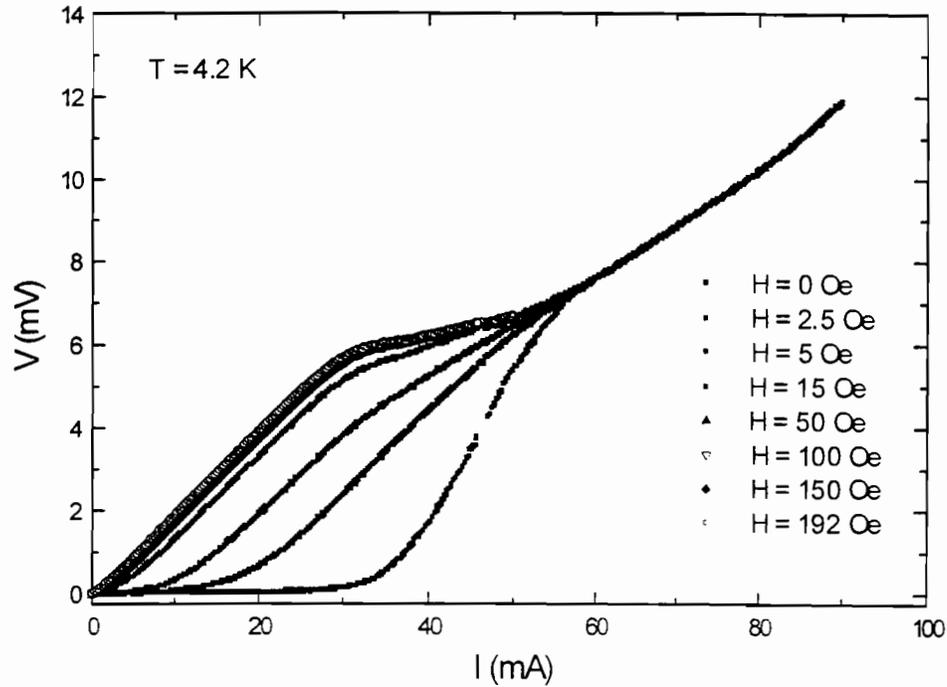


Figura 3.2.21: Curvas I-V, em $T = 4.2$ K, tomadas no intervalo de corrente de excitação $0 \leq I_{ex} \leq 90$ mA para $0 \leq H \leq 15$ Oe e, no intervalo $0 \leq I_{ex} \leq 50$ mA para $50 \leq H \leq 192$ Oe.

extrapolação a menores valores de corrente resulta em $V(I_{ex} = 0) = 0$. Para este intervalo de corrente a resistência elétrica calculada é $R \approx 0.13 \Omega$. Este valor de resistência elétrica corresponde ao valor de R para o *plateau* observado nas curvas de $R(T)$, mostradas na figura 3.2.3 (página 45), o qual corresponde ao intervalo de temperatura $T_{cj} < T < T_{ci}$, no qual as ilhas supercondutoras do material permanecem isoladas. Portanto, o comportamento linear da curva I-V para $60 < I_{ex} < 78$ mA está associado com a resposta do compósito supercondutor constituído por ilhas supercondutoras desacopladas, imersas em uma matriz isolante.

Continuando-se com a análise da figura 3.2.21, observou-se que para $I_{ex} > 78$ mA a curva I-V desvia-se da linearidade, com o aumento da razão V/I . É possível que o comportamento da curva I-V acima de ~ 78 mA reflita a

supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor nas ilhas isoladas, as quais começam a ser afetadas pela alta corrente de excitação. Para a confirmação dessa hipótese foi feita uma estimativa da densidade de corrente crítica correspondente a uma corrente de 78 mA passando através de uma área circular de diâmetro d , onde d é o tamanho de grão médio para o $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ (1-10 μm) [1]. O correspondente valor de J_{cg} calculado é $10^5 - 10^7 \text{ A/cm}^2$. Este resultado é muito interessante, porque o correspondente valor de J_{cg} para o $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{3.98}$ encontrado por Seaman e colaboradores [14] (veja página 70), está compreendido nesse intervalo. Portanto, o desvio da linearidade da curva I-V em $I_{ex} = 78 \text{ mA}$ está relacionado com o fato de que correntes de excitação dessa magnitude já são suficientes para afetar a amplitude do parâmetro supercondutor das ilhas supercondutoras isoladas no material.

Finalizando-se a discussão com respeito às curvas I-V, deve-se ressaltar um resultado que pode ajudar no entendimento do comportamento irreversível das curvas de $R(H)$ para o composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, apresentadas anteriormente. A partir da figura 3.2.18 constatou-se que I_{cJ} é praticamente nula para $H > 30 \text{ Oe}$. Este valor de campo magnético aplicado é justamente o valor de $H_{crossover}$ para as curvas irreversíveis de $R(H)$ mostradas na figura 3.2.12. É provável que isto justifique a razão pela qual $H_{crossover}$ independe da corrente de excitação.

A discussão a seguir diz respeito às curvas mostradas na figura 3.2.12 (ver página 59). Para $H > 30 \text{ Oe}$, o valor de R para um dado H é menor para o ramo decrescente da curva de $R(H)$, como dito anteriormente. Com o decréscimo do campo magnético a partir de H_{max} , ocorre a saída de vórtices de Josephson fracamente aprisionados no material. Isto acontece para qualquer valor de corrente de excitação porque, nesta faixa de campo magnético aplicado, a densidade de corrente crítica para o composto compreendida entre as correntes de Josephson é quase nula. Porém, para $H < 30 \text{ Oe}$, a densidade de corrente crítica de Josephson aumenta gradualmente e os vórtices de Josephson são mais

fortemente aprisionados no composto. Como consequência, para $H < 30$ Oe, $R(H)$ para H decrescente é maior que $R(H)$ para H crescente.

Analogamente ao que foi feito anteriormente, para $H = 30$ Oe estimou-se a máxima área A para a qual existe coerência de fase supercondutora [10] no composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$. Usando-se a expressão $A = \phi_0/H$, onde ϕ_0 é o *quantum* de fluxo supercondutor [10], para $H = 30$ Oe estimou-se que a área A tem um diâmetro de aproximadamente $1 \mu\text{m}$. Como foi visto na seção 3.1 os grãos físicos de $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$ tem um diâmetro da ordem de $1-10 \mu\text{m}$. Sendo assim, para $H = 30$ Oe, a máxima área A para a qual existe coerência de fase supercondutora não extrapola o grão físico do composto. Isto significa que, nesse limite, a supressão da fase do parâmetro de ordem supercondutor ocorre nos contornos dos grãos físicos do material.

Conclusões Preliminares

A combinação dos resultados experimentais obtidos para o composto supercondutor granular $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, a partir de medidas de magneto-resistência $R(T,H)$ na faixa de temperatura $4.2 \leq T \leq 30$ K, correntes de excitação no intervalo $0.25 \leq I_{\text{ex}} \leq 20$ mA e campos magnéticos H , $0.0 \leq H \leq 200$ Oe e de curvas características I-V, em $T = 4.2$ K, no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{\text{ex}} \leq 100$ mA, para valores fixos de H no intervalo $0 \leq H \leq 200$ Oe, permitiu concluir que:

1) acoplamento do tipo Josephson desenvolve-se nesses compostos em temperaturas $T < T_{\text{cj}} \approx 9$ K, sendo responsável pelo estabelecimento de coerência de fase de longo alcance entre as ilhas supercondutoras essencialmente isoladas acima de T_{cj} . Esse acoplamento, como esperado, mostrou ser extremamente sensível à aplicação de baixos campos magnéticos e pequenas alterações na corrente de excitação. De fato, um campo magnético da ordem de 7.5 Oe foi suficiente para que o composto não atingisse o estado de resistência elétrica zero em $T = 4.2$ K, quando submetido a uma corrente de excitação de 1 mA;

2) o alargamento da transição resistiva em temperaturas $T < T_{\text{cj}}$, provocado pela aplicação de campo magnético, mostrou ser uma consequência da dissipação causada pelo arraste de vórtices de Josephson através do material. Nesse contexto, obteve-se a energia de ativação intergranular ou de Josephson U_J relativa a esse movimento dissipativo, que foi encontrada ser dependente da temperatura e do campo magnético aplicado e expressa pela relação:

$$U_J(T, H) \propto \left(1 - \frac{T}{T_{\text{cj}}}\right) (H^{-0.6}) \quad .$$

Tal relação é formalmente similar à energia de ativação intragranular U , relativa ao movimento de vórtices de Abrikosov, obtida para os compostos monocristalinos da mesma família de óxidos supercondutores;

3) na temperatura $T = 4.2$ K e campos magnéticos $H < 200$ Oe, o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras desse composto persiste para correntes de excitação de até $I_{ex} \sim 60$ mA. Com o aumento de I_{ex} , mais precisamente no intervalo $60 < I_{ex} < 78$ mA, as ilhas supercondutoras através do material podem ser consideradas como essencialmente isoladas dentro de uma matriz isolante. O aumento da corrente de excitação para valores de $I_{ex} > 78$ mA, resulta na supressão do *gap* supercondutor ou na supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor dessas ilhas. A densidade de corrente crítica dessas ilhas, ou densidade de corrente crítica intragrão, J_{cg} , foi estimada ser da ordem de $10^5 - 10^7$ A/cm², valores similares ao encontrado no composto isomórfico $Nd_{1.85}Ce_{0.15}CuO_{4-y}$. Este valor é, no mínimo, 10^5 vezes maior que a corrente crítica de Josephson ou intergranular $J_{cj} \sim 1.5$ A/cm². Ainda, observou-se que a $T = 4.2$ K, $J_{cj} \sim 0$, quando o material é submetido a um campo magnético H da ordem de 30 Oe;

4) na temperatura $T = 4.2$ K, as curvas de resistência elétrica *versus* campo magnético aplicado $R(H)$, tomadas durante o aumento e decréscimo de H e para valores fixos de corrente de excitação no intervalo $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, apresentam comportamento irreversível. Esse comportamento é caracterizado por um valor de campo magnético de *crossover*, $H^* \sim 30$ Oe, o qual é independente da corrente de excitação a qual o material é submetido. No intervalo em que $H > H^*$, a magnitude da resistência elétrica no ramo decrescente da curva de $R(H)$, R_d , é menor do que a curva similar obtida através do ramo crescente, R_c . Este comportamento foi explicado com o auxílio de um modelo de supercondutores granulares aplicado em dois limites de campo magnético aplicado. No primeiro, ou seja, a medida que H decresce a partir de

seu valor máximo até $H^* \approx 30$ Oe, vórtices de Josephson fracamente aprisionados deixam a amostra, enquanto a parte restante destes vórtices permanece aprisionada. Como a resistência elétrica em um supercondutor granular é causada pelo movimento de vórtices de Josephson e para H decrescente existe um menor número de vórtices de Josephson no material, a resistência elétrica no ramo decrescente da curva de $R(H)$ é menor do que para o ramo crescente dessa curva. Esse comportamento ocorre para qualquer valor de corrente de excitação porque, nesta faixa de campo magnético aplicado, $H > 30$ Oe, a densidade de corrente crítica de Josephson, J_{cj} , é essencialmente nula. Porém, para $H < 30$ Oe, J_{cj} aumenta gradualmente e os vórtices de Josephson são mais fortemente aprisionados no composto. Como consequência imediata desse mecanismo, $R(H)$ para H decrescente é maior que $R(H)$ para H crescente, no limite de baixos campos magnéticos;

4) dentro do modelo supercondutor granular discutido anteriormente, um campo magnético $H \approx 30$ Oe representa uma área máxima A para a qual existe coerência de fase supercondutora no material. Esta área é dada por $A = \phi_0/H$ e corresponde, para um campo $H \approx 30$ Oe, a regiões circulares no material com diâmetros da ordem de $1 \mu\text{m}$. Como os grãos físicos desse composto apresentam diâmetros compreendidos entre $1-10 \mu\text{m}$, estes resultados apontam para o fato de que os contornos de grão são os sítios onde ocorre a supressão da fase do parâmetro de ordem supercondutor nesses supercondutores granulares.

REFERÊNCIAS

- [1] R. F. Jardim, L. Ben-Dor, D. Stroud e M.B. Maple, *Phys. Rev. B* **50**, 10080 (1994).
- [2] L. Fábrega, B. Martínez, J. Fontcuberta, X. Obradors e S. Piñol, *Phys. Rev. B* **46**, 5581 (1992).
- [3] C. C. Almasan, S. H. Han, E.A.Early, B. W. Lee, C. L. Seaman, and M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **45**, 1056 (1992).
- [4] K. Kadowaki, Y. Songliu e K. Kitazawa, *Supercond. Sci. Technol.* **7**, 519 (1994).
- [5] J. Tate e B. A. Hermann, *Physica C* **193**, 207 (1992).
- [6] L. Fábrega, J. Fontcuberta, S. Piñol, C. J. van der Beek e P. H. Kes, *Phys. Rev. B* **46**, 11952 (1992).
- [7] L. Fábrega, J. Fontcuberta, S. Piñol, C. J. van der Beek e P. H. Kes, *Phys. Rev. B* **47**, 15250 (1993).
- [8] V. M. Vinokur, M. V. Feigel'man, V. B. Geshkenbein e A. I. Larkin, *Phys. Rev. Lett.* **65**, 259 (1990).
- [9] M. Nikolo, *Physica B* **194-196**, 2129 (1994).
- [10] R. P. Barber Jr e R. C. Dynes, *Phys. Rev. B* **48**, 10618 (1993).
- [11] R. F. Jardim, M. C. de Andrade, E. A. Early, M. B. Maple e D. Stroud, *Physica C* **232**, 145 (1994).
- [12] L. Ji, M.S. Rzchowski, N. Anand e M. Tinkham, *Phys. Rev. B* **47**, 470 (1993).
- [13] J. W. Ekin, H. R. Hart, Jr. e A.R. Gaddipati, *J. Appl. Phys.* **68**, 2285 (1990).
- [14] C. L. Seaman, N. Y. Ayoub, T. Bjørnholm, E. A. Early, S. Ghamaty, B. W. Lee, J. T. Markert, J. J. Neumeier, P. K. Tsai e M. B. Maple, *Physica C* **159**, 391 (1989).
- [15] J. R. Clem, B. Bumble, S. I. Raider, W. J. Gallagher e Y. C. Shih, *Phys. Rev. B* **35**, 6637 (1987).

- [16] M. Tinkham e J. C. Lobb, *Solid State Phys.* **42**, 91 (1989).
- [17] B. G. Orr, H. M. Jaeger e A. M. Goldman, *Phys. Rev. B* **32**, 7586 (1985).

4- Propriedades de transporte no limite de altos campos magnéticos: $0 < H < 18$ T

4.1 Caracterização estrutural e microestrutural do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$

É sabido que os compostos supercondutores $\text{Ln}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ e Eu) tem a mesma estrutura básica, a qual é tetragonal, do tipo T' [1,2]. Com o objetivo de confirmar a formação da fase $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, foi obtido o difratograma de raios-X para o composto na forma de pó, o qual é mostrado na figura 4.1.1.

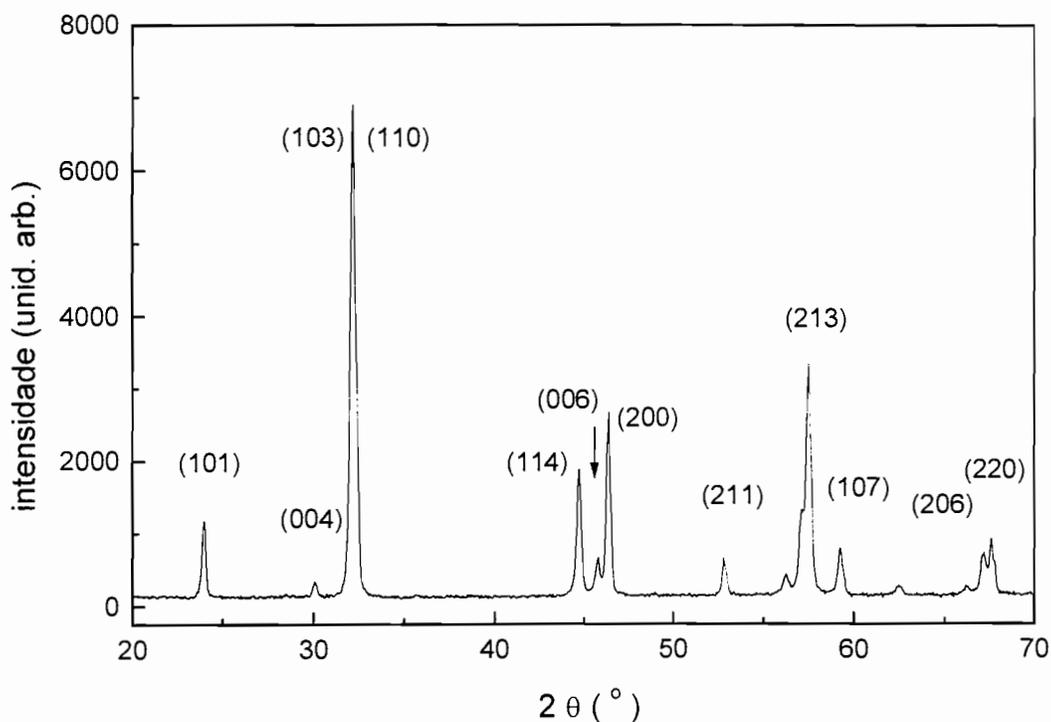


Figura 4.1.1: Difratograma de raios-X obtido para o pó de $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ antes de ser prensado na forma de pastilhas. A indexação dos picos de difração revelou que o material obtido é de fase única e com estrutura T' [2,3,4].

Comparando-se o difratograma de raios-X da figura 4.1.1 com o obtido para o $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ [2,3], concluiu-se que o material obtido apresenta fase única. Além disso, a ausência de reflexão relativa ao CeO_2 ($2\theta \approx 28.5^\circ$) [3], confirmou a completa difusão de Ce na estrutura T' [1]. A indexação dos picos do difratograma que caracterizam tal estrutura também é mostrada na figura 4.1.1.

Além da caracterização estrutural, as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ foram analisadas via microscopia eletrônica de varredura. Na figura 4.1.2 são apresentadas as fotomicrografias dessas amostras com aumentos de 2500 vezes.

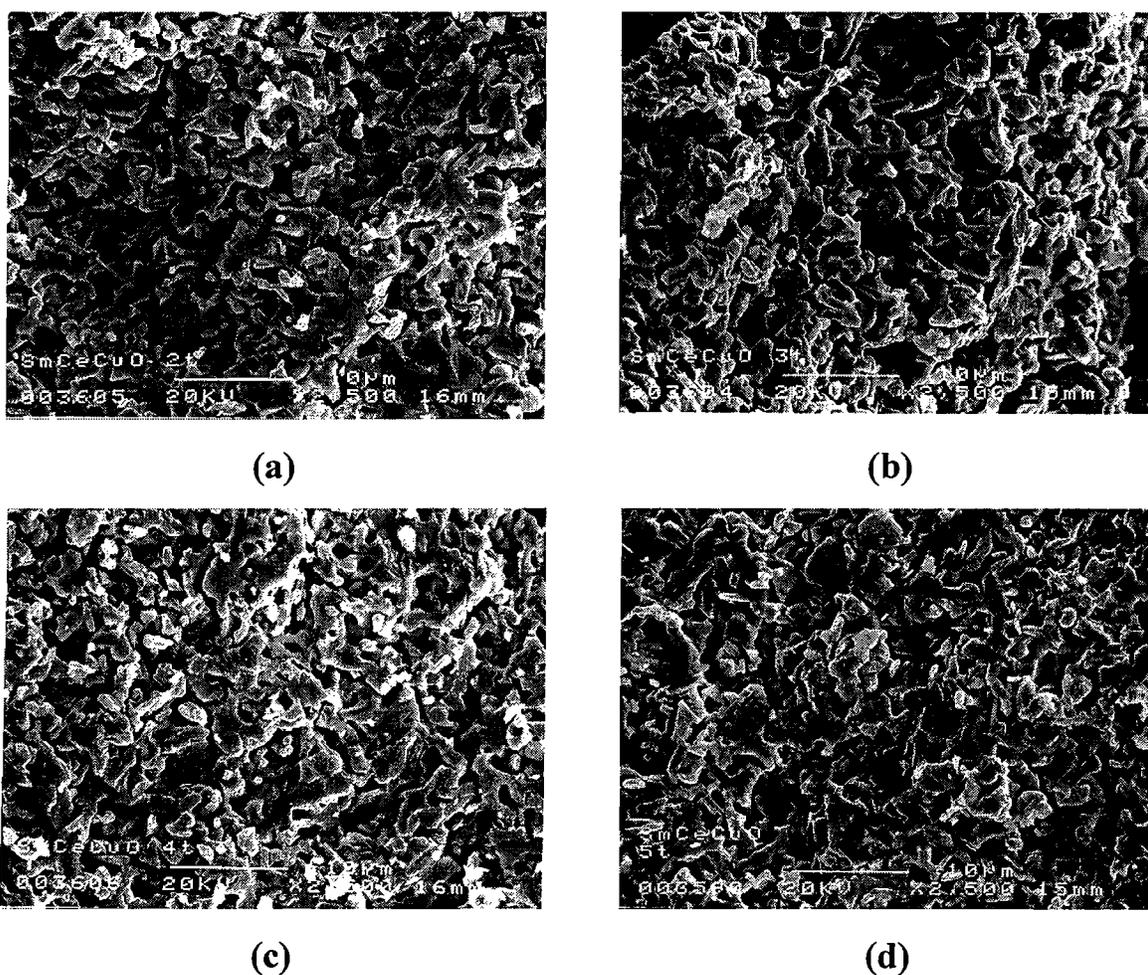


Figura 4.1.2: Fotomicrografias com aumento de 2500 vezes das superfícies de fratura das amostras (a) S-116, (b) S-147, (c) S-196 e (d) S-245.

As superfícies de fratura das amostras S-147 e S-245 podem ser melhor comparadas através das fotomicrografias mostradas na figura 4.1.3, as quais apresentam um aumento de 7000 vezes. As regiões observadas correspondem à seção transversal das amostras.

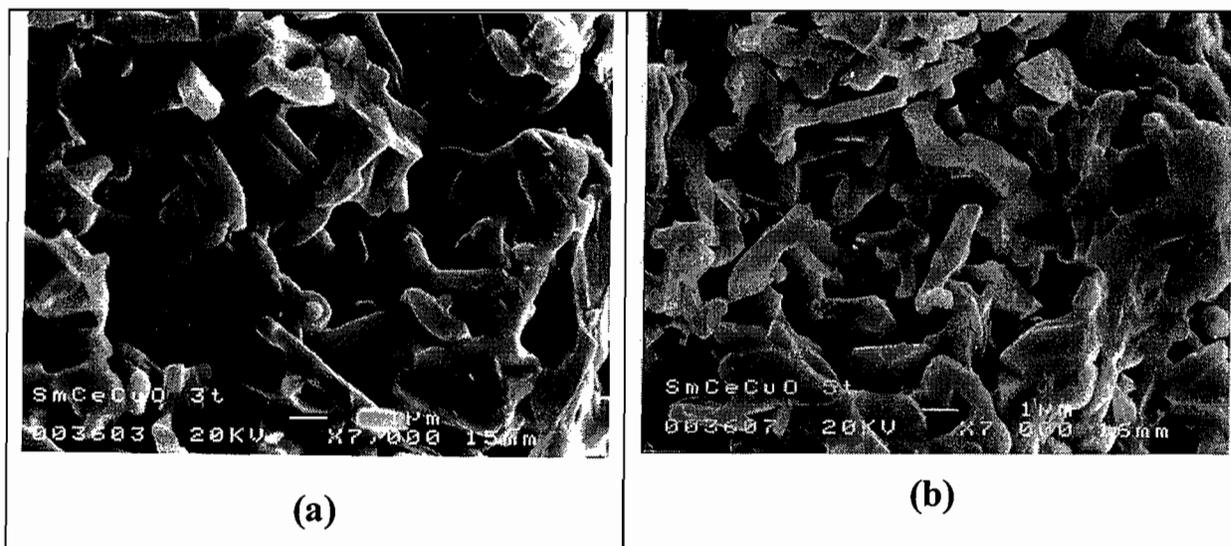


Figura 4.1.3: Fotomicrografias com aumento de 7000 vezes das superfícies de fratura das amostras (a) S-147 e (b) S-245.

A análise microestrutural do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ evidenciou a existência de porosidade aberta em todas as amostras estudadas. De um modo geral, pode-se concluir que as amostras apresentaram maior densificação em função do aumento da pressão de compactação. Isto pode ser melhor observado quando comparamos a microestrutura das amostras sob aumentos de 7000 vezes. A densificação da amostra S-245 é muito maior do que a observada na amostra S-147. Na amostra S-245, visualizam-se grãos do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ coalescidos, formando pequenas regiões contínuas no material, sem porosidade. Nas amostras S-147 e S-245, os grãos individuais apresentam morfologia acicular com tamanho médio de cerca de $4 \mu\text{m}$ de comprimento e $1 \mu\text{m}$ de largura.

4.2- Caracterização magnética

Uma maneira simples de detectar propriedades supercondutoras em materiais é através da medida de magnetização, uma vez que espera-se que estes apresentem propriedades diamagnéticas abaixo de T_{ci} . Sendo assim, na figura 4.2.1 são apresentadas as curvas de magnetização FC e ZFC das amostras do composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, obtidas para $H = 2$ Oe. A partir das curvas de magnetização mostradas nessa figura, constatou-se que todas as amostras investigadas apresentam propriedades supercondutoras, ou diamagnetismo, em temperaturas abaixo de ≈ 17.5 K. Uma vez que o fluxo magnético é inicialmente ausente da amostra durante o processo ZFC, o diamagnetismo observado depois de aplicar o campo magnético representa a exclusão de fluxo a partir da amostra. Isto difere fundamentalmente da expulsão de fluxo (efeito Meissner) que ocorre em um processo do tipo FC. Entretanto, para o composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, a partir da figura 4.2.1 observou-se que as curvas de magnetização FC e ZFC são quase coincidentes. Isto significa que o acoplamento entre as ilhas supercondutoras desse composto é muito pequeno, restrito a pequenas frações volumétricas do material. A partir das curvas de magnetização obtidas pelo processo FC, foram obtidas as frações supercondutoras das amostras do composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, como descrito a seguir.

Do eletromagnetismo [5] é sabido que:

$$B = H + 4\pi M \quad (\text{cgs}) \quad (4.2.1)$$

e

$$M = \chi H \quad (\text{cgs}), \quad (4.2.2)$$

onde $B \equiv$ indução magnética, $H \equiv$ campo magnético, $M \equiv$ magnetização (momento magnético/volume) e $\chi \equiv$ susceptibilidade magnética. A partir das equações (4.2.1) e (4.2.2),

$$B = (1 + 4\pi\chi) \cdot H. \quad (4.2.3)$$

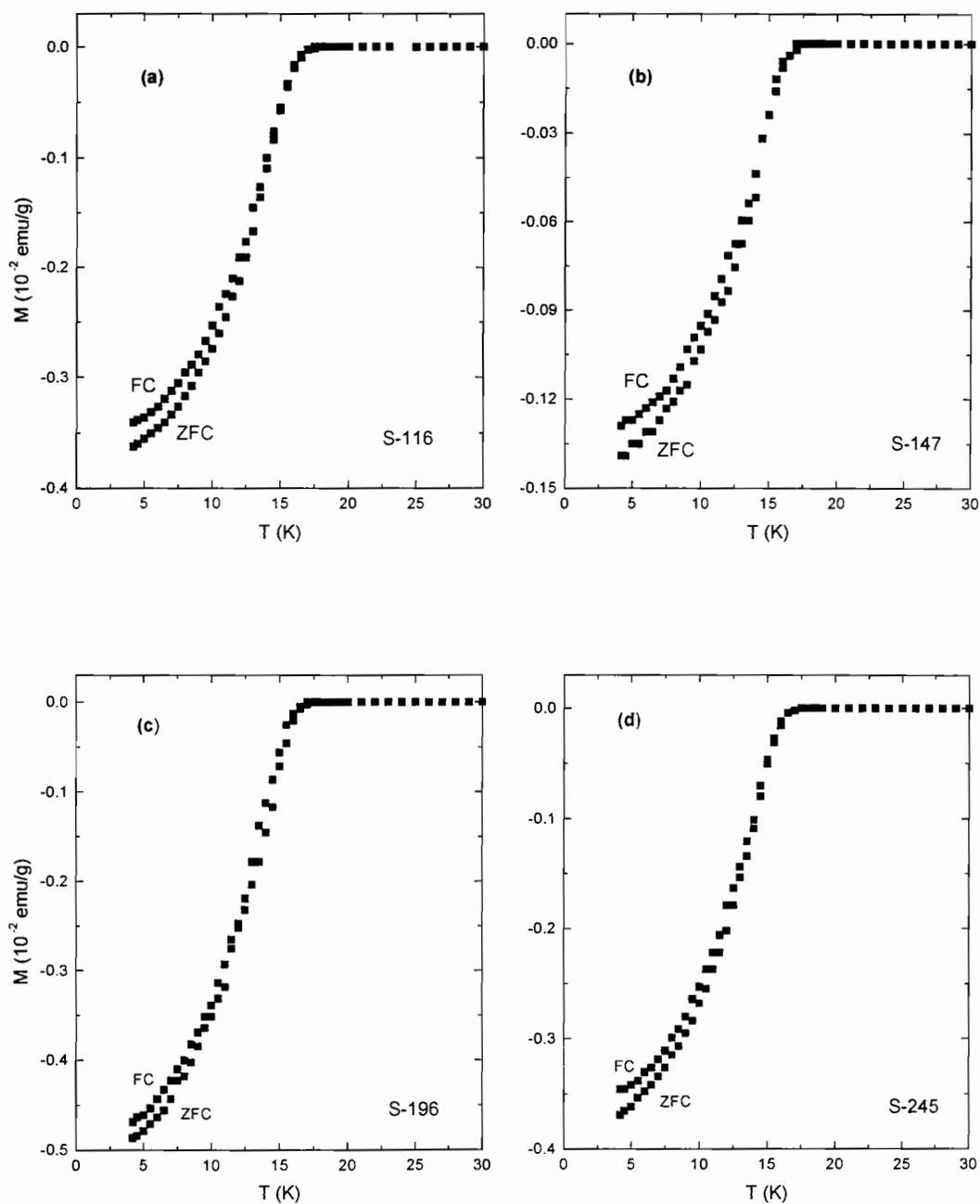


Figura 4.2.1: Curvas de magnetização do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ sob campo magnético aplicado de 2 Oe para as amostras (a) S-116, (b) S-147, (c) S-196 e (d) S-245.

Da definição de susceptibilidade magnética dada pela equação (4.2.2) pode-se escrever:

$$\chi = \frac{m}{\text{massa}} \cdot \frac{\rho}{H}, \quad (4.2.4)$$

onde $m \equiv$ momento magnético e $\rho \equiv$ densidade do material. Para cada uma das amostras, a partir das curvas de magnetização FC foi obtido o valor de m/massa , em $T = 5 \text{ K}$. Considerando-se $\rho \sim 7.5 \text{ g/cm}^3$ [6] e $H = 2 \text{ Oe}$, foram calculados os correspondentes valores de χ através da equação (4.2.4). Da equação (4.2.3), o diamagnetismo perfeito ocorre sempre que $4\pi\chi = -1$, o que resulta em $B = 0$. Portanto, os valores de fração volumétrica supercondutora das amostras investigadas são dados por $-4\pi\chi$. Os resultados obtidos foram: 16% para as amostras S-116 e S-245, 6 e 22% para as amostras S-147 e S-196, respectivamente. Entretanto, estes valores de fração volumétrica supercondutora estão bem abaixo do valor mínimo necessário para percolação, o que é esperado ser da ordem de 30 % [7].

Para as amostras S-116, S-147 e S-196 foram também obtidas curvas de magnetização FC e ZFC sob campo magnético de 7 T, as quais são mostradas na figura 4.2.2. A partir dessa figura observou-se que as curvas FC e ZFC são essencialmente coincidentes e, *a priori*, não há evidência de supercondutividade para um campo magnético dessa magnitude. Entretanto, como será mostrado posteriormente, a análise das curvas de $R(T)$ para essas amostras evidenciaram a propriedade supercondutora nesse composto ainda que para $H > 7 \text{ T}$. Voltando-se à figura 4.2.2, observou-se o aumento da magnetização com o decréscimo da temperatura até $T \sim 4.9 \text{ K}$, abaixo da qual a curva de magnetização é essencialmente decrescente. O valor de temperatura $T \sim 4.9 \text{ K}$ pode ser identificado com a temperatura de ordenamento antiferromagnético da sub-rede dos íons Sm^{+3} [8-11]. De fato, a partir dos resultados da referência 9 para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, para $x = 0.17$ estimou-se que a temperatura de Néel (T_N) é $\sim 4.9 \text{ K}$, como observado experimentalmente.

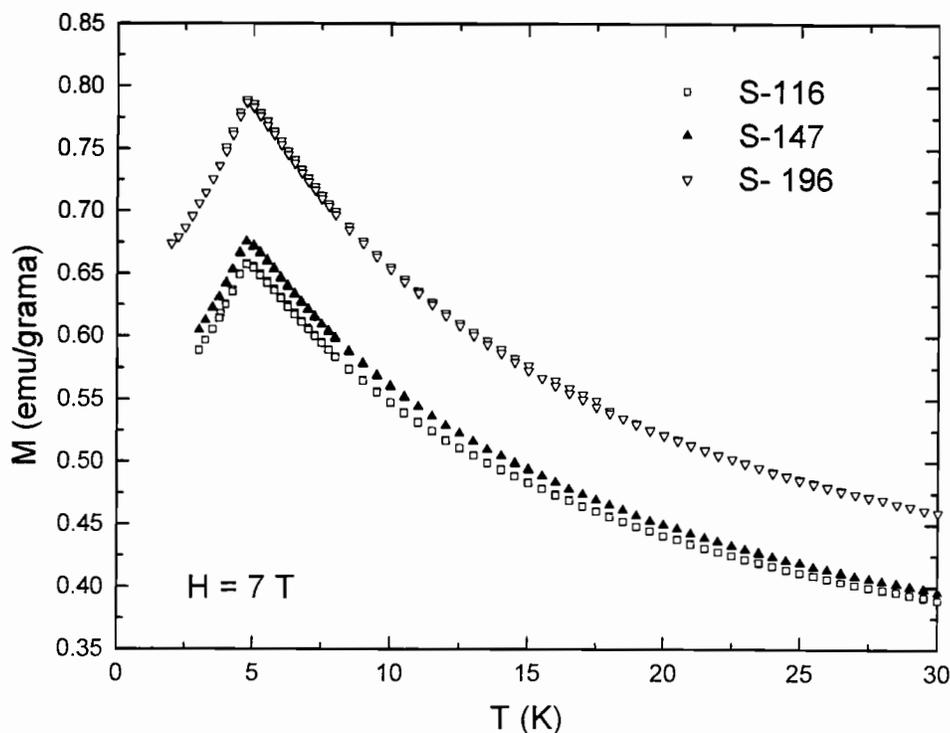


Figura 4.2.2: Curvas de magnetização FC e ZFC das amostras S-116, S-147 e S-196, para $H = 7$ T.

4.3 - Propriedades de transporte

Curvas de $R(T)$ para valores fixos de H

Como foi discutido na seção anterior, as curvas de magnetização das amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ apresentam características supercondutoras para $T \leq 17.5$ K. Entretanto, nenhuma das amostras investigadas apresentou resistência elétrica nula, mesmo em temperaturas tão baixas quanto 4.2 K. Isto pode ser observado a partir da figura 4.3.1 onde são mostradas, para essas amostras, as curvas de resistividade elétrica em função da temperatura, $\rho(T)$, a campo magnético nulo.

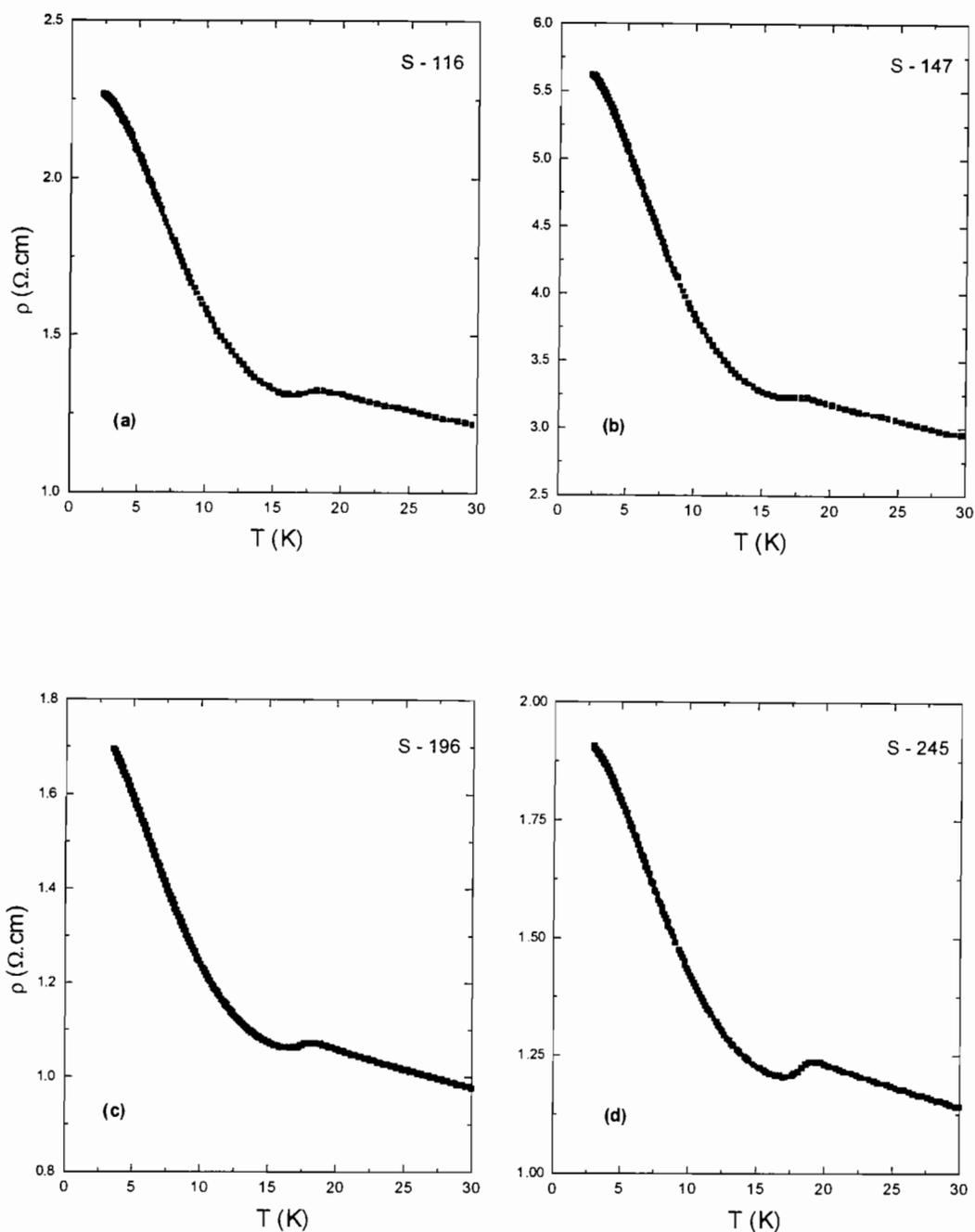


Figura 4.3.1: Resistividade elétrica a $H = 0$ T das amostras (a) S-116, (b) S-147, (c) S-196 e (d) S-245.

A partir dessa figura observou-se que, de uma maneira geral, em $T > 20$ K as amostras apresentam comportamento semicondutor. Diminuindo-se a temperatura, as curvas de $\rho(T)$ apresentam um mínimo local similar a um comportamento quase-reentrante. O limiar desse comportamento ocorre em

$T_{ci} = 17.5$ K para as amostras S-116 e S-147 e, a $T_{ci} = 18$ e 17.8 K para as amostras S-196 e S-245, respectivamente. Entretanto, os valores de T_{ci} são muito próximos aos valores de temperatura nos quais observou-se o limiar do comportamento diamagnético nessas amostras (ver figura 4.2.1). Isto pode ser observado na figura 4.3.2, onde são mostradas as curvas de $M(T)$ e de $\rho(T)$ para a amostra S-147.

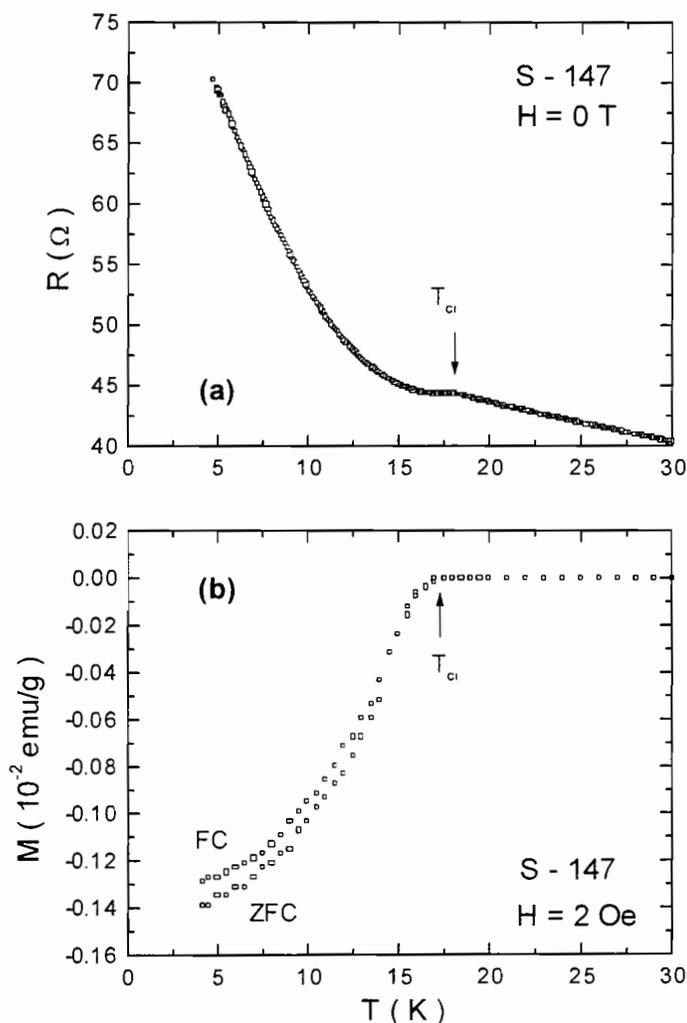


Figura 4.3.2: (a) $R(T)$ e (b) $M(T)$ para a amostra S-147. O abrupto aumento de $R(T)$ em $T < 17.5$ K coincide com o limiar do comportamento diamagnético do composto.

A partir da figura 4.3.2 é nítido o aumento de $R(T)$ da amostra S-147 com o decréscimo da temperatura, em $T < T_{ci}$. De fato, como mostrado na figura

4.3.1, verificou-se tal comportamento para todas as amostras investigadas, independentemente do valor da resistividade elétrica no estado normal. Isto sugere que o rápido aumento de $R(T)$ em $T < T_{ci}$ está relacionado com o caráter supercondutor desse composto. Portanto, identificou-se a queda parcial nas curvas de $\rho(T, H = 0)$ a $T = T_{ci}$, como o limiar de supercondutividade nesses compostos. É importante notar que para os óxidos supercondutores da mesma família do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, $T_{ci} \sim 20$ K [12-15]. Para as amostras aqui investigadas, o valor de T_{ci} é ligeiramente inferior a 20 K, o que pode ser atribuído ao caráter altamente desordenado desses materiais.

Ainda a partir da figura 4.3.1, observou-se que a amostra S-147 foi a que apresentou uma maior razão de aumento de resistência elétrica em $T < T_{ci}$. Baseado na discussão feita na introdução e com o objetivo de melhor entender esse comportamento, essa amostra foi a escolhida para um estudo mais minucioso da magneto-resistência do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ em campos magnéticos de até 8.8 T, o qual será discutido a seguir.

É conveniente iniciar essa discussão a partir dos resultados contidos na figura 4.3.3, onde são mostradas as curvas de $R(T)$ para a amostra S-147, a campo magnético nulo, para diversos valores de corrente de excitação no intervalo $10 \leq I_{ex} \leq 1000 \mu\text{A}$. A partir dessa figura, observou-se que a resistência elétrica da amostra S-147 é insensível a mudanças na corrente de excitação em temperaturas acima de ~ 11 K. Entretanto, em $T < 11$ K existe uma separação nítida nas curvas de $R(T)$ para $10 \leq I_{ex} \leq 10^3 \mu\text{A}$. Além disso, para $I_{ex} = 10 \mu\text{A}$ observa-se o limiar de uma segunda transição, a qual pode ser relacionada com o possível acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras do material. No entanto, com o aumento da corrente de excitação, a magnitude de $R(T)$ aumenta monotonicamente com o decréscimo da temperatura em $T < 11$ K.

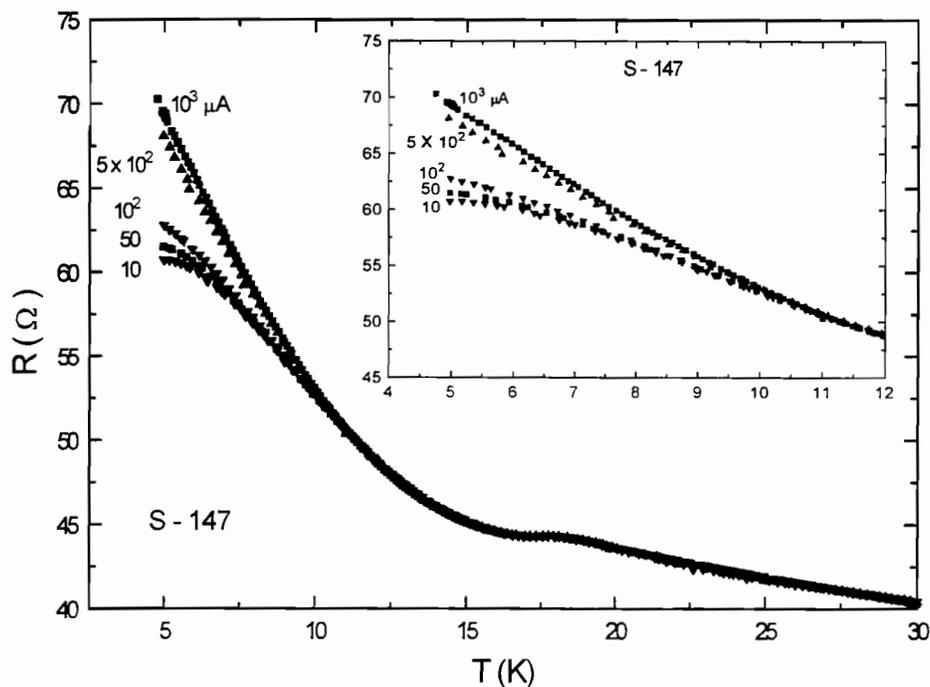


Figura 4.3.3: Curvas de $R(T)$ para a amostra S-147, para $H = 0$ T, com $I_{ex} = 10, 50, 100, 500$ e $1000 \mu A$.

Dando continuidade à investigação da magneto-resistência da amostra S-147, na figura 4.3.4 são mostradas as curvas de $R(T)$ para essa amostra, para valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 \leq H \leq 8.8$ T, com $I_{ex} = 1$ mA. Observou-se que em temperaturas acima de $T_{ci} \sim 17.5$ K, $R(T)$ é praticamente inalterada pela ação do campo magnético aplicado. Porém, a aplicação de um campo magnético tão baixo quanto 0.5 T já é suficiente para suprimir o comportamento quase-reentrante de $R(T)$ em $T \sim T_{ci}$. Além disso, em $T < T_{ci}$ o composto exibe uma apreciável magneto-resistência negativa. Tal decréscimo na magnitude de $R(T)$ é particularmente pronunciado em baixas temperaturas. No sentido de entender e quantificar a magneto-resistência negativa observada na figura 4.3.4, alguns procedimentos foram feitos.

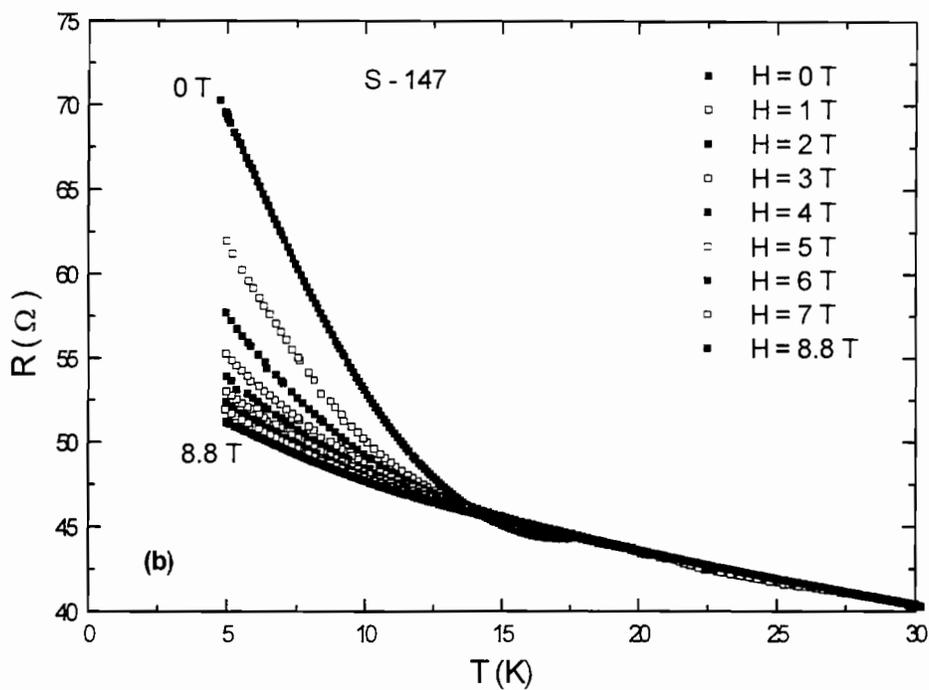
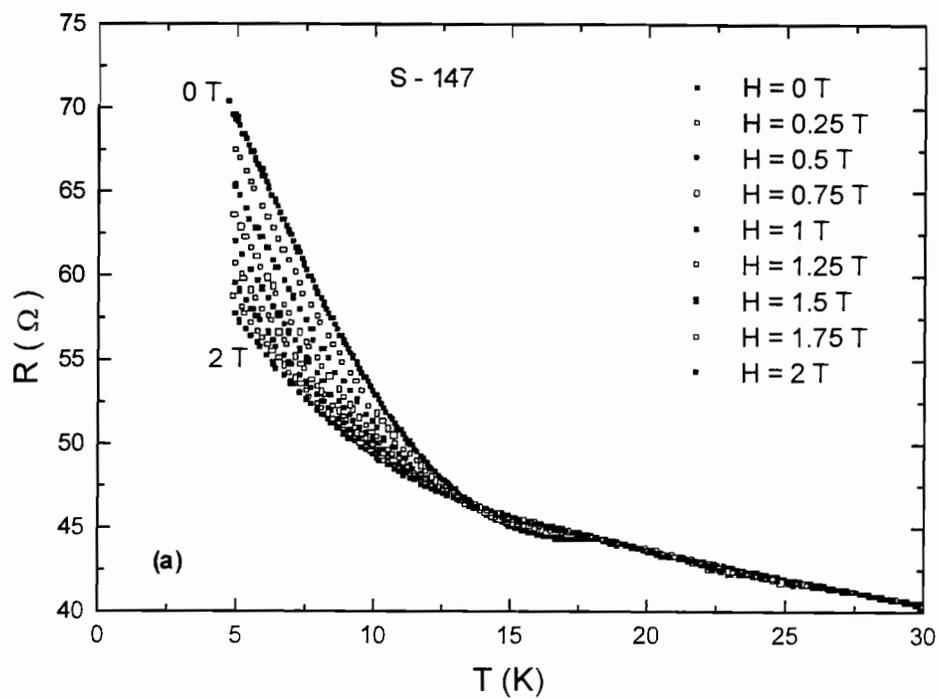


Figura 4.3.4: $R(T)$ para a amostra S-147 para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo (a) $0 < H < 2$ T e (b) $0 < H < 8.8$ T.

Nesse sentido, a figura 4.3.5 mostra a curva de $R(T, H = 0)$ para a amostra S-147 juntamente com a curva que representa a extrapolação do comportamento do estado normal a menores temperaturas. Essa extrapolação foi feita com base no ajuste polinomial de grau 2 dos dados de $R(T, H = 0)$, obtido em altas temperaturas $30 \leq T \leq 65$ K, ou seja, bem acima de T_{ci} . Na mesma figura, é indicado o valor de $\Delta R(T, H)$, que representa o excesso de resistência elétrica do composto em relação ao valor da sua resistência no estado normal extrapolada a menores temperaturas.

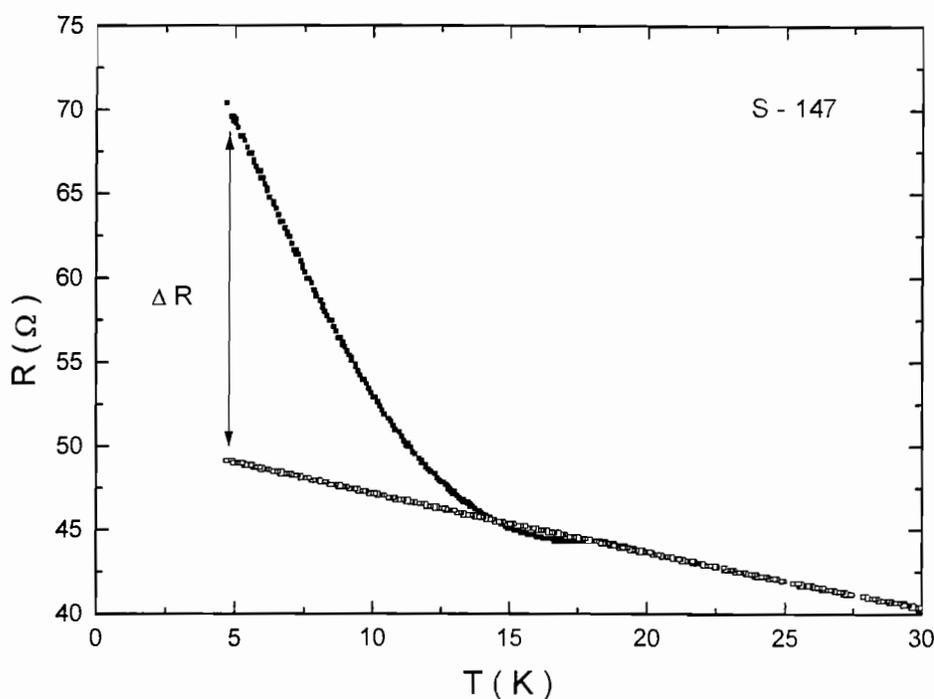


Figura 4.3.5: Curva de $R(T)$ para a amostra S-147, a campo magnético nulo, juntamente com a curva que representa a extrapolação a menores temperaturas do comportamento de $R(T)$ no estado normal. ΔR é definido no texto.

O aumento abrupto de $R(T)$ em temperaturas $T < T_{ci}$, que é certamente devido ao aparecimento da supercondutividade (ver figura 4.3.2) e, a magneto-resistência negativa observada nesse intervalo de temperatura para o composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, podem ser explicados à luz da Teoria Semi-Fenomenológica

de Dois Fluidos (TSFDF) [3,16,17]. Sendo assim, recordando o comportamento esperado nestes materiais, abaixo de T_{ci} observa-se o desenvolvimento da supercondutividade em ilhas isoladas no supercondutor granular. Isto faz com que a concentração dos elétrons normais diminua nestas ilhas, a medida que os elétrons começam a se condensar em um super-fluido à temperatura de transição T_{ci} . A proporção de super-fluido aumenta a medida que a temperatura é diminuída, devido ao aumento da concentração de pares de Cooper. De acordo com a TSFDF [3,16,17], a proporção de elétrons que permanecem no fluido normal abaixo de T_{ci} deve variar com $(T/T_{ci})^4$, como mostrado na equação 1.2.7 (ver página 24). Portanto, o excesso de resistência elétrica do sistema abaixo de T_{ci} deve ser aumentado por um fator de $(T/T_{ci})^4$. Isto pode ser confirmado a partir da figura 4.3.6, a qual mostra as curvas de $\Delta R(T,H) \times (T/T_{ci})^{-4}$ da amostra S-147, no intervalo de campo magnético $0 < H < 8.8$ T e $0.6 < T/T_{ci} < 1$.

A primeira observação a ser feita com relação a essa figura, diz respeito ao valor negativo de ΔR para campo magnético nulo, no intervalo de temperatura $0.8 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$ ou $1 \leq (T/T_{ci})^{-4} \leq 2.4$. Este comportamento pode ser melhor observado na figura 4.3.7. Esta figura mostra o comportamento de ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147 submetida a campos magnéticos de até 1 T. De uma maneira geral, para $H < 1$ T e $0.8 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$, ΔR não é proporcional a $(T/T_{ci})^{-4}$ e assume um valor negativo a medida que H se aproxima do valor nulo. Este comportamento está relacionado à característica quase-reentrante das curvas de $R(T)$ apresentadas pelo composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, nesse intervalo de temperatura, para $H < 1$ T. A queda parcial de resistência elétrica observada em $T = T_{ci}$ está associada ao desenvolvimento da supercondutividade em regiões isoladas do material. Sendo assim, é esperado que haja concomitantemente algum tipo de acoplamento entre estas regiões supercondutoras, levando a um estado de coerência de fase de curto alcance.

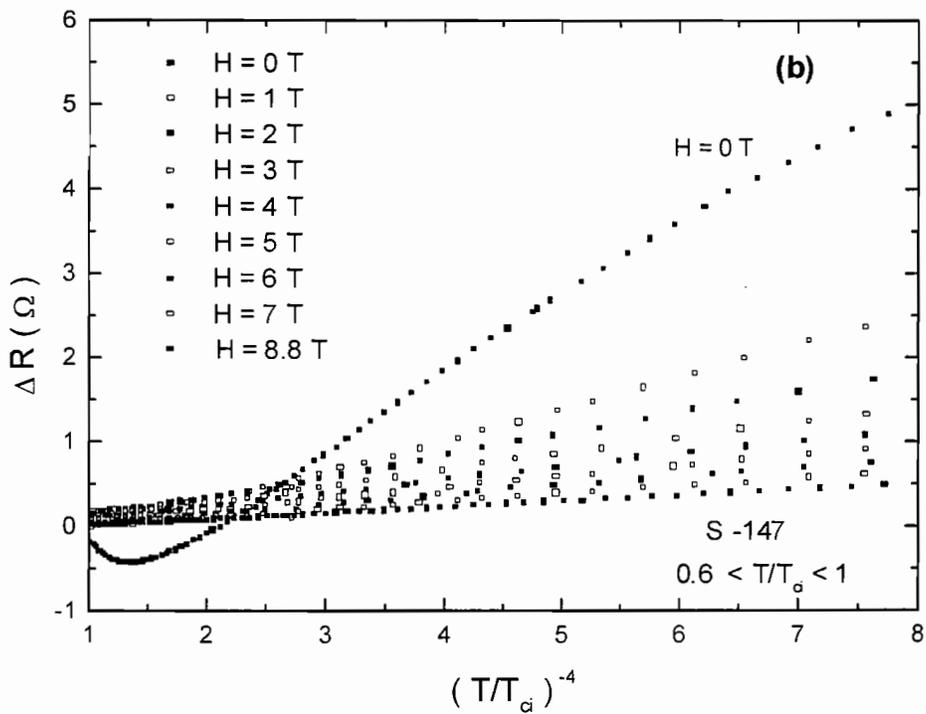
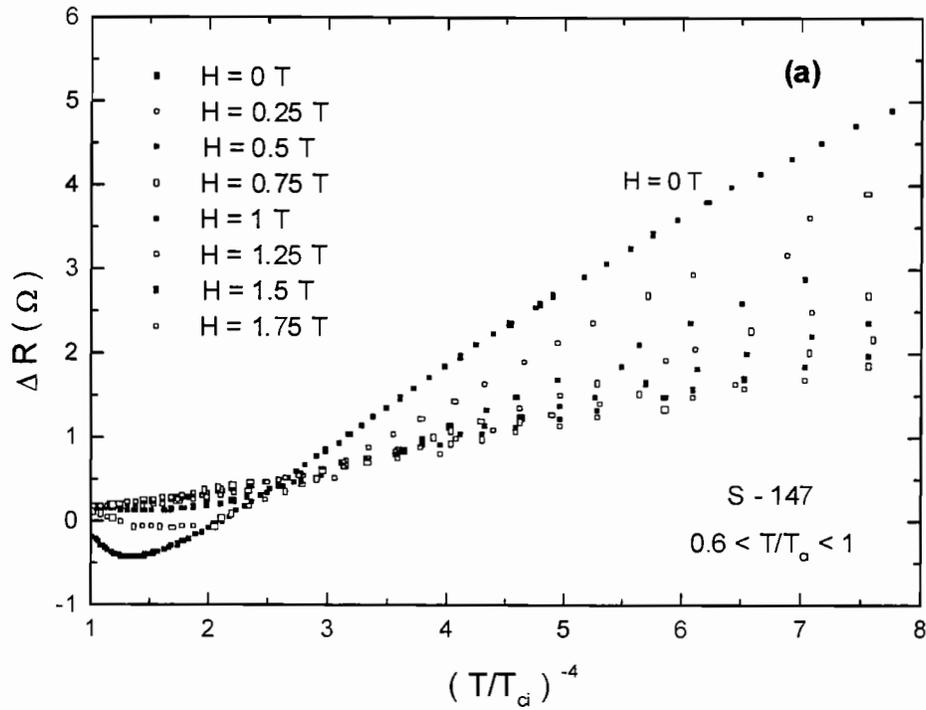


Figura 4.3.6: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, sendo $0.6 < (T/T_{ci}) < 1$, para (a) $0 \leq H \leq 1.75$ T e (b) $0 \leq H \leq 8.8$ T.

Este tipo de acoplamento, via efeito Josephson, é sensível a pequenas variações na corrente de excitação e baixos campos magnéticos. Por essa razão, como já foi dito anteriormente, a aplicação de um campo magnético tão baixo quanto 0.5 T já é suficiente para suprimir o comportamento quase-reentrante de $R(T)$ em $T < T_{ci}$.

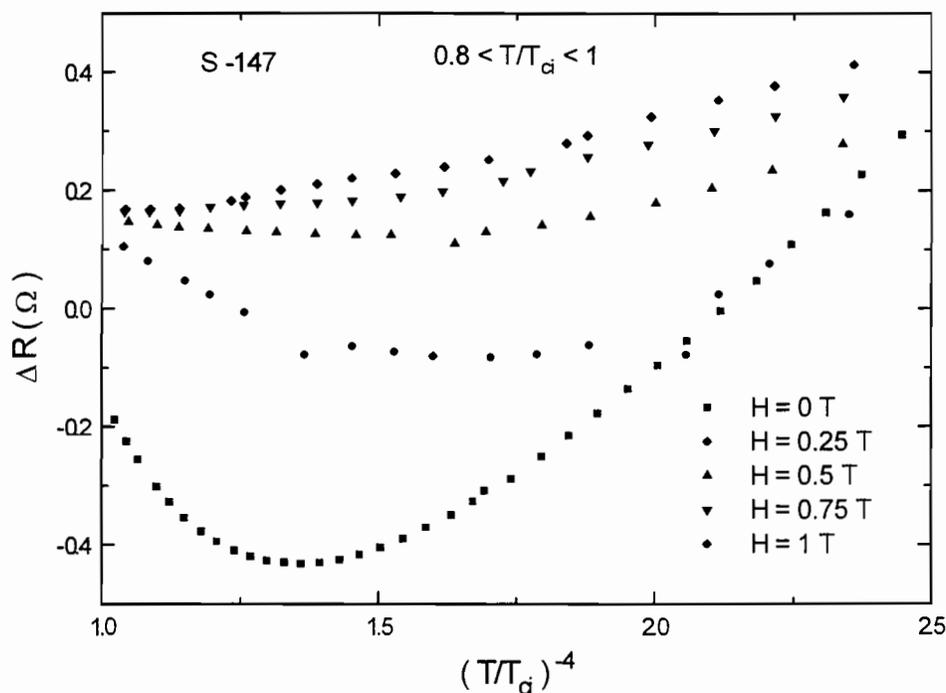


Figura 4.3.7: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, sendo $0.8 < (T/T_{ci}) < 1$, para diversos valores de campos magnéticos aplicados no intervalo $0 \leq H \leq 1$ T.

Voltando-se à figura 4.3.6, observou-se que em $0.6 < (T/T_{ci}) < 0.8$ ou $2.4 < (T/T_{ci})^{-4} < 7.7$, ainda para $H < 1$ T, o comportamento de ΔR segue a previsão da TSFDF, ou seja, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$ [3,16,17]. Uma análise mais cuidadosa das curvas de ΔR apresentadas na figura 4.3.6 mostrou que este intervalo de temperatura aumenta monotonicamente com o aumento do campo magnético aplicado. A figura 4.3.8 mostra que, para $3 \leq H \leq 8.8$ T, $\Delta R = A + B(T/T_{ci})^{-4}$, como previsto pela TSFDF [3,16,17], no intervalo de

temperatura $0.6 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$, que corresponde a temperaturas compreendidas entre $11 < T < 17.5$ K.

Ainda a partir da figura 4.3.6 observou-se que, em uma dada temperatura, $\Delta R(T,H)$ diminui com o aumento do campo magnético aplicado. Certamente, isto é devido à diminuição da concentração dos pares de Cooper pela ação do campo magnético. Este efeito leva a um aumento do número de portadores normais de carga, responsáveis pelo *hopping* entre ilhas metálicas, resultando em uma diminuição da resistência elétrica da amostra como um todo.

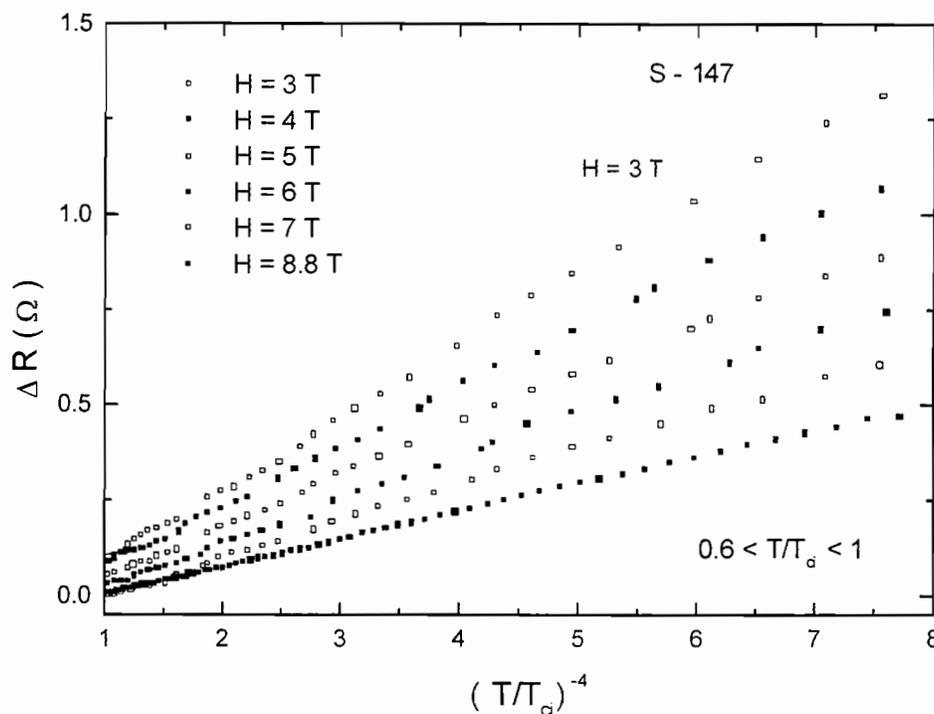


Figura 4.3.8: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-4}$ para a amostra S-147, sendo $0.6 \leq (T/T_{ci}) \leq 1$, para diversos valores de campos magnéticos aplicados no intervalo $3 \leq H \leq 8.8$ T. Note que $\Delta R(T,H) = A + B(T/T_{ci})^{-4}$.

Para investigar melhor o comportamento de ΔR em função do campo magnético, foram obtidas as curvas de $R(T)$ para as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ em campos magnéticos tão altos quanto 18 T, as quais são mostradas na figura 4.3.9.

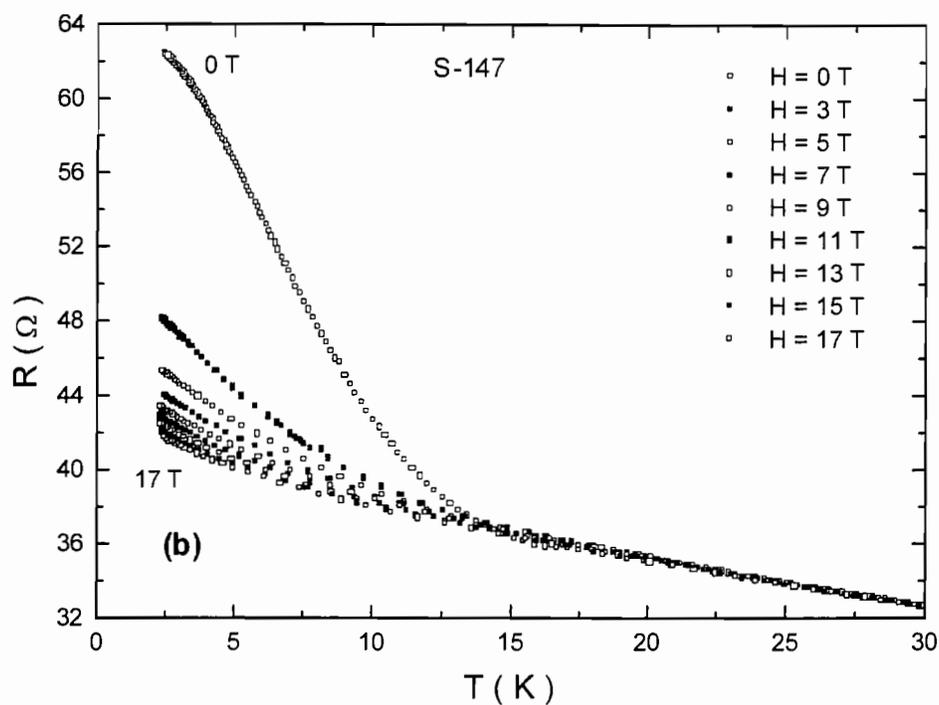
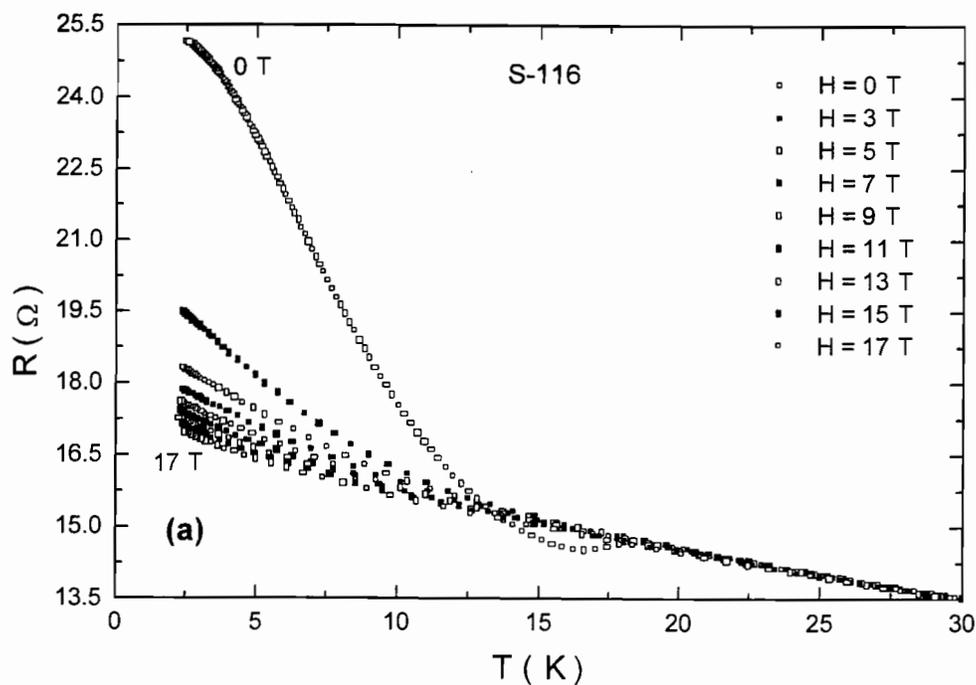


Figura 4.3.9: $R(T)$ para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 < H < 18$ T para as amostras (a) S-116 e (b) S-147.

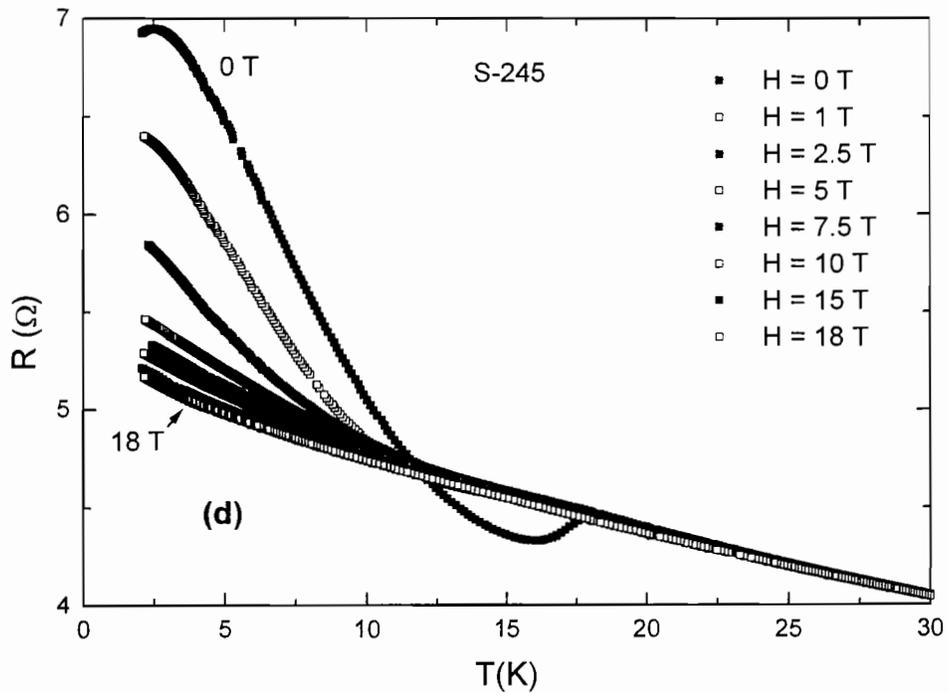
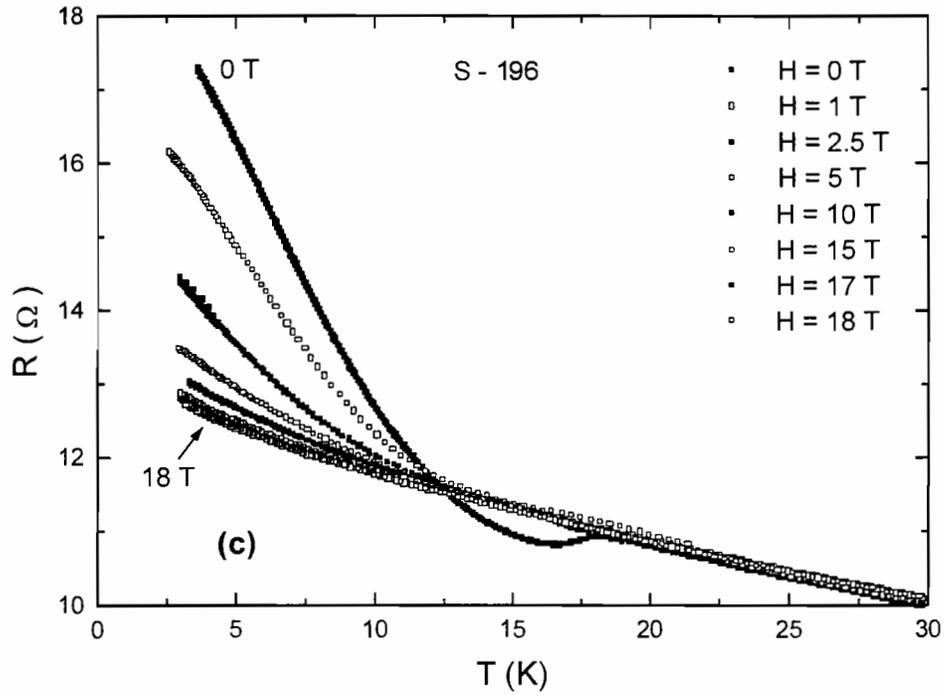


Figura 4.3.9: $R(T)$ para diversos valores de campo magnético aplicado no intervalo $0 < H < 18$ T para as amostras (c) S-196 e (d) S-245.

As curvas de magneto-resistência das amostras S-116 e S-196 resultaram análogas às da amostra S-147. Quanto à amostra S-245, as medidas de $R(T,H)$ mostraram ser similares às demais amostras, com exceção de uma série de medidas para uma específica configuração de campo magnético e corrente de excitação. Nesse caso, foram observados picos de dissipação nas curvas de $R(T,H)$, os quais serão apresentados posteriormente. Na figura 4.3.9(d) são mostradas as curvas de $R(T,H)$ da amostra S-245, as quais não apresentam picos de dissipação. A partir da figura 4.3.9, para as quatro amostras investigadas constatou-se que a magneto-resistência abaixo de T_{ci} é negativa, não havendo variação substancial na magnitude de ΔR em campos magnéticos $H > 9$ T. Além disso, foi observado que ΔR não é estritamente zero ainda para $H = 18$ T. Este fato é ilustrado na figura 4.3.10, a qual mostra a curva de $R(T)$ da amostra S-245, para $H = 18$ T, juntamente com a curva que representa a extrapolação da resistência elétrica do estado normal em temperaturas mais baixas. O valor de $\Delta R \neq 0$ em uma larga faixa de temperatura ainda que para campos magnéticos de 18 T, sugere que o campo crítico superior H_{c2} para o composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$ ainda não foi atingido. Isto significa que a aplicação de campos magnéticos desta magnitude não foi suficiente para suprimir na totalidade o *gap* supercondutor nesse composto, no intervalo de temperatura investigado. Entretanto, como pode ser observado a partir da figura 4.3.10, ΔR assume pequenas magnitudes no intervalo de temperatura $11 \text{ K} < T < T_{ci}$ ou $0.6 < T/T_{ci} < 1$. De fato, a variação na magnitude de ΔR neste intervalo de temperatura foi observada ser $\sim 0.05 \text{ } \Omega$, o que é cerca de dez vezes menor do que a observada, por exemplo, para a amostra S-147 submetida a um campo magnético de ~ 9 T (veja a figura 4.3.8, página 100). Devido à pequena magnitude de ΔR em $11 \text{ K} < T < T_{ci}$, pequenas variações na curva extrapolada da resistência elétrica do estado normal, em relação à qual ΔR é definido, tornam difícil a constatação da dependência $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$ neste intervalo de

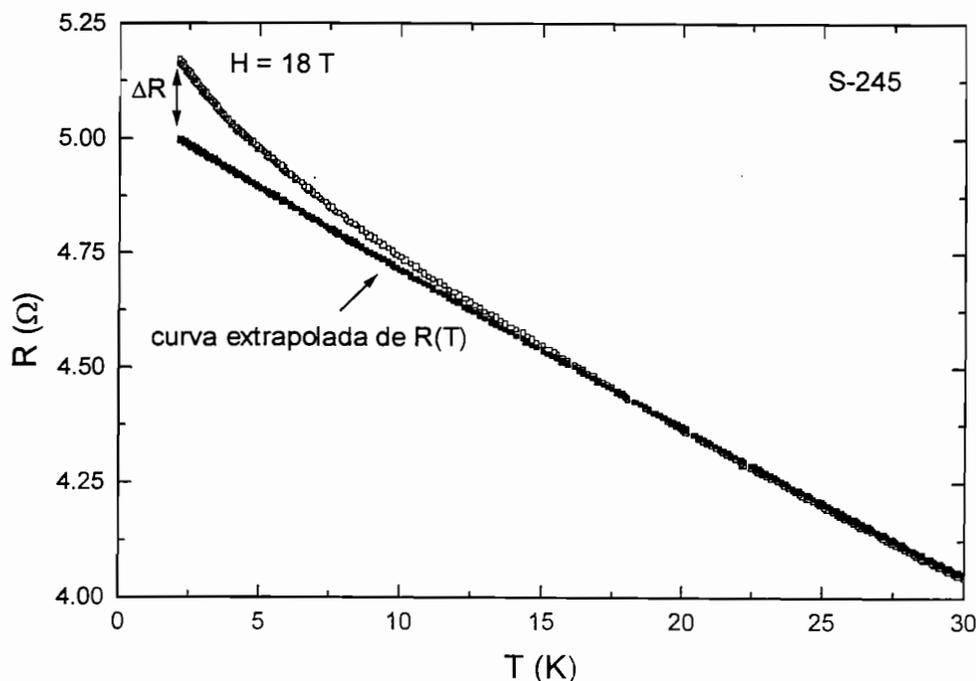


Figura 4.3.10: Curva de $R(T)$ da amostra S-245, para $H = 18$ T, juntamente com a curva que representa a extrapolação da resistência elétrica do estado normal em temperaturas mais baixas.

temperatura. De acordo com a TSFDF [3,16,17], continuando-se com a análise da figura 4.3.10, caso houvesse a supressão total do *gap* supercondutor do sistema em $H = 18$ T, as curvas mostradas nessa figura deveriam ser coincidentes. Uma explicação para este comportamento envolve pelo menos dois aspectos:

(1) Sabe-se que os valores de H_{c2} para os supercondutores dopados com elétrons são muito anisotrópicos [8,18,19]. Por exemplo, para o $\text{Nd}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ estimou-se que $dH_{c2}/dT \approx -8.85$ T/K para $H \perp c$ e $dH_{c2}/dT \approx -0.4$ T/K para $H // c$ [18], sendo que valores similares foram estimados para o $\text{Sm}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ [8,18,19]. Através dessas relações é possível fazer uma estimativa dos valores de H_{c2} em $T = 2.5$ K, a menor temperatura atingida para a obtenção das curvas de $R(T)$ para a amostra S-245.

Essa estimativa resulta em $H_{c2}(2.5 \text{ K}) \perp c \approx 133 \text{ T}$ e $H_{c2}(2.5 \text{ K}) // c \approx 6 \text{ T}$. Portanto, para o $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ policristalino, ainda que $H = 18 \text{ T}$ esteja bem acima do valor de $H_{c2} // c$ para os domínios cristalinos desse material, certamente está bem abaixo do valor de $H_{c2} \perp c$ [18]. Esta característica, combinada com a orientação aleatória desses domínios, certamente deve causar uma larga distribuição de H_{c2} para esse composto policristalino. Portanto, mesmo a aplicação de um campo magnético tão alto quanto 18 T certamente não será suficiente para suprimir a supercondutividade em todos os domínios cristalinos do $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, aleatoriamente orientados em relação ao campo magnético aplicado;

(2) Para os supercondutores dopados com elétrons, a temperatura crítica supercondutora T_{ci} é muito sensível a pequenas flutuações nas distribuições catiônicas (Ce) e aniônicas (O) [3,12-15]. De fato, Gerber e colaboradores [14,15] estimaram como sendo 10 K a largura de distribuição dos valores de T_{ci} em amostras policristalinas de $\text{Ln}_{1.85}\text{Ce}_{0.15}\text{CuO}_{4-y}$ ($\text{Ln} = \text{Pr}, \text{Nd}, \text{Sm}$ e Eu). Portanto, é razoável supor que o mesmo comportamento ocorra para as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ investigadas neste trabalho. A larga distribuição de T_{ci} , por sua vez, deve implicar em uma distribuição de valores de H_{c2} para o composto. Isto faz com que, mesmo na vizinhança de T_{ci} haja regiões supercondutoras no material mesmo em campos magnéticos aplicados tão altos quanto 18 T .

De volta aos resultados mostrados na figura 4.3.10, observou-se que a magnitude de ΔR começa a ser significativamente modificada em temperaturas abaixo de $T \approx 11 \text{ K}$. De fato, uma análise mais cuidadosa das curvas de $\Delta R(T)$ para diversos valores de H , mostrou que a dependência de $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$ observada aqui, é limitada ao intervalo de temperatura $0.6 < (T/T_{ci}) < 1$, ou seja, entre 17.5 e 11 K . Na verdade, em um determinado intervalo de temperatura ΔT

abaixo de $(T/T_{ci}) \sim 0.6$, constatou-se que $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, como observado na figura 4.3.11 para a amostra S-147.

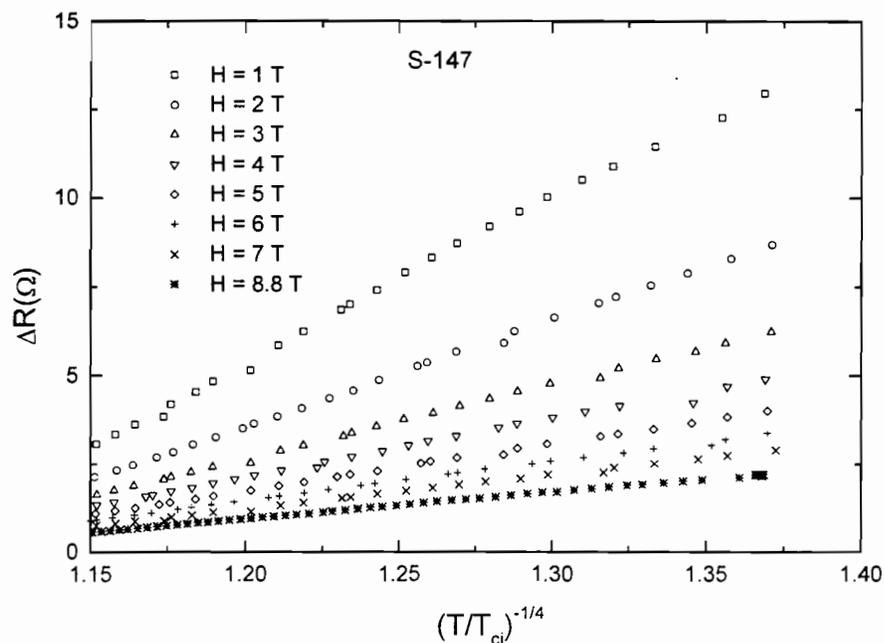


Figura 4.3.11: ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-147, em $T/T_{ci} < 0.6$.

Além disso, observou-se também que este intervalo de temperatura aumenta monotonicamente com o aumento do campo magnético aplicado de tal forma que, para $H = 17\text{ T}$, ΔT estende-se até a menor temperatura atingida nos experimentos. Este comportamento pode ser confirmado através dos resultados mostrados na figura 4.3.12. Nessa figura são mostradas as curvas de ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-147, em campos magnéticos no intervalo $9 < H < 17\text{ T}$. A partir dessa figura é nítido que existe uma mudança de comportamento de ΔR em temperaturas abaixo de $T/T_{ci} \sim 0.6$. Observou-se também que em $T/T_{ci} < 0.6$, ou $(T/T_{ci})^{-1/4} > 1.1$, existe um intervalo de temperatura ΔT para o qual ΔR é linear com $(T/T_{ci})^{-1/4}$.

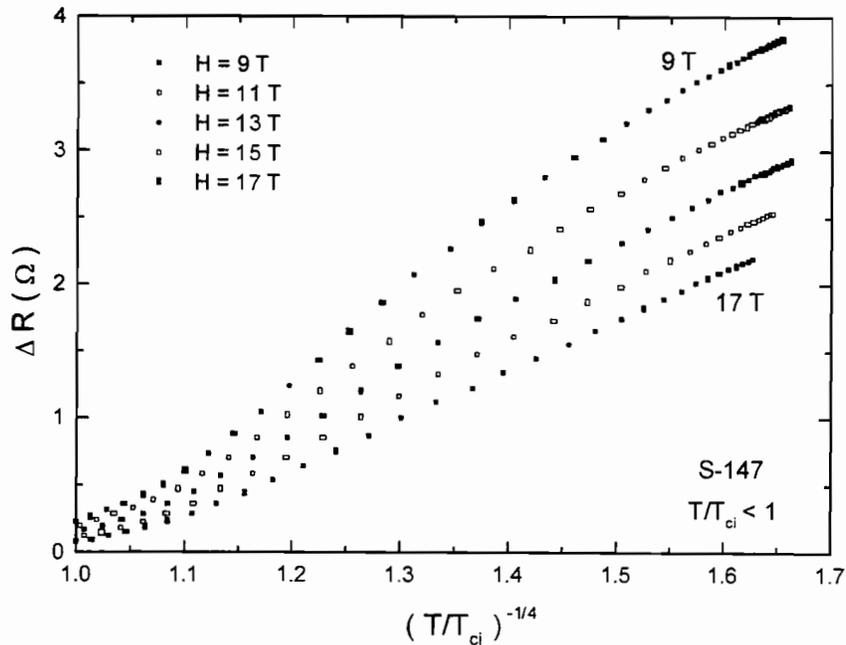


Figura 4.3.12: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-147, para campos magnéticos no intervalo $9 \leq H \leq 17$ T. Os valores de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ foram obtidos para $(T/T_{ci}) < 1$.

Nas figuras 4.3.13-15 são mostradas as curvas de ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para as demais amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, denominadas previamente de S-116, S-196 e S-245. A partir dessas figuras constatou-se um comportamento análogo ao anteriormente descrito para a amostra S-147 em todas as amostras da série. Tomando-se como exemplo os resultados de $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ observados na amostra S-116 (veja figura 4.3.13), que são representativos de todos os outros obtidos nas outras amostras, conclui-se que:

(a) existe uma mudança de comportamento de ΔR em $T/T_{ci} \sim 0.6$, mudança esta evidente através da observação dos resultados da figura 4.3.13(b);

(b) em um intervalo de temperatura ΔT abaixo de $T/T_{ci} \sim 0.6$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$. Na tabela 4.3.1 são mostrados, em função de H , os correspondentes valores de ΔT para os quais essa linearidade ocorre. A partir

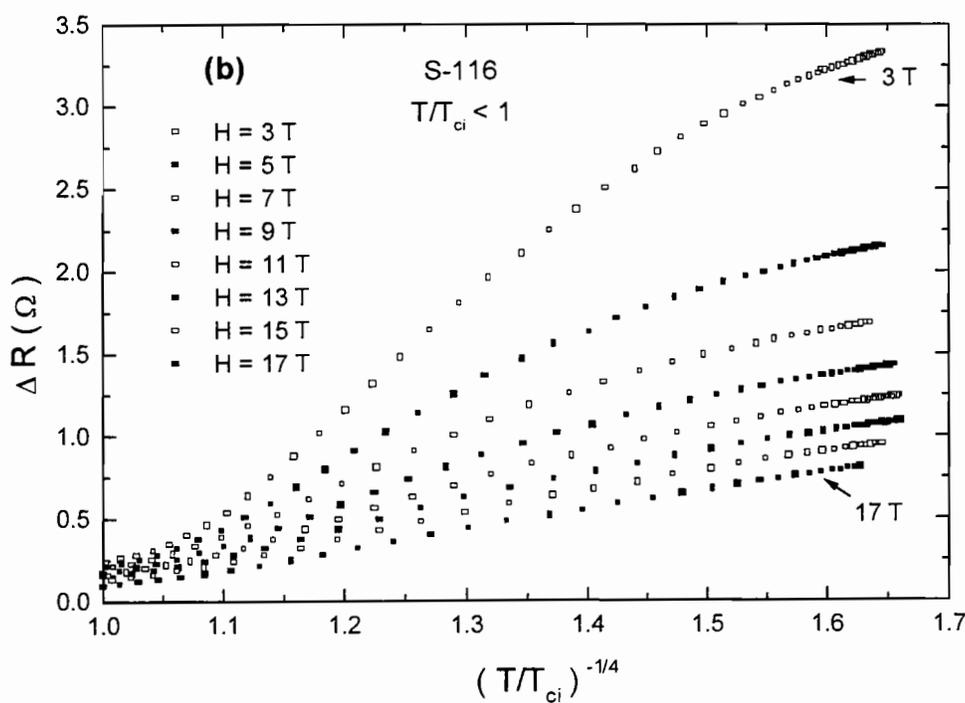
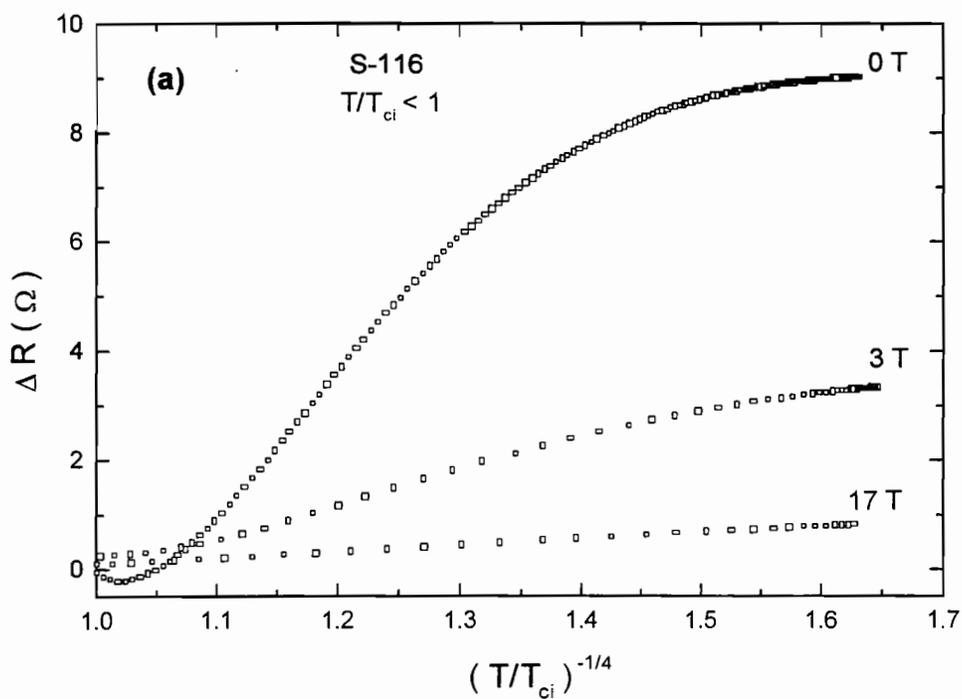


Figura 4.3.13: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-116, sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para (a) $H = 0, 3$ e 17 T e (b) $3 \leq H \leq 17$ T.

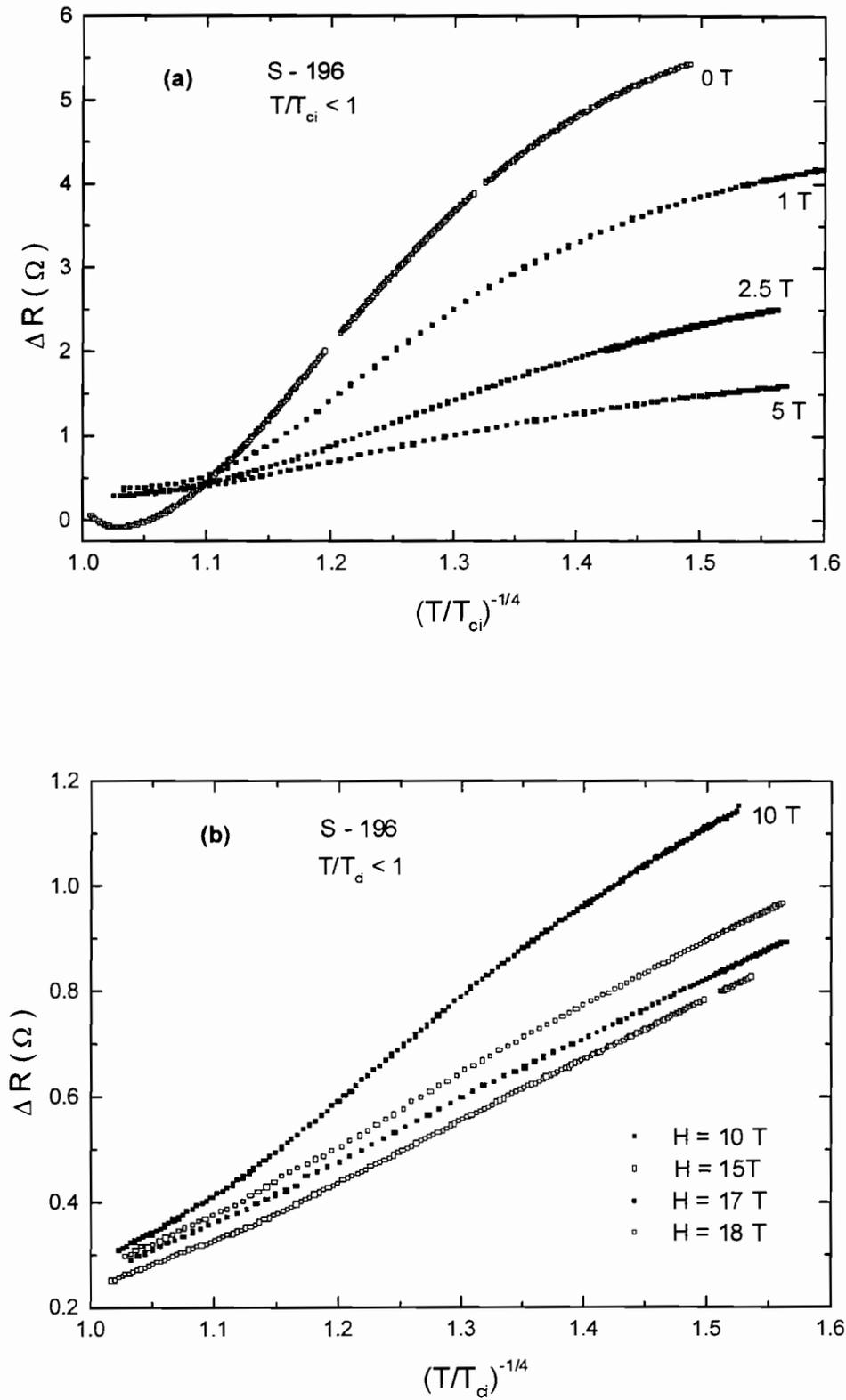


Figura 4.3.14: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-196, sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para (a) $0 \leq H \leq 5$ T e (b) $10 \leq H \leq 18$ T.

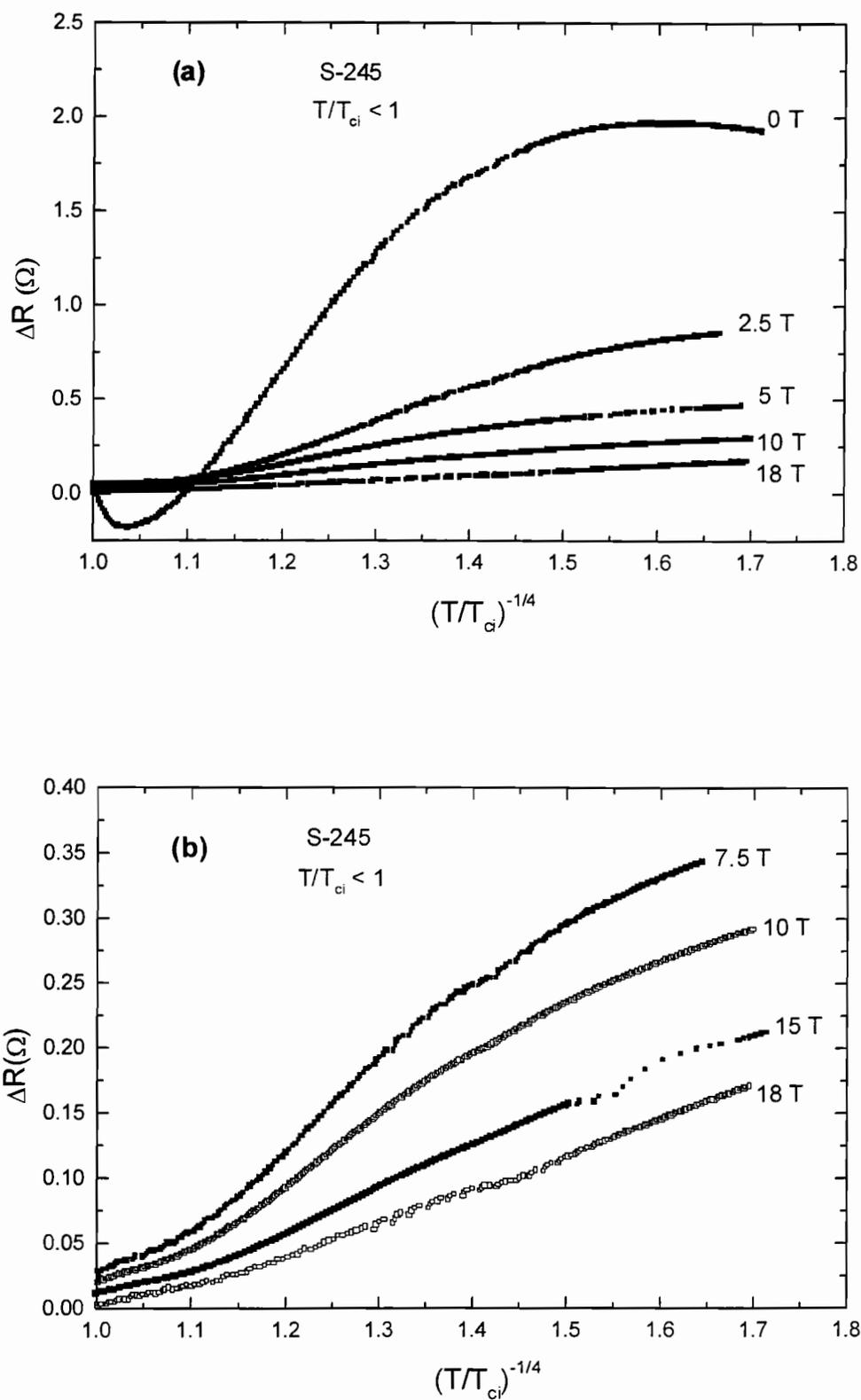


Figura 4.3.15: $\Delta R(T,H)$ em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245, sendo $(T/T_{ci}) < 1$ para (a) $0 \leq H \leq 18$ T e (b) $7.5 \leq H \leq 18$ T.

dessa tabela observou-se que ΔT estende-se a temperaturas cada vez mais baixas com o aumento do campo magnético aplicado, tal como mostrado na tabela 4.3.2 para a amostra S-147. Este comportamento pode ser observado comparando-se as curvas de ΔR versus $(T/T_{ci})^{-1/4}$, para $H = 0$ e 17 T na figura 4.3.13(a). Nas tabelas 4.3.3 e 4.3.4 são mostrados os correspondentes intervalos de temperatura ΔT para as amostras S-196 e S-245, obtidos a partir das curvas mostradas nas figuras 4.3.14 e 4.3.15.

H (T)	Intervalo de T/T_{ci}	Intervalo de temperatura (K)
0	0.35 – 0.60	6.2 – 10.5
3	0.28 – 0.63	5.0 – 11.1
5	0.30 – 0.69	5.3 – 12.0
7	0.30 – 0.69	5.2 – 12.0
9	0.34 – 0.73	5.9 – 12.8
11	0.27 – 0.64	4.7 – 11.2
13	0.28 – 0.66	4.9 – 11.6
15	0.26 – 0.66	4.5 – 11.6
17	0.14 – 0.67	2.5 – 11.6

Tabela 4.3.1: Intervalos de temperatura para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-116.

H (T)	Intervalo de T/T_{ci}	Intervalo de temperatura (K)
0	0.35 – 0.61	6.2 – 10.7
3	0.27 – 0.67	4.7 – 11.8
5	0.26 – 0.69	4.5 – 12.0
7	0.23 – 0.63	4.0 – 11.1
9	0.24 – 0.73	4.2 – 12.8
11	0.21 – 0.54	3.7 – 9.4
13	0.17 – 0.66	3.0 – 11.6
15	0.14 – 0.66	2.4 – 11.6
17	0.14 – 0.72	2.5 – 12.6

Tabela 4.3.2: Intervalos de temperatura para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-147.

H (T)	Intervalo de T/T_{ci}	Intervalo de temperatura (K)
0	0.37 – 0.64	6.7 – 11.6
1	0.31 – 0.55	5.6 – 10.1
2.5	0.27 – 0.60	4.8 – 10.9
5	0.28 – 0.70	5.0 – 12.5
10	0.28 – 0.66	5.0 – 11.8
15	0.17 – 0.67	3.0 – 12.1
17	0.17 – 0.71	3.0 – 12.8
18	0.18 – 0.68	3.2 – 12.2

Tabela 4.3.3: Intervalos de temperatura para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-196.

H (T)	Intervalo de T/T_{ci}	Intervalo de temperatura (K)
0	0.35 – 0.62	6.2 – 11.0
1	0.31 – 0.49	5.5 – 8.7
2.5	0.22 – 0.53	3.9 – 9.4
5	0.28 – 0.60	5.0 – 10.7
7.5	0.27 – 0.60	4.8 – 10.7
10	0.27 – 0.63	4.8 – 11.2
15	0.14 – 0.62	2.5 – 11.0
18	0.12 – 0.5	2.1 – 8.9

Tabela 4.3.4: Intervalos de temperatura para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, para a amostra S-245.

A combinação dos resultados obtidos de $R(T,H)$ para o composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$, $0 < H < 18$ T, permite concluir que o aumento abrupto de $R(T)$ abaixo de T_{ci} , quantificado em $\Delta R(T)$, apresenta dois comportamentos distintos em função da temperatura:

(a) em temperaturas $0.6 < (T/T_{ci}) < 1$, ou seja, entre ≈ 11 e ≈ 17.5 K, $\Delta R(T) \propto (T/T_{ci})^{-4}$ e esta dependência é bem descrita pela aplicação da TSFDF [3,16,17]. Isto quer dizer que a formação dos pares de Cooper abaixo da

temperatura $T = T_{ci}$ resulta em uma diminuição da densidade de elétrons normais no sistema, acarretando um aumento abrupto da resistência do material em temperaturas $T < T_{ci}$. A aplicação de campos magnéticos intensos tende a suprimir o *gap* supercondutor, o que aumenta a concentração de elétrons normais do sistema, resultado este espelhado na magneto-resistência negativa observada nas curvas de $R(T,H)$;

(b) em temperaturas $(T/T_{ci}) < 0.6$, ou seja, em $T < 11$ K, $\Delta R(T) \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, comportamento que será discutido posteriormente.

Curvas de $R(H)$ para valores fixos de T

Com o objetivo de ampliar o conhecimento acerca dos comportamentos observados nestes supercondutores granulares que mostram supercondutividade local, foram feitas medidas de resistência elétrica em função do campo magnético aplicado $R(H)$, até 18 T, para temperaturas fixas variando entre 2 e 25 K. Algumas dessas curvas são mostradas nas figuras 4.3.16 e 4.3.17 para as amostras S-116 e S-147, respectivamente. A partir da figura 4.3.16, seguem abaixo as principais características observadas nas curvas de $R(H)$ para a amostra S-116:

(a) em temperaturas $T < 11$ K, $R(H)$ decresce monotonicamente com o aumento de H até o mais alto campo magnético atingido, $H = 18$ T. Este decréscimo na magnitude de $R(H)$ é mais acentuado em campos magnéticos de até 5 T, como evidenciado na figura 4.3.16(a). Entretanto, a medida que a temperatura T se aproxima de 11 K, para $0 < H < 5$ T, a variação da resistência elétrica torna-se cada vez menor, como mostrado na figura 4.3.16(b);

(b) em temperaturas $T \sim 13$ K, ou mais precisamente em $T/T_{ci} \sim 0.7$, observa-se uma nítida mudança na curvatura de $R(H)$ no limite de baixos campos magnéticos, como pode ser melhor observado na figura 4.3.16(c). Esta

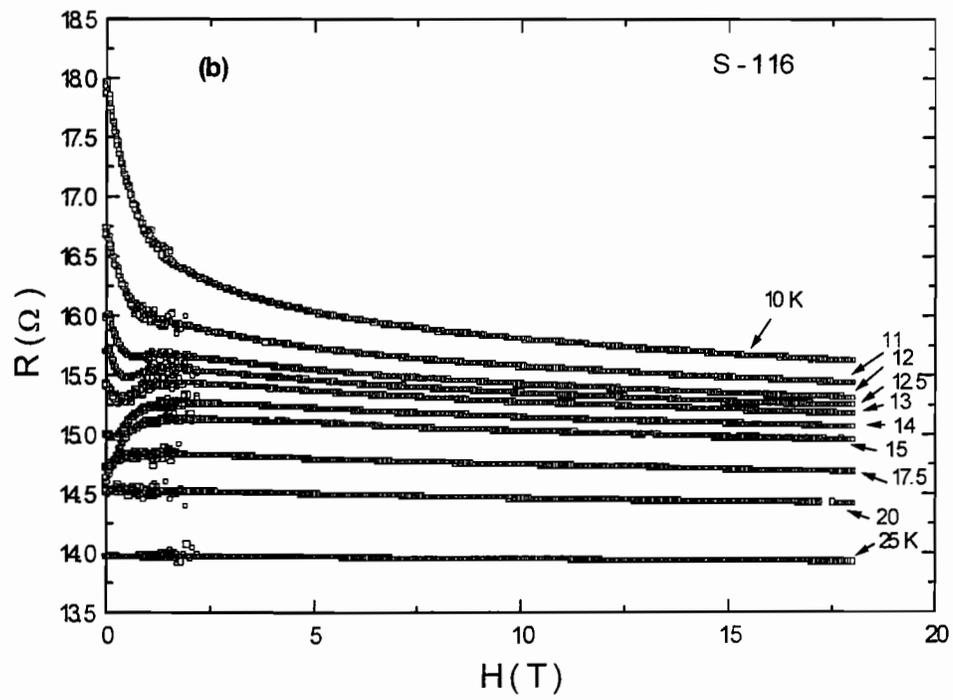
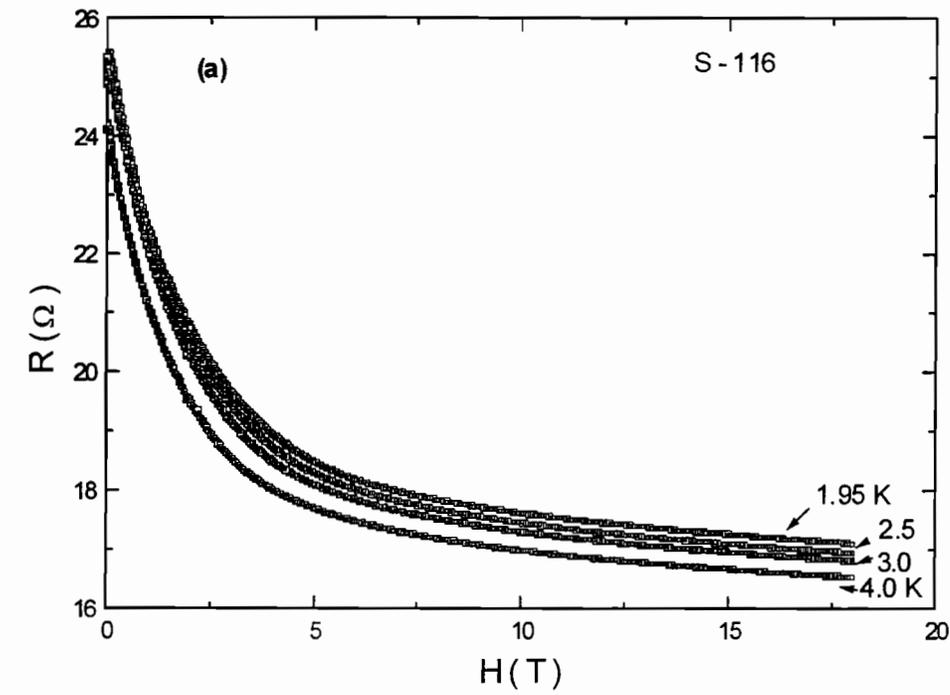


Figura 4.3.16.: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-116 para (a) $T = 1.96, 2.5, 3$ e 4 K e (b) $10 \leq T \leq 25$ K.

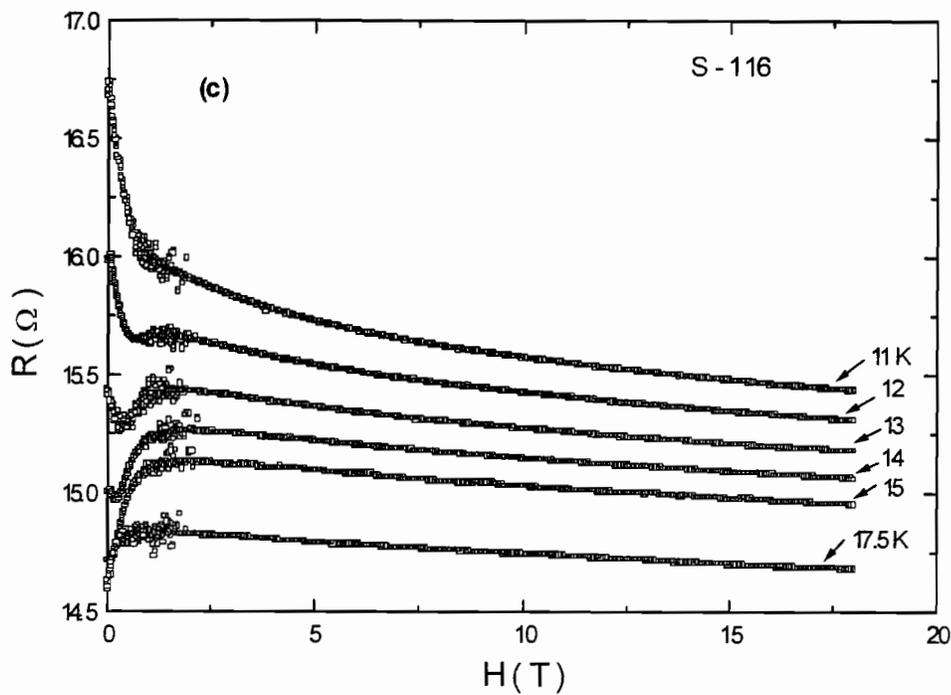


Figura 4.3.16.c: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-116 para $11 \leq T \leq 17.5$ K.

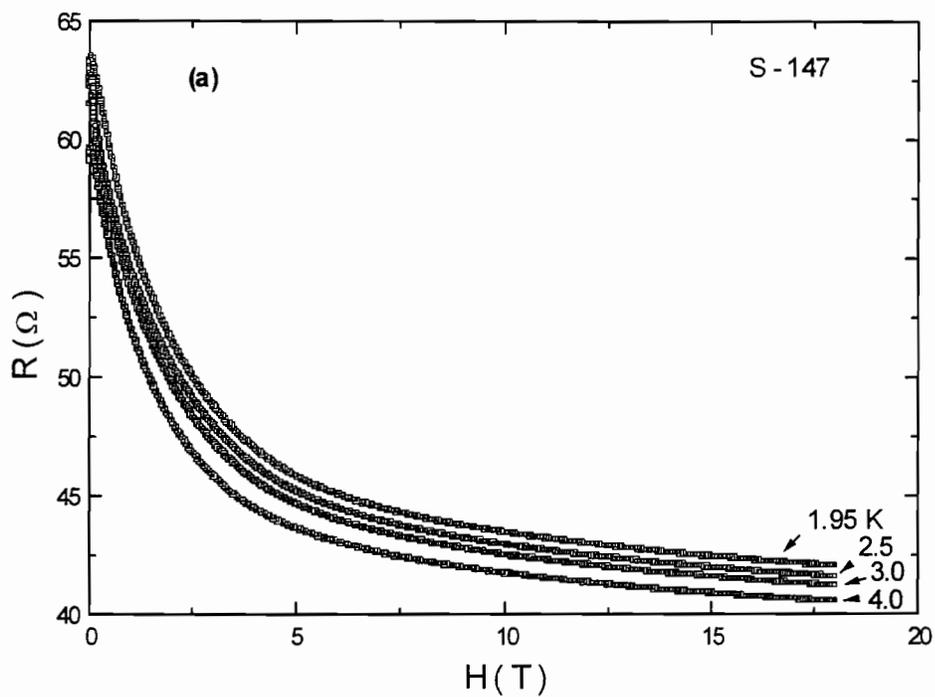


Figura 4.3.17.a: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-147 para $1.95 \leq T \leq 4$ K.

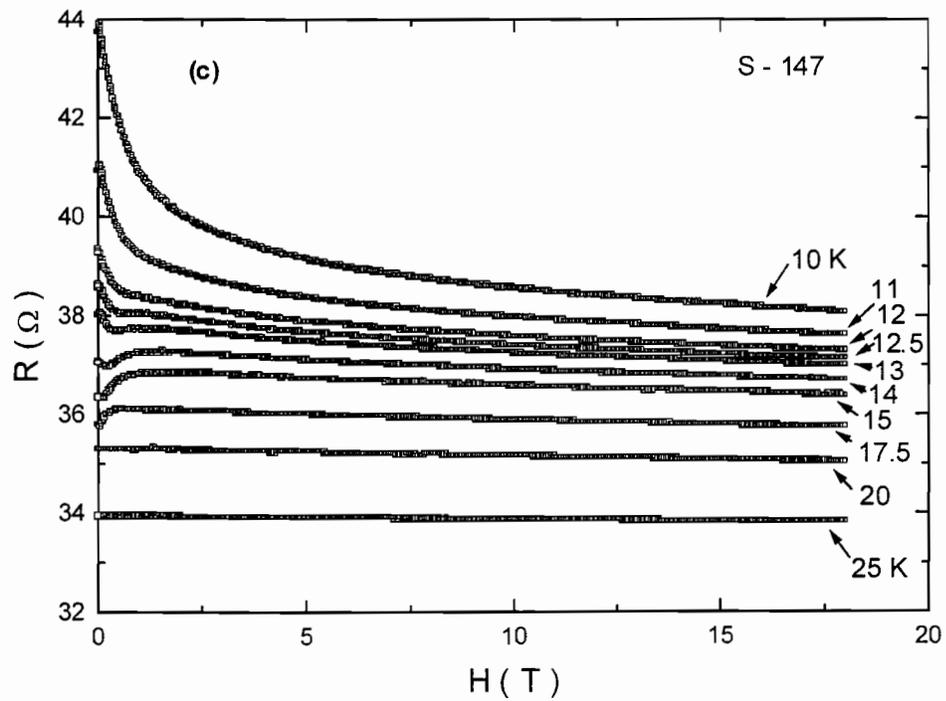
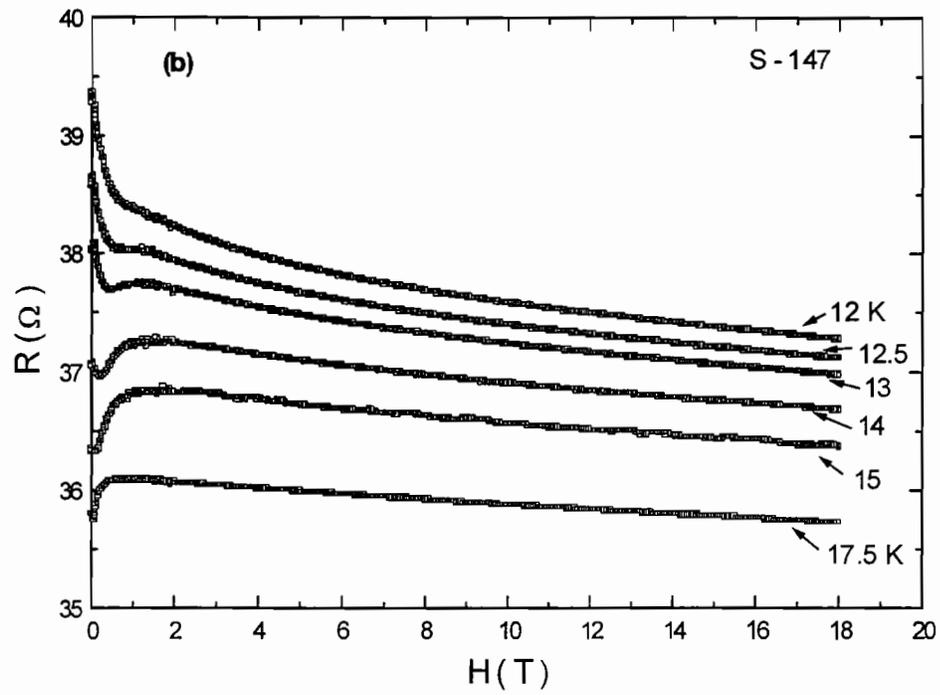


Figura 4.3.17: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-147 para (b) $12 \leq I_{ex} \leq 17.5$ K e (c) $10 \leq I_{ex} \leq 25$ K.

mudança de comportamento de $R(H)$ deve estar relacionada à mudança de comportamento da curva de $\Delta R(T)$ em $T/T_{ci} \sim 0.6$, discutida anteriormente;

(c) em temperaturas $T > 20$ K, ou mais apropriadamente em $T > T_{ci}$, as curvas de $R(H)$ são praticamente independentes do campo magnético aplicado. Isto é um indicativo de que realmente as propriedades supercondutoras, que são sensíveis ao campo magnético aplicado, desenvolvem-se em temperaturas $T \approx T_{ci}$. Sendo assim, parece razoável afirmar que a mudança de comportamento em temperaturas $T < T_{ci}$ de $R(H)$ e $\Delta R(T,H)$, discutidos anteriormente, é devido ao desenvolvimento de propriedades supercondutoras em regiões isoladas do material.

As características acima descritas para as curvas de $R(H)$ da amostra S-116 também foram verificadas para a amostra S-147. Um ponto importante a ser considerado quanto às curvas de $R(T,H)$ do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, é a mudança sistemática de comportamento que ocorre em $T/T_{ci} \sim 0.6$, para campos magnéticos aplicados desde 0 até 18 T. A partir da figura 4.3.3 (veja página 94) é possível obter alguma informação sobre o que rege o comportamento de ΔR no limite de baixos campos magnéticos. Nessa figura é nítido que a magnitude da resistência elétrica $R(T)$ é dependente da corrente de excitação na faixa de temperatura $T < 11$ K, ou seja $(T/T_{ci}) < 0.6$. Esta dependência de $R(T,H = 0 \text{ T})$ com o aumento da corrente de excitação pode ser atribuída ao desenvolvimento de acoplamento do tipo Josephson entre as ilhas supercondutoras do composto, ainda que não seja possível atingir o estado de resistência elétrica zero. Portanto, o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras parece ser importante para o comportamento de ΔR no limite de baixos campos magnéticos. Todavia, não é plausível que o acoplamento Josephson entre as ilhas supercondutoras presentes no composto determine o comportamento de ΔR no limite de altos campos magnéticos aplicados. Nesse limite, deve-se levar

em conta que as propriedades intrínsecas dessas ilhas interfiram na resistência elétrica do material e em particular na magnitude de ΔR .

Uma inspeção cuidadosa da literatura acerca desses materiais revela que algumas propriedades apresentam mudança de comportamento exatamente em temperaturas $(T/T_{ci}) \approx 0.6$. Uma delas é a chamada Linha de Irreversibilidade (LI) obtida através da dependência da temperatura em função de H de medidas de magnetização $M(T,H)$ para os supercondutores dopados com elétrons [11,20,21]. Esta linha, definida no diagrama de fase $H \times T$, é usualmente escrita como $H \propto (1 - T/T_c)^\beta$ [11,20,21]. Independentemente da origem de LI, a maioria desses supercondutores apresenta uma mudança de inclinação nessa linha, com β variando de ~ 1.5 para um valor mais alto [11,20]. Esta mudança de inclinação de LI está relacionada a diferentes regimes de aprisionamento da rede de vórtices nesses materiais em temperaturas acima e abaixo de $(T/T_{ci}) \approx 0.6$. O que deve ser frisado é que essa mudança de inclinação da LI ocorre justamente em $(T/T_{ci}) \sim 0.6$. Portanto, a mudança de comportamento observada em $\Delta R(T,H)$ em $(T/T_{ci}) \sim 0.6$ pode estar relacionada a mudanças no regime de dissipação associado com a rede de fluxo desses supercondutores granulares e não necessariamente com a supressão do *gap* supercondutor pela aplicação de altos campos magnéticos.

Acerca desse ponto alguns aspectos devem ser elaborados. Alterações do regime de dissipação da rede de fluxo, em geral, não resultam em supressão ou aumento da amplitude do *gap* supercondutor. Mesmo assim, a aplicação da TSFDF parece ficar restrita ao intervalo de temperatura $T > 11$ K. Por outro lado, é possível que estes materiais experimentem uma mudança de dimensionalidade do sistema em temperaturas da ordem de 11 K. Nesse contexto, uma característica comum de todos os HTSC é o pequeno comprimento de coerência $\xi \perp ab$, o qual, em baixas temperaturas, pode tornar-se menor que o espaçamento d entre as camadas supercondutoras de CuO_2 [22]

presentes na estrutura cristalina T' . Espera-se que quando $\xi \perp ab$ seja suficientemente menor que d , o sistema comporte-se com características essencialmente bidimensionais. Espera-se também que esta mudança de dimensionalidade ocorra em uma temperatura denominada de temperatura de *crossover* T_{co} , a qual é dada pela relação [22]:

$$\frac{T_{co}}{T_{ci}} = 1 - \frac{2}{\gamma^2} \left[\frac{\xi(0) // ab}{d} \right]^2, \quad (4.3.1)$$

onde γ é o fator de anisotropia do sistema. Usando-se $\gamma = 21$, $\xi(0) // ab = 70.2 \text{ \AA}$ e $d = 6 \text{ \AA}$ [18] na equação 4.3.1, para o composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ obtém-se $T_{co}/T_{ci} \approx 0.4$. Como dito anteriormente, em amostras policristalinas dos supercondutores do tipo n existe uma larga distribuição de valores de T_{ci} [14,15] e como não existe na literatura, um consenso quanto ao fator de anisotropia desses compostos [18,23,24], o valor estimado de $T_{co}/T_{ci} \approx 0.4$, parece ser razoável. Isto quer dizer que não pode ser descartada a hipótese de que em $T/T_{ci} \sim 0.6$ ocorra uma mudança de dimensionalidade do sistema.

Ainda, segundo os autores da referência 22, para $\xi \perp ab < d$, a densidade de super-elétrons n_s é modulada ao longo da direção cristalográfica c desses óxidos supercondutores anisotrópicos. Neste caso, a estrutura de vórtices não é bem descrita pela teoria anisotrópica de Ginzburg-Landau, a qual não assume uma variação espacial de n_s ao longo de uma linha de vórtice [22]. Para as amostras investigadas do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, o comportamento $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$ não foi verificado em $T/T_{ci} < 0.6$. Entretanto, essa dependência da temperatura de ΔR é prevista a partir da TSFDF [3, 16,17], utilizando-se resultados da Teoria de Ginzburg-Landau, equações 1.2.1 a 1.2.7 da introdução. Portanto, a mudança de comportamento das curvas de ΔR em $T/T_{ci} \sim 0.6$ pode

estar relacionada a uma mudança de dimensionalidade do sistema e que, segundo a referência 22, invalidaria a aplicação da TSFDF [3,16,17] para esta faixa de temperatura.

Mais evidências acerca da mudança de comportamento de $\Delta R(T,H)$ foram encontradas em uma série de medidas de $R(T,H)$ na amostra S-245, as quais serão discutidas a seguir.

Picos de dissipação da amostra S-245

Todas as curvas de magneto-resistência apresentadas anteriormente na figura 4.3.9, foram obtidas para a mesma configuração de campo magnético e corrente de excitação, ou seja, $H \perp I_{ex}$. Porém, em uma série de medidas de $R(T,H)$ para a amostra S-245, aparentemente obtidas nas mesmas condições, foram observados picos de dissipação nas curvas de magneto-resistência. Em vista disso, foram realizadas diversas medidas adicionais de $R(T,H)$ nessa amostra, variando-se o ângulo entre H e I_{ex} , porém o passo angular de $\sim 5^\circ$ e problemas no alinhamento da amostra, resultaram no fato de que os picos de dissipação não foram mais observados. Algumas dessas curvas de $R(T,H)$ foram mostradas na figura 4.3.9 (ver página 101) e não revelam nenhuma evidência de dissipação como será mostrado e discutido a seguir. Entretanto, antes dessa apresentação parece prudente afirmar que uma análise mais apurada desses picos de dissipação mostrou que eles realmente refletem o comportamento do material para uma dada orientação específica entre H e os planos ab da estrutura cristalina.

Curvas de $R(T)$ para valores fixos de H

Essa seção tem início com a apresentação dos resultados de $R(T)$ para valores fixos de campo magnético H no intervalo $0 \leq H \leq 18$ T, obtidos na amostra denominada de S-245 e mostrados na figura 4.3.18.

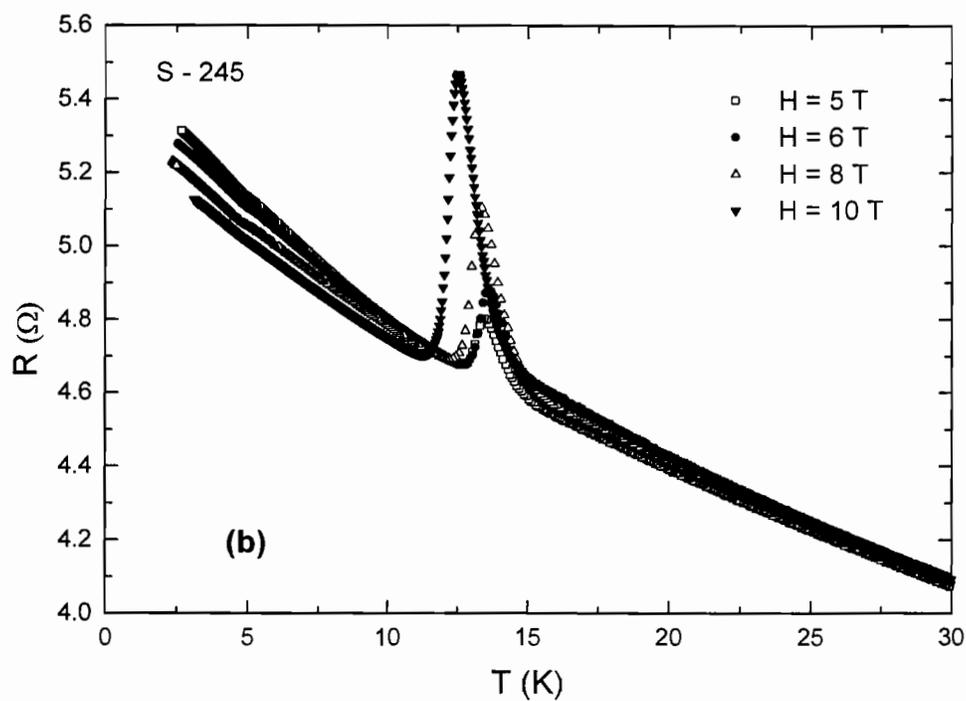
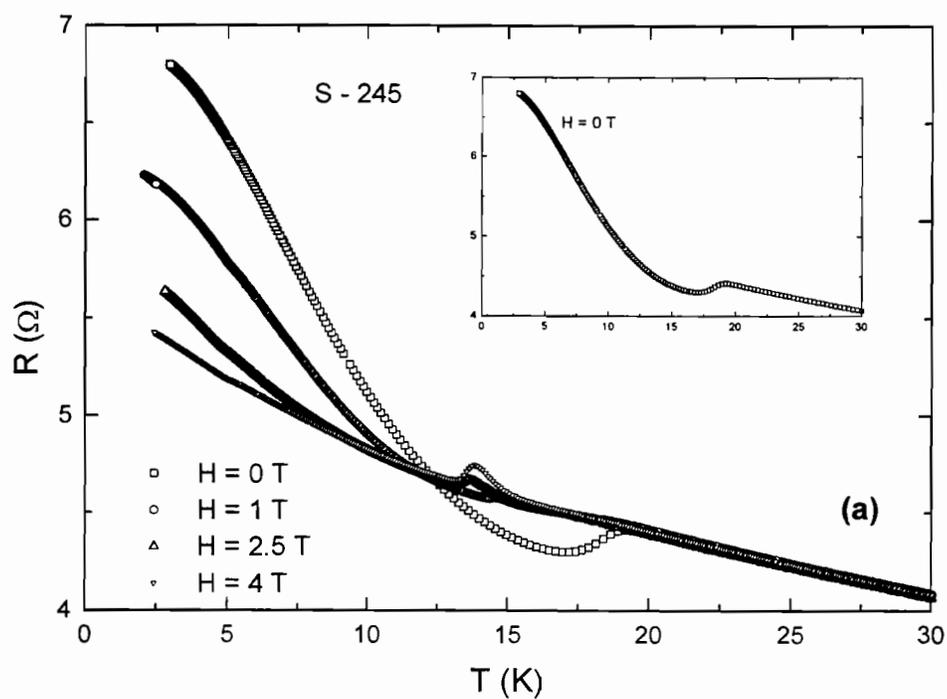


Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para valores fixos de campo magnético nos intervalos (a) $0 < H < 4$ T e (b) $5 < H < 10$ T.

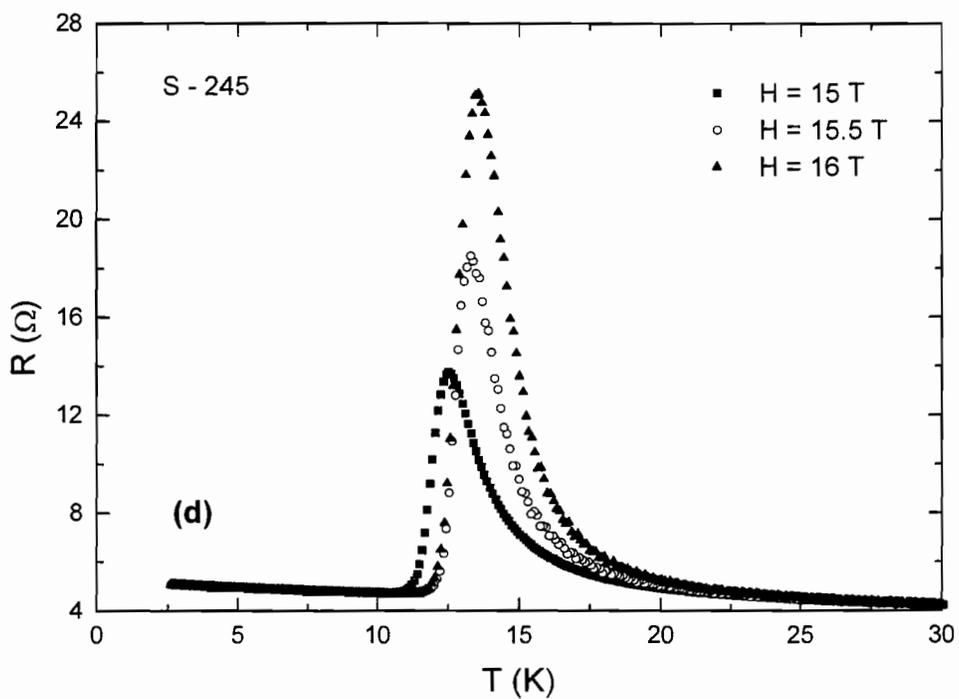
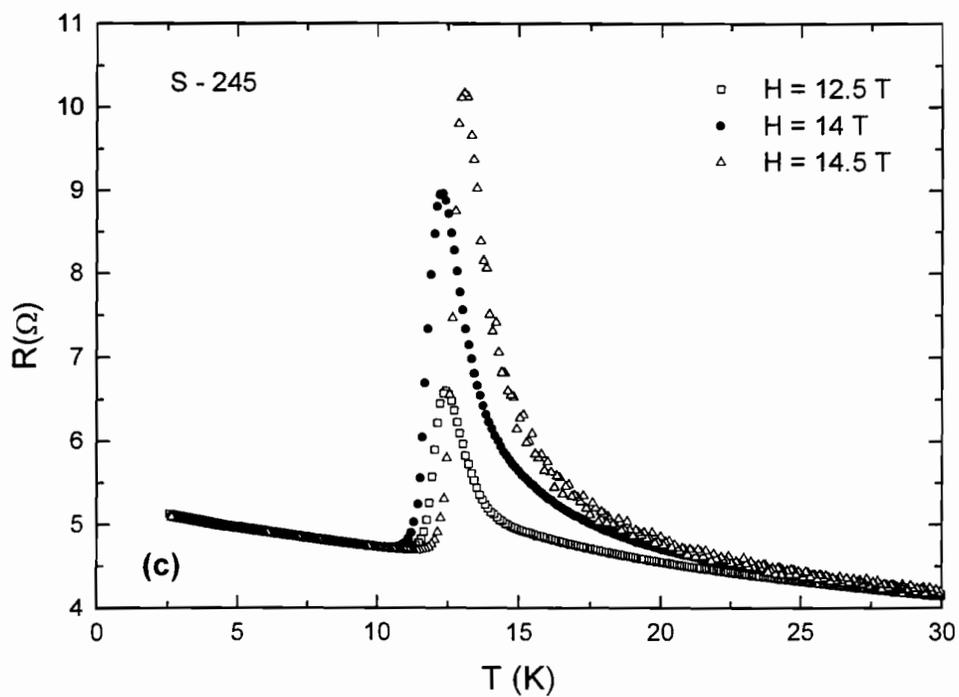


Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para (c) $H = 12.5, 14$ e 14.5 T e (d) $H = 15, 15.5$ e 16 T.

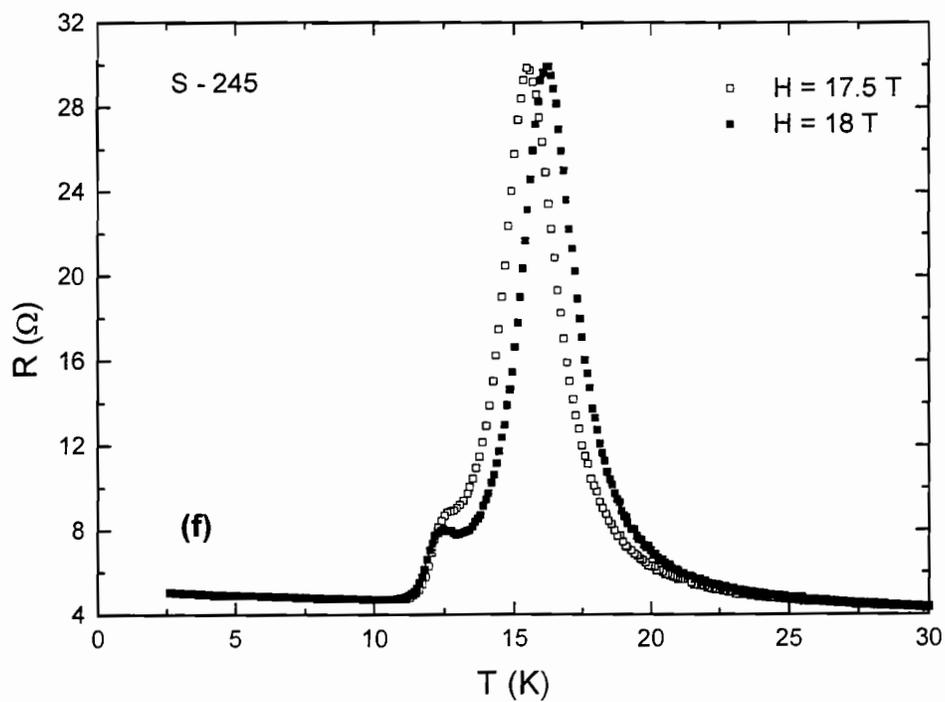
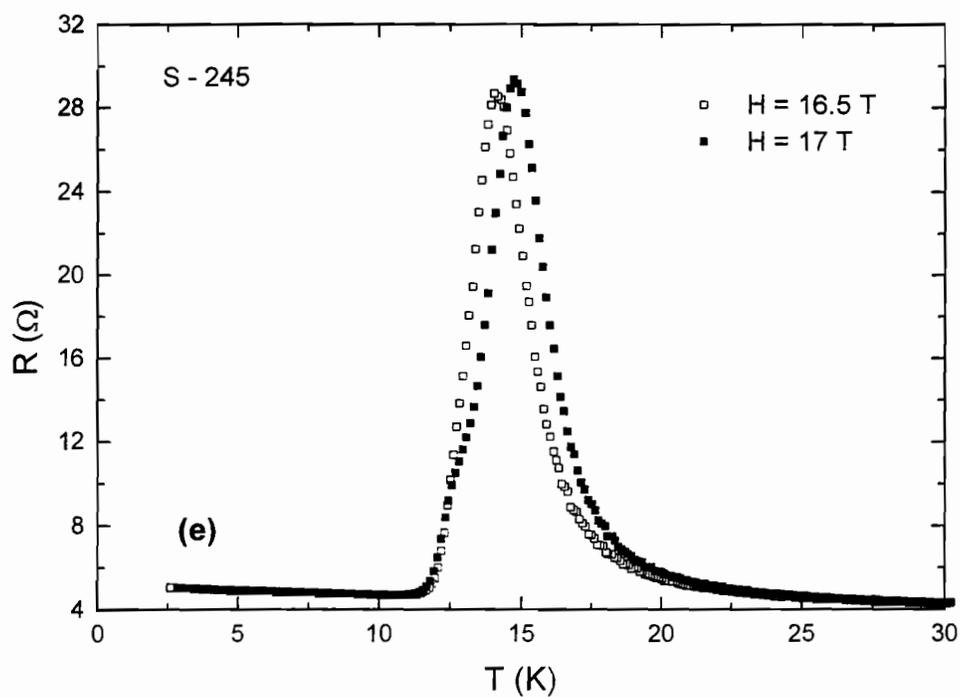


Figura 4.3.18: $R(T)$ para a amostra S-245 para (e) $H = 16.5$ e 17 T e (f) $H = 17.5$ e 18 T T.

Essas curvas de $R(T,H)$ apresentam os aqui denominados picos de dissipação com largura, intensidade e posição dependentes do campo magnético aplicado. Uma inspeção cuidadosa da figura 4.3.18 como um todo, revela a evolução do pico de dissipação com o aumento do campo magnético aplicado. Para descrever um pouco mais em detalhes essas curvas, o *inset* da figura 4.3.18(a) mostra a curva de $R(T)$ para a amostra S-245 a campo magnético nulo, revelando um comportamento definido anteriormente e denominado de quase-reentrante em $T < T_{ci} \sim 19$ K. A aplicação de um campo magnético, tal como observado e mostrado anteriormente, não altera a magnitude de $R(T)$ em $T > T_{ci}$. Porém, a aplicação de campos da ordem de $H = 1$ T já mostra-se suficiente para revelar a presença de um pico de dissipação, em $T < T_{ci}$. De uma maneira geral, observou-se que para $1 \leq H \leq 12.5$ T este pico começa a se desenvolver em temperaturas T ligeiramente inferiores a T_{ci} (veja figuras 4.3.18 (a), (b) e (c)). Neste intervalo de campo aplicado, constatou-se que o valor máximo de $R(T)$ desloca-se monotonicamente para o limite de baixas temperaturas com o aumento do campo magnético aplicado. Porém, uma inspeção cuidadosa das figuras 4.3.18 (d), (e) e (f), revela que para $H > 14$ T este máximo de $R(T)$ desloca-se para temperaturas superiores com o aumento de H . Ainda, observou-se que para $H \geq 16.5$ T, existe o aparecimento de um segundo pico de dissipação de menor intensidade que o primeiro, ocorrendo em uma temperatura fixa e nas vizinhanças de ~ 12.5 K. Para $H = 18$ T, veja figura 4.3.18 (f), a máxima variação de resistência elétrica do material atingiu valores da ordem de 25Ω para o maior pico de dissipação e de 3.5Ω para este segundo pico. As principais características dos picos de dissipação obtidas a partir dessa figura estão resumidas na tabela 4.3.5, que mostra as temperaturas de início, fim e máximo dos picos de dissipação referentes às curvas de $R(T,H)$ na amostra S-245. As temperaturas referentes ao início, fim e posição do máximo do pico de dissipação foram definidas de acordo com o esquema mostrado na figura

4.3.19. Acerca dessas definições, parece pertinente esclarecer que a maior incerteza ocorreu na determinação da temperatura para a qual se dá o início do pico, principalmente nas curvas de altos campos magnéticos onde o pico se alarga muito.

H(T)	Início T(K)	Fim T(K)	Fim T/T_{ci}	Máximo T(K)
0	-	-	-	-
1	15.2	14.4	0.8	14.6
2.5	14.7	13.2	0.7	13.6
4	15.6	13.2	0.7	13.8
5	15	12.5	0.7	13.4
6	15.7	12.6	0.7	13.5
8	15.4	12.1	0.6	13.3
10	15.0	11.0	0.6	12.5
12.5	18.3	10.5	0.6	12.4
14	21.9	10.4	0.5	12.3
14.5	25	11.4	0.6	13.1
15	22.6	10.6	0.6	12.5
15.5	22.4	11.5	0.6	13.3
16.0	26.9	11.5	0.6	13.5
16.5	27.4	11.4	0.6	14.1
17.0	24.3	11.0	0.6	14.7
17.5	26.1	11.0	0.6	15.4
18.0	28.0	11.0	0.6	16.2

Tabela 4.3.5: Características dos picos de dissipação da amostra S-245, obtidas a partir da figura 4.3.18. As temperaturas referentes ao início, fim e posição do máximo do pico de dissipação são definidas de acordo com a figura 4.3.19.

Ainda a partir da figura 4.3.18, observou-se uma saturação da intensidade de dissipação a medida que o máximo campo aplicado de 18 T é atingido. Observou-se também que os picos de dissipação são claramente assimétricos em relação a T_{\max} , e que, em $T_{\text{fim}} < T < T_{\max}$, a queda da resistência elétrica é

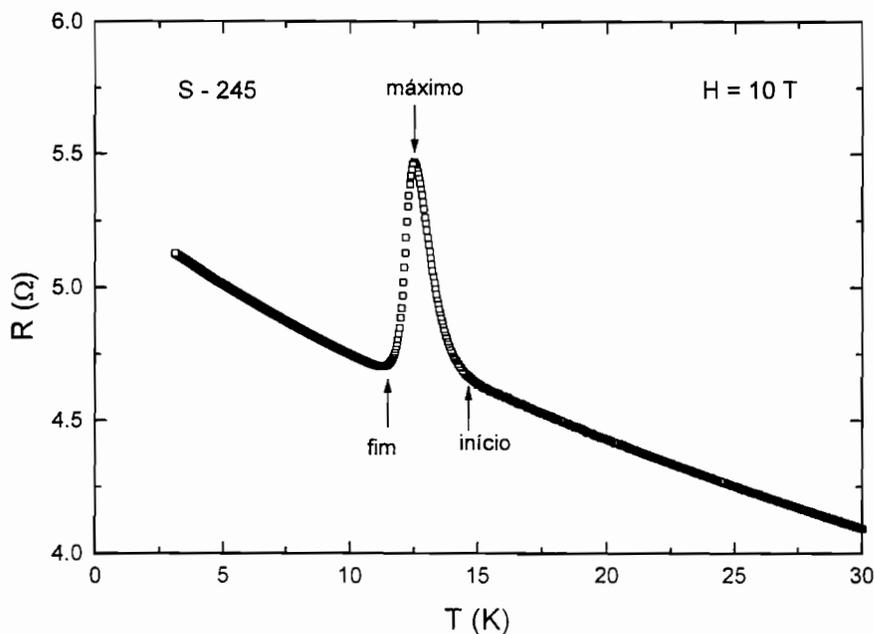


Figura 4.3.19: $R(T)$ para a amostra S-245, para $H = 10$ T, ilustrando a nomenclatura usada na tabela 4.3.5, com relação aos picos de dissipação.

abrupta. Este comportamento pode ser melhor observado a partir da figura 4.3.20, onde são mostradas as curvas de $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a amostra S-245. A partir dessa figura observa-se que há pelo menos dois regimes distintos do comportamento de $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para os diversos campos magnéticos aplicados. O primeiro deles é aquele que mostra valores positivos de $R(T,H) - R(T,H = 0)$, ocorrendo em temperaturas superiores a $T \sim 11$ K. Nesse intervalo de temperatura observa-se a maior variação positiva (ou aumento) de $R(T)$ com o aumento do campo magnético aplicado. O outro comportamento, nítido das curvas mostradas, revela que a magnitude de $R(T,H) - R(T,H = 0)$ assume valores negativos em temperaturas menores que $T \sim 11$ K ou $T/T_{ci} \sim 0.6$ como observado para as demais amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$.

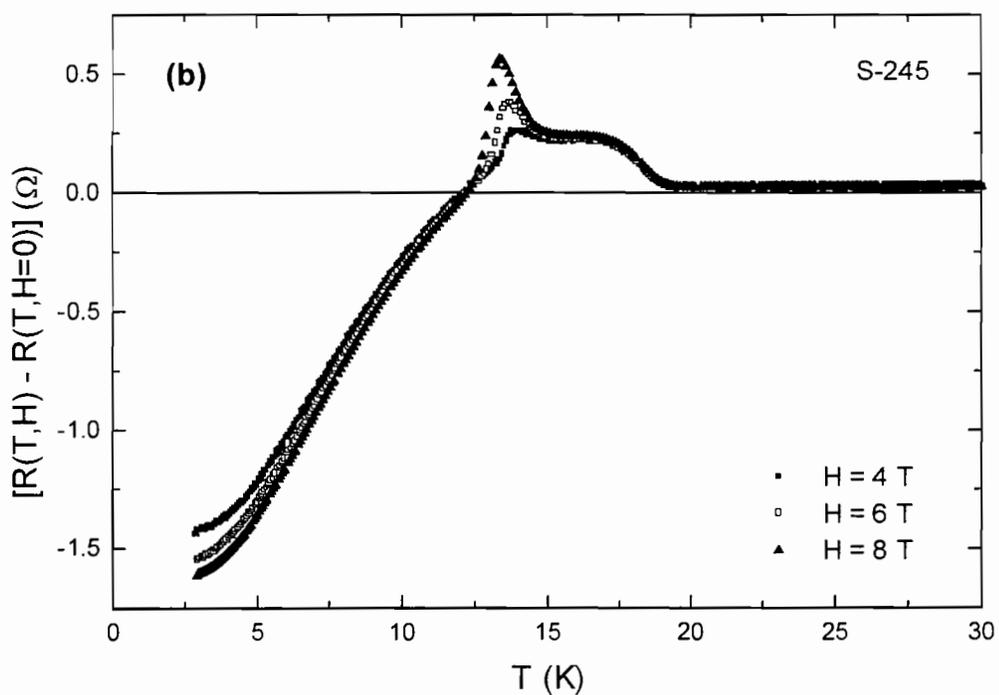
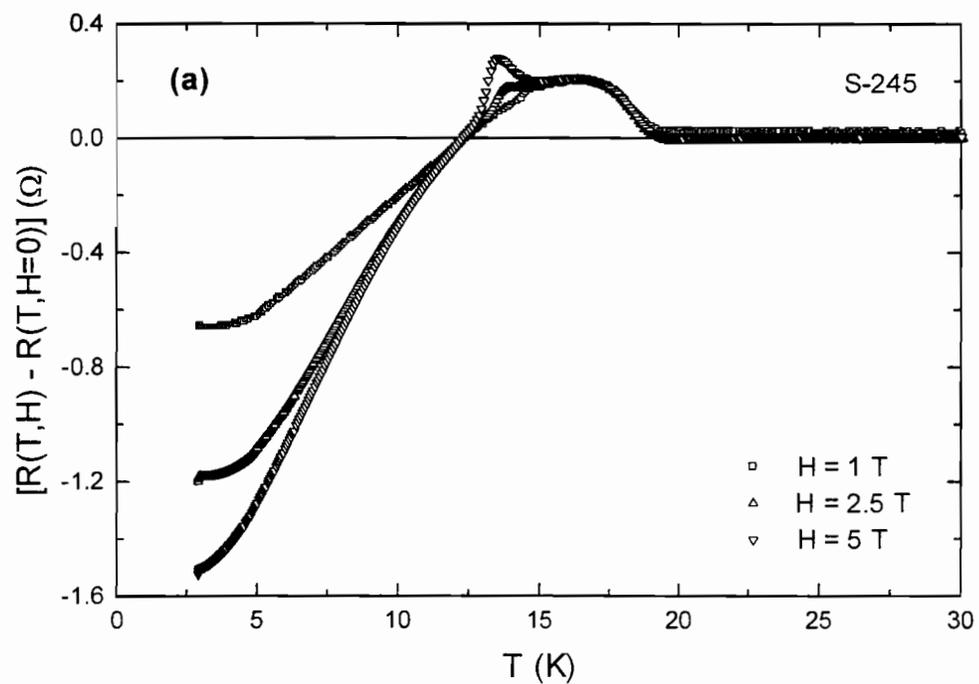


Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a amostra S-245 para (a) $H = 1, 2.5$ e 5 T e (b) $H = 4, 6$ e 8 T.

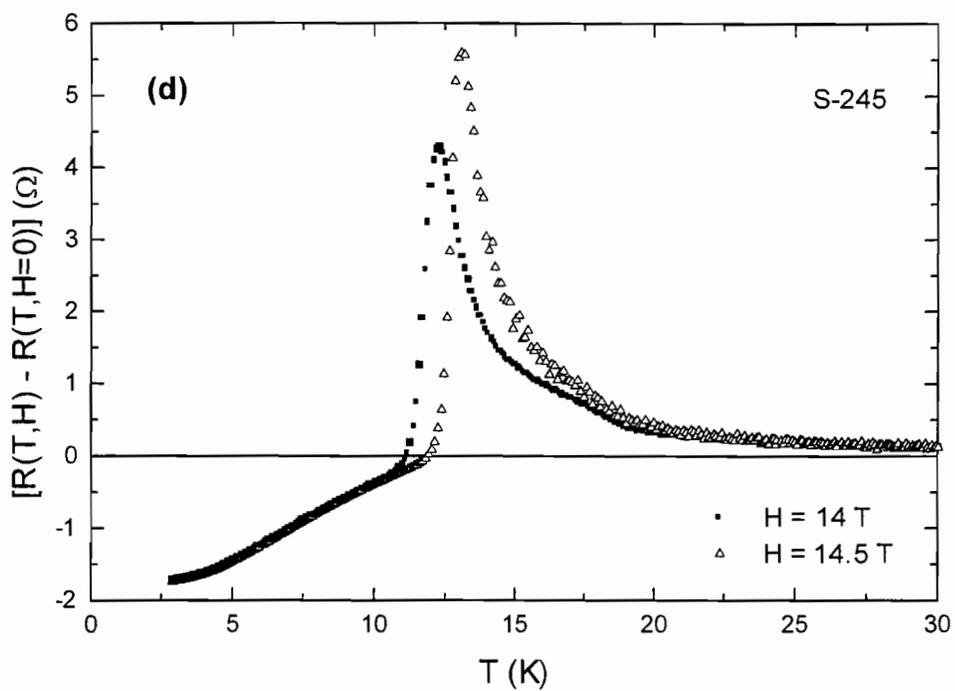
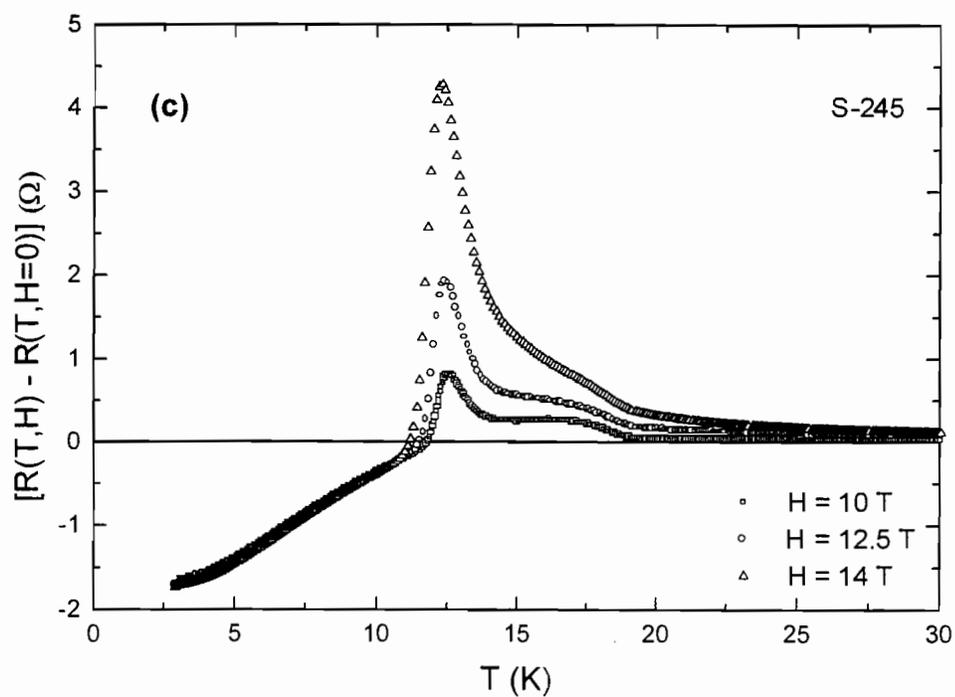


Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a amostra S-245 para (c) $H = 10, 12.5$ e 14 T e (d) $H = 14$ e 14.5 T.

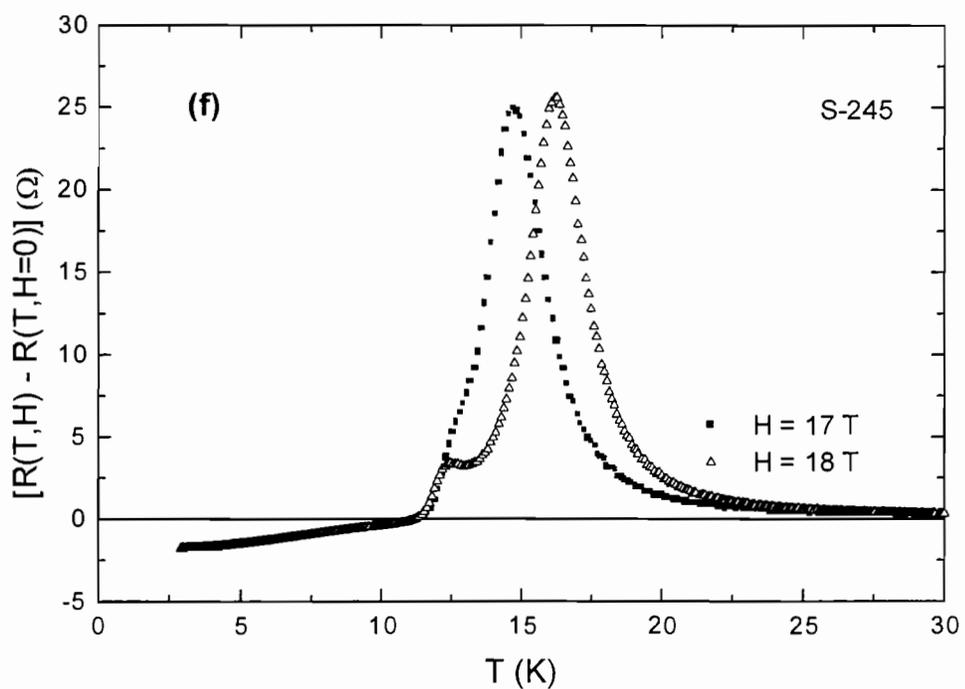
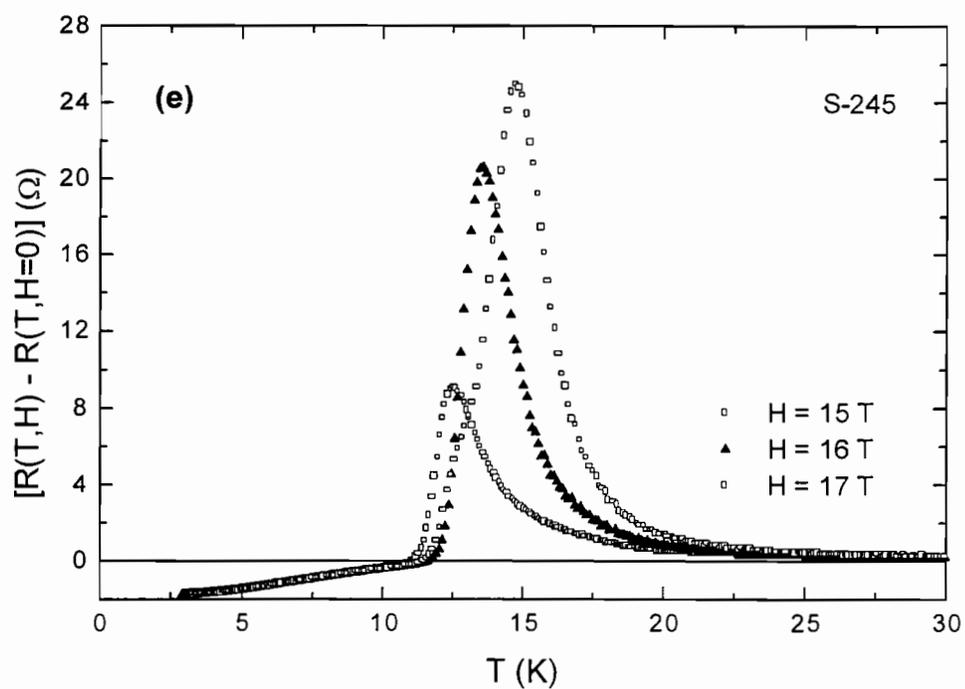


Figura 4.3.20: $R(T,H) - R(T,H = 0)$ em função da temperatura para a amostra S-245 para (e) $H = 15, 16$ e 17 T e (f) $H = 17$ e 18 T.

Curvas de $R(H)$ para valores fixos de T

Dando continuidade à investigação dos picos de dissipação da amostra S-245, na figura 4.3.21 são apresentadas as curvas de $R(H)$ para essa mesma amostra, obtidas em valores fixos de temperatura e no intervalo $3 \leq T \leq 50$ K. Seguem abaixo as principais características observadas nessas curvas de $R(H)$:

(a) a magneto-resistência é essencialmente negativa em curvas de $R(H)$ tomadas em temperaturas $T < 10$ K e revelam um decréscimo acentuado de $R(H)$ para $H < 5$ T (ver figura 4.3.21(a), página 131);

(b) em temperaturas próximas a $T = 11$ K, a magneto-resistência do sistema começa a aumentar significativamente para campos magnéticos aplicados da ordem de 18 T (ver figura 4.3.21(b));

(c) em temperaturas $T > 11$ K a magneto-resistência do sistema começa a aumentar em menores campos magnéticos, tornando claro o desenvolvimento de um pico de dissipação (ver figuras 4.3.21(b-d));

(d) em temperaturas próximas de $T \approx 16$ K ocorre a máxima variação da magneto-resistência do sistema, a qual atinge valores da ordem de 25Ω para $H \sim 18$ T (ver figura 4.3.21(e)). Parece importante salientar que isso ocorre em uma temperatura $T < T_{ci} \sim 19$ K;

(e) para $H > 15$ T e $T > 16$ K, a magneto-resistência do sistema começa a diminuir sensivelmente com o aumento da temperatura, sendo que em $T > 25$ K ela atinge valores muito pequenos, sendo essencialmente nula (ver figura 4.3.21(e-f));

(e) para alguns valores de temperatura, $T = 5, 10, 11, 12, 12.5, 13$ e 13.5 K, as curvas de $R(H)$ mostradas na figura 4.3.21 foram tomadas nos sentidos crescente e decrescente de H , não sendo constatado comportamento irreversível.

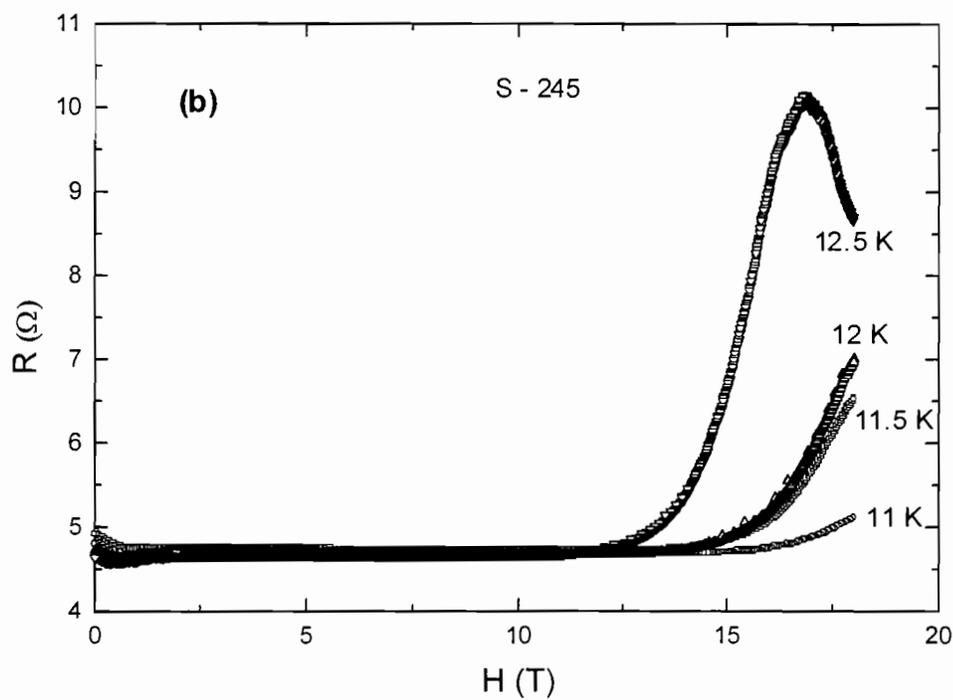
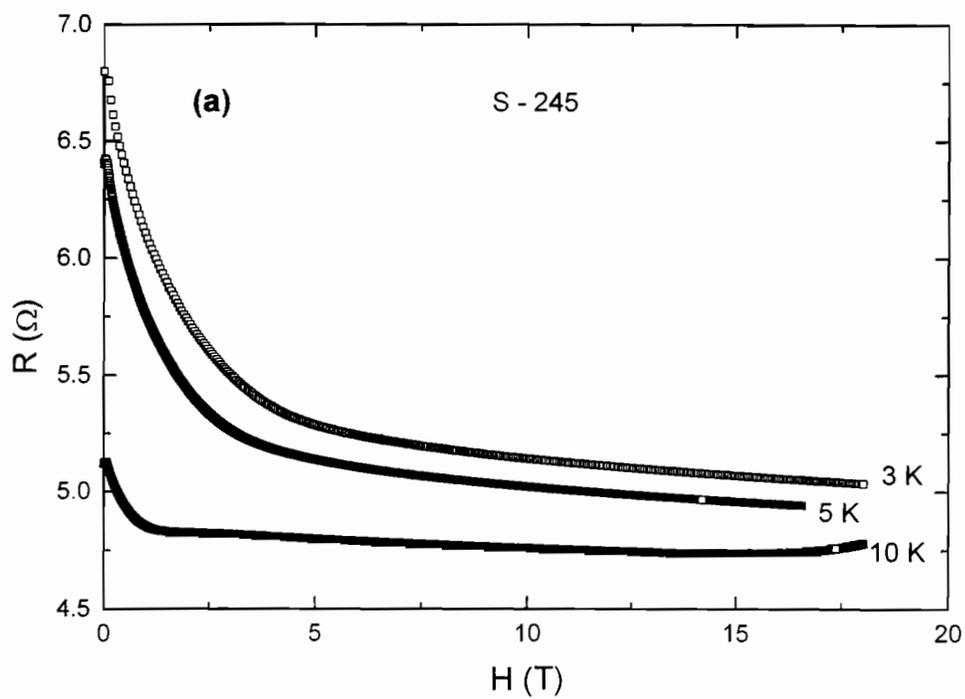


Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em (a) $T = 3,5$ e 10 K e (b) $11.5 < T < 12.5$ K.

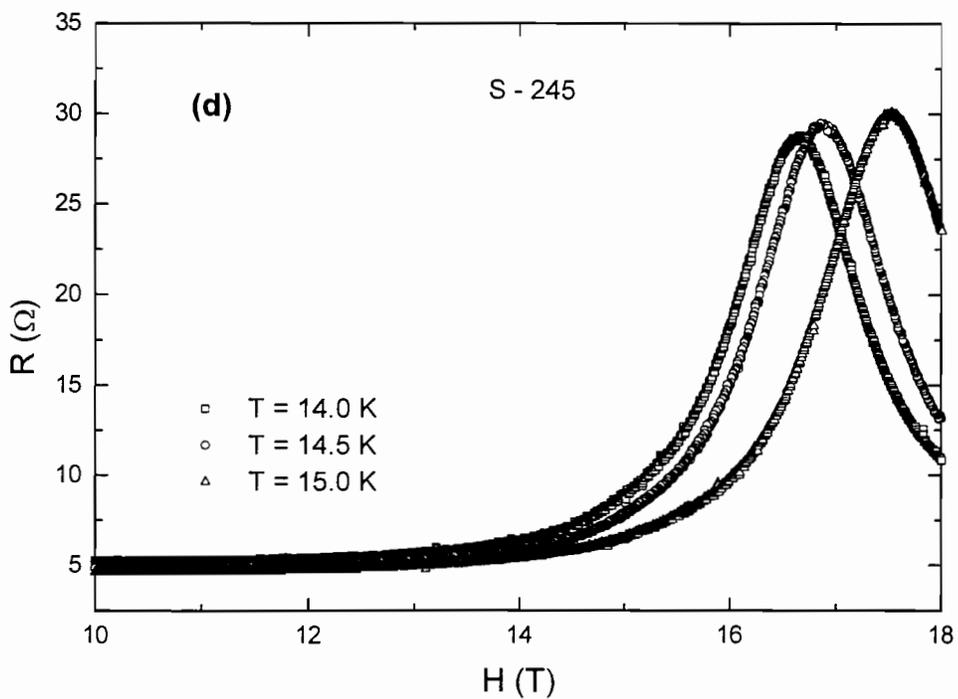
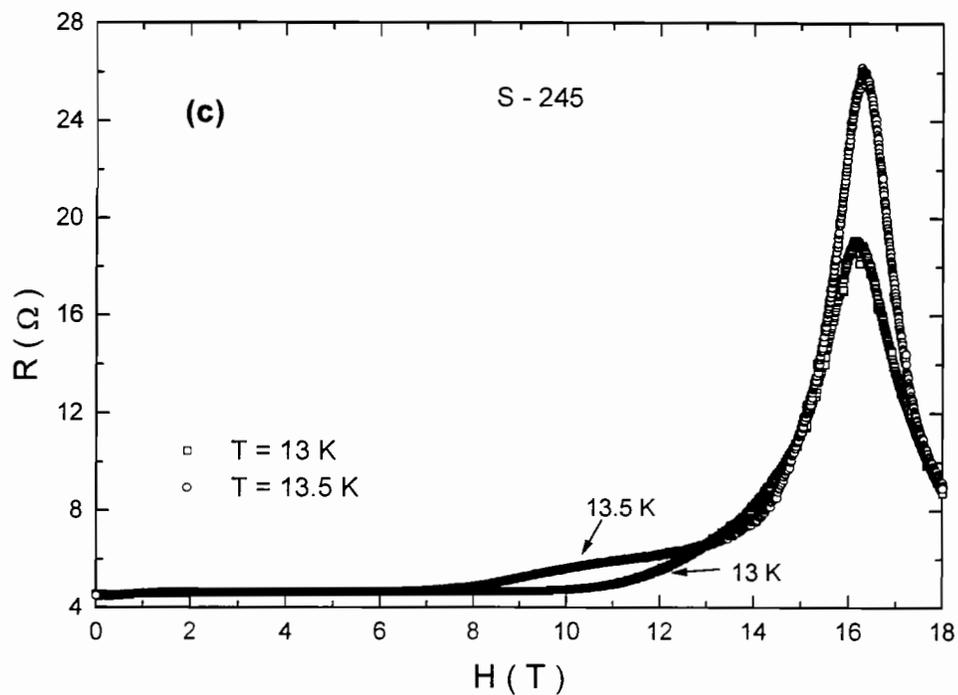


Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em (c) $T = 13$ e 13.5 K e (d) $T = 14$, 14.5 e 15 K.

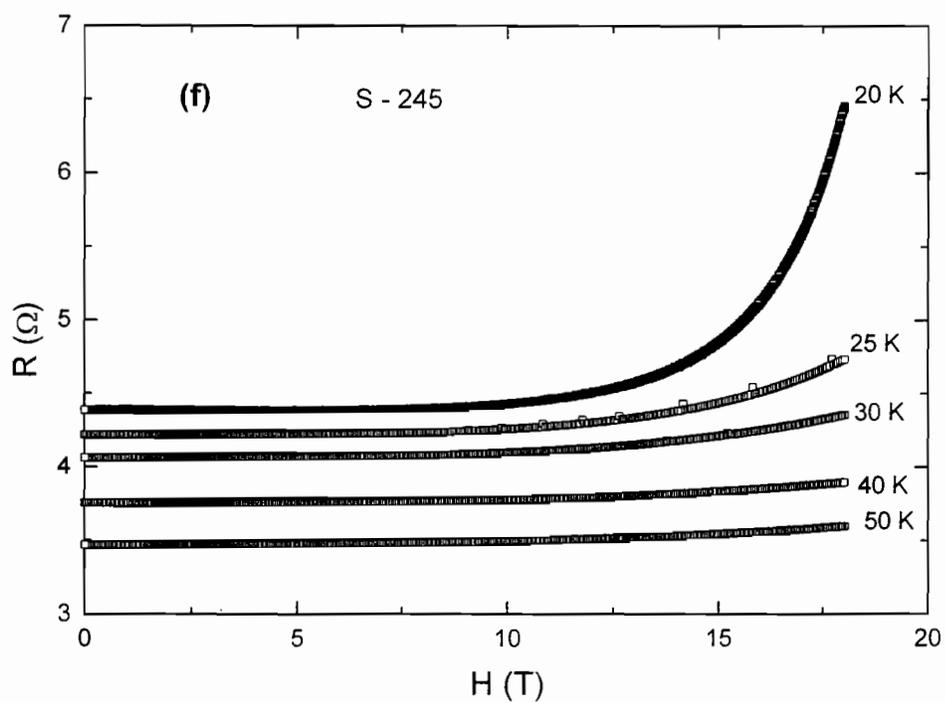
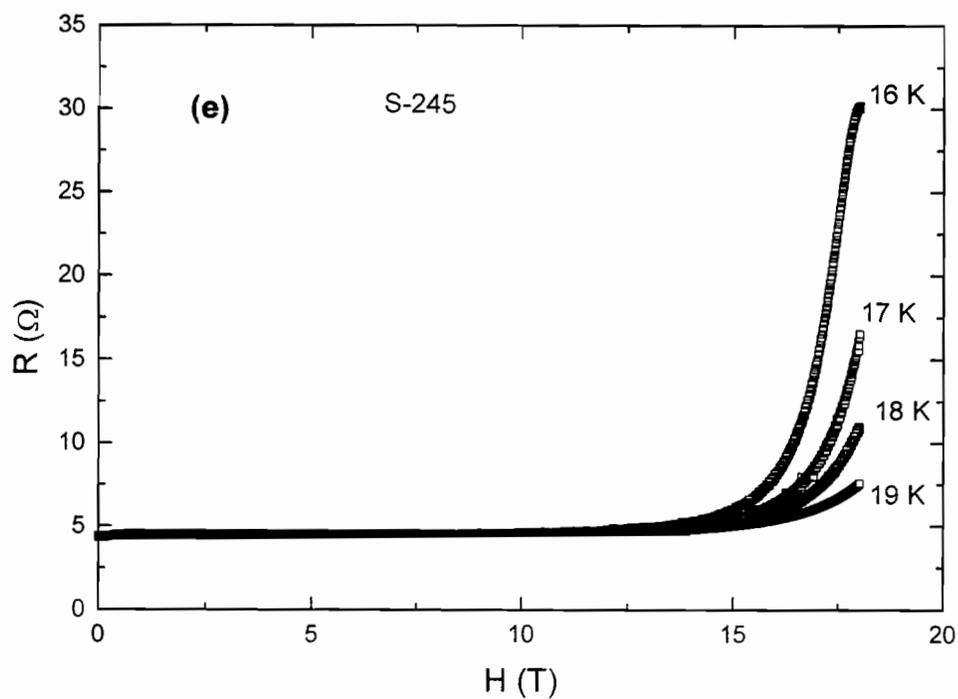


Figura 4.3.21: Curvas de $R(H)$ para a amostra S-245 em (e) $16 < T < 19$ K e (f) $20 < T < 50$ K.

As características anteriormente descritas das curvas de $R(H)$ obtidas na amostra S-245 confirmam os resultados anteriormente apresentados a partir das curvas de $R(T)$, mostradas na figura 4.3.18.

A discussão desses dados de $R(T)$ e $R(H)$ para a amostra S-245 requer uma consideração acerca do porque esses picos apareceram em apenas uma orientação específica de campo magnético e corrente de excitação no material. O primeiro ponto a ser exaltado aqui é que as fotomicrografias mostradas na figura 4.1.3 revelaram que a amostra S-245 apresenta maior densificação que as outras amostras estudadas. Isso, entretanto, não quer dizer que ela seja mais texturizada, em princípio, que as outras. Porém, devido aos resultados obtidos espera-se que a amostra ou uma região representativa da amostra em questão, tenha, pelo menos nessas medidas, uma certa orientação específica em relação ao campo magnético aplicado. Dentro desse contexto, segue a discussão abaixo.

Uma observação importante de ser mencionada diz respeito ao comportamento das curvas de $R(T)$ e $R(H)$ da amostra S-245, mostradas nas figuras 4.3.18 e 4.3.21, em temperaturas $T/T_{ci} < 0.6$. Neste intervalo de temperatura e como dito anteriormente, constatou-se que a magneto-resistência dessa amostra é negativa, tal como observado para as amostras S-116, S-147, S-196 e para a própria amostra S-245 em outra configuração de campo magnético aplicado.

A partir das curvas de $R(T)$ da amostra S-245 mostradas na figura 4.3.18, observou-se que ΔR , como definido na página 96, depende linearmente de $(T/T_{ci})^{-1/4}$, $T/T_{ci} < 0.6$, como nas amostras discutidas anteriormente. Algumas dessas curvas de ΔR versus $(T/T_{ci})^{-1/4}$, $T/T_{ci} < 0.6$, são mostradas na figura 4.3.22 e os intervalos de temperatura ΔT em função do campo magnético aplicado para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$ são mostrados na tabela 4.3.6. Nota-se que ΔT estende-se a temperaturas cada vez mais baixas com o aumento do campo magnético

aplicado, tal como observado para as demais amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ (veja Tabelas 4.3.1 – 4.3.4).

H	T/T _{ci}	ΔT (K)
0	0.35 – 0.75	6.7 – 12.4
1	0.35 – 0.70	6.7 – 13.4
2.5	0.26 – 0.51	4.9 – 9.7
4	0.33 – 0.66	6.3 – 12.5
5	0.38 – 0.68	7.2 – 12.9
6	0.34 – 0.63	6.5 – 12
8	0.32 – 0.61	6.1 – 11.6
10	0.31 – 0.55	5.9 – 10.5
12.5	0.30 – 0.55	5.7 – 10.4
14	0.29 – 0.51	5.6 – 9.8
14.5	0.14 – 0.53	2.6 – 10.1
15.5	0.14 – 0.55	2.6 – 10.4
16	0.14 – 0.55	2.6 – 10.4
16.5	0.14 – 0.52	2.6 – 9.8
17	0.16 – 0.51	3.0 – 9.7
17.5	0.14 – 0.48	2.6 – 9.1
18	0.14 – 0.5	2.6 – 9.6

Tabela 4.3.6: Intervalos de temperatura em função do campo magnético para os quais $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245. Estes dados foram obtidos a partir das curvas de R(T,H) mostradas na figura 4.3.18.

Na figura 4.3.22, para $H > 14$ T, as curvas de ΔR em função de $(T/T_{ci})^{-1/4}$ mostram uma dependência linear evidente, com exceção de uma anomalia que ocorre sistematicamente em temperaturas $T \sim 4.3$ K. Esta pequena anomalia no comportamento de ΔR só pode estar relacionada ao ordenamento do tipo antiferromagnético da sub-rede dos íons Sm^{+3} . Isto tem suporte no fato de que este tipo de ordenamento desenvolve-se a uma temperatura de Néel estimada em $T \approx 4.9$ K, que seria a temperatura de ordenamento para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, com $x = 0.17$ [9]. Acerca desse ponto, parece importante dizer que o composto Sm_2CuO_4 , apresenta ordenamento magnético da sub-rede do

Sm^{+3} nos planos ab da estrutura T' desse composto [10]. Devido a isso, é importante notar que variações em $R(T)$ mostradas na figura 4.3.22, $T \sim 5$ K, somente foram observadas para a amostra S-245 e nas medidas de $R(T)$ que apresentaram os picos de dissipação. Isso sugere que, nessas medidas e para uma específica região da amostra, o campo magnético foi direcionado paralelamente aos planos ab da estrutura do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$. De fato, uma análise minuciosa dos picos de dissipação nessas medidas leva a mesma conclusão, como será visto a seguir.

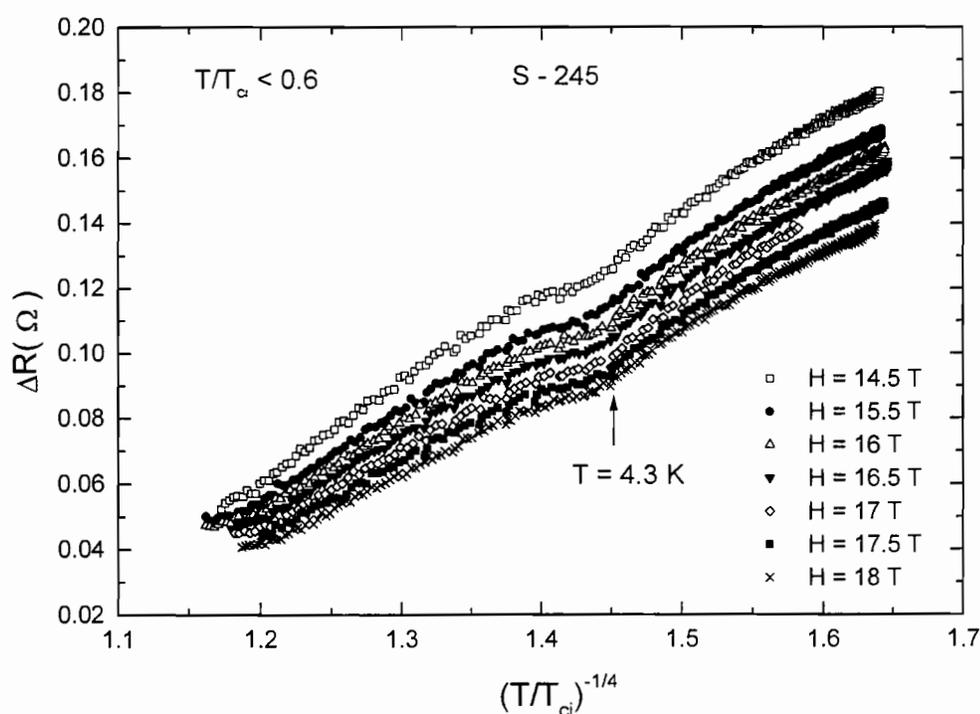


Figura 4.3.22: ΔR versus $(T/T_{ci})^{-1/4}$ para a amostra S-245, para $14.5 \leq H \leq 18$ T. Os dados foram obtidos a partir das curvas de magneto-resistência mostradas na figura 4.3.18.

Acerca da discussão com relação aos picos de dissipação da amostra S-245, os resultados mostrados na figura 4.3.23 devem ser cuidadosamente analisados. Essa figura mostra um diagrama de fases do tipo H versus T onde são mostrados os dados de $H_{\max}(T)$ relativos aos picos de dissipação (ver Tabela

4.3.5), juntamente com os dados do campo crítico superior $H_{c2}(T)$ do $\text{Nd}_{1.84}\text{Ce}_{0.16}\text{CuO}_{4-y}$ monocristalino, obtidos por Hidaka e Suzuki [18].

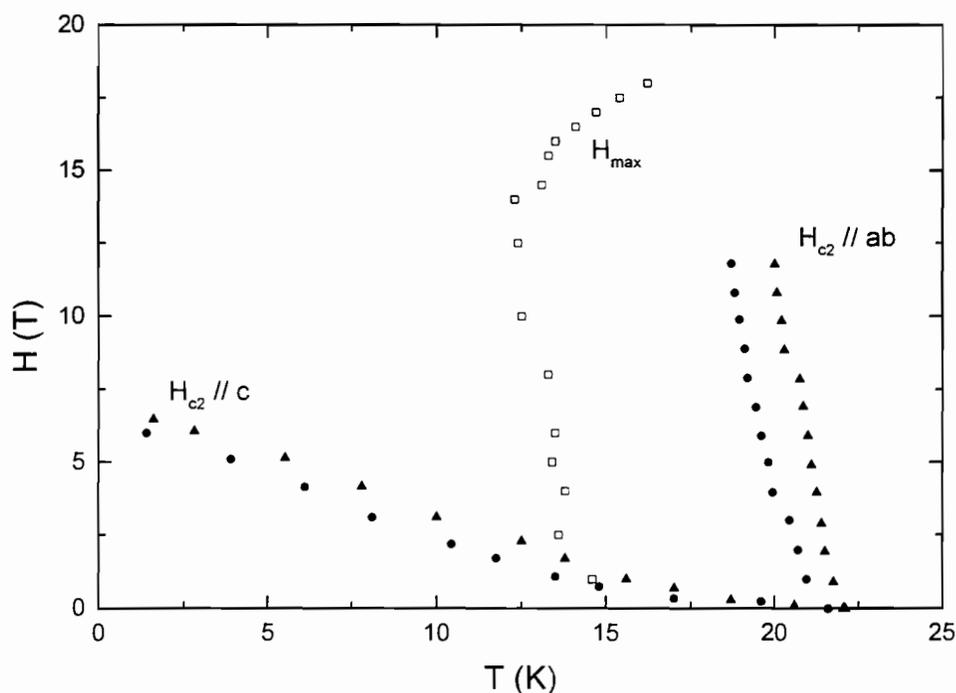


Figura 4.3.23: Diagrama de fases H versus T mostrando os dados de $H_{\max}(T)$ relativos aos picos de dissipação da amostra S-245, juntamente com os dados de $H_{c2}(T)$ para o $\text{Nd}_{1.84}\text{Ce}_{0.16}\text{CuO}_{4-y}$ monocristalino [18]. H_{c2} é definido como o campo para o qual a resistividade elétrica torna-se zero (círculos) ou metade da resistividade elétrica do estado normal (triângulos) [18].

No caso em questão, como a amostra S-245 é policristalina, para cada ilha supercondutora o campo magnético pode ser decomposto em duas componentes, $H // c$ e $H \perp c$. A componente de campo magnético perpendicular aos planos condutores de CuO_2 ($H // c$) gera uma rede de linhas de fluxo chamada de rede de Abrikosov [25]. A componente de campo magnético paralela aos planos de CuO_2 ($H \perp c$) dá origem à rede de vórtices de Josephson, uma vez que as super-correntes atravessam os planos de Ln_2O_2 que são acoplados aos planos de CuO_2 via efeito Josephson [25]. No diagrama H versus T da figura 4.3.23, o posicionamento da curva de $H_{\max}(T)$ torna claro que os

picos de dissipação estão relacionados com a supercondutividade referente à componente dos planos ab do material. Para $H > 5$ T e $T > 10$ K, a supercondutividade na direção paralela ao eixo cristalográfico c já foi suprimida pela presença do campo magnético aplicado, portanto restando apenas a componente paralela aos planos ab . Para $H \leq 14$ T observou-se a similaridade das inclinações das curvas de $H_{\max}(T)$ e da curva de $H_{c2}(T)$ do material monocristalino para H paralelo ao plano ab . Portanto, os picos de dissipação da amostra S-245 devem estar mesmo relacionados a algum fenômeno de dissipação referente ao movimento de vórtices de Josephson. A mudança de inclinação da curva de $H_{\max}(T)$ para $H > 14$ T será discutida posteriormente.

Comparando-se as curvas de $R(T,H)$ mostradas nas figuras 4.3.18 e 4.3.21 (páginas 121 e 131) com os resultados da referência 26, foram obtidas mais evidências de que os picos de dissipação relativos à amostra S-245 são provenientes do movimento dissipativo de vórtices de Josephson. Na referência 26 são reportadas medidas de $R(H,T)$ para um supercondutor constituído de multicamadas de Mo/Si. Para H aplicado paralelamente às camadas desse supercondutor, foram observados picos de dissipação nas curvas de $R(H)$, em temperaturas relativamente altas ($T/T_{ci} > 0.8$), semelhantes aos observados nas curvas de magneto-resistência da amostra S-245 (principalmente em altos campos magnéticos). Dada a orientação do campo magnético em relação às camadas de Mo/Si, estes picos foram atribuídos por Fogel e colaboradores [26] ao movimento dissipativo de vórtices de Josephson. Os efeitos relativos ao movimento dissipativo de vórtices de Josephson foram reportados como sendo altamente sensíveis à orientação do campo magnético aplicado. Uma inclinação de H de cerca de 2° em relação às camadas de Mo/Si já foi suficiente para alterar drasticamente as curvas de $R(H)$ [26]. Este resultado é muito interessante, já que os picos de dissipação da amostra S-245 parecem estar relacionados a uma particular orientação de H . Isto foi confirmado, uma vez que

medidas feitas variando-se o ângulo entre H e a amostra foram suficientes para reduzir a magnitude de $R(T)$ do material e suprimir os picos de dissipação.

Ainda com relação ao supercondutor investigado na referência 26, foi identificada uma temperatura $T = T_0$, abaixo da qual tem início o confinamento dos vórtices de Josephson entre as camadas supercondutoras, o chamado aprisionamento intrínseco dos vórtices de Josephson. T_0 é identificada com a temperatura para a qual ocorre a mudança de dimensionalidade do sistema, o qual passa a ser bidimensional abaixo dela [26]. Para a amostra S-245, a partir da tabela 4.3.5 observou-se que o fim do pico de dissipação ocorre em $T/T_{ci} \sim 0.6 - 0.7$. Além disso, como observado nas curvas de $R(T,H) - R(T,H = 0)$ mostradas na figura 4.3.20, a supressão do pico ocorre de forma abrupta. Estes comportamentos levam a crer que a supressão da dissipação nessa amostra, na configuração em questão, pode estar relacionada ao fenômeno de aprisionamento intrínseco de vórtices de Josephson. Mais que isso, esta observação permite fazer uma correlação entre estes resultados e os anteriormente descritos para a amostra S-245 e as demais amostras investigadas do composto $Sm_{1.83}Ce_{0.17}CuO_{4-y}$. Como discutido anteriormente, a partir das curvas de $R(T,H)$ desse composto, as quais não apresentam picos de dissipação, para todas as amostras investigadas constatou-se uma mudança de comportamento da curva de $\Delta R(T)$, justamente em $T/T_{ci} \sim 0.6$. Sendo assim, os picos de dissipação não são artificiais de medidas e sim correspondem ao comportamento macroscópico do material.

Voltando-se ao diagrama H *versus* T da figura 4.3.23 (ver página 137), é evidente a mudança de inclinação da curva de $H_{max}(T)$ em $H = 14$ T. Para $1 \leq H \leq 14$ T, o máximo no pico de dissipação desloca-se para menores temperaturas com o aumento de H e, no sentido inverso, para campos magnéticos elevados, ou seja, $14 < H < 18$ T. Independentemente da maneira como a temperatura do máximo no pico de dissipação em função do campo

magnético aplicado é deslocada, este comportamento sugere, no mínimo, que em $H = 14 \text{ T}$ ocorre uma mudança significativa nesse sistema supercondutor granular. Uma possível explicação para este comportamento envolve uma discussão a respeito da fusão da rede de vórtices de Abrikosov [27,28]. Segue abaixo uma descrição sucinta desse fenômeno, a qual será útil para o prosseguimento da discussão.

Sobre a fusão da rede de vórtices

Considerando-se um sistema supercondutor na presença de um campo magnético H , a componente do campo magnético perpendicular aos planos condutores de CuO_2 gera uma rede de linhas de fluxo (rede de Abrikosov), constituída de panquecas de vórtices [25]. A interação de panquecas de vórtices pertencentes a diferentes planos condutores é relativamente fraca. Se as panquecas pertencentes a uma mesma linha de vórtice permanecem alinhadas, elas não geram uma diferença de fase do parâmetro de ordem supercondutor de um plano para outro e, portanto, a densidade de corrente crítica na direção do eixo c é máxima. Porém, se existe um desalinhamento entre as panquecas de vórtices a partir de sua posição de equilíbrio, a diferença de fase entre duas camadas adjacentes leva a uma redução da densidade de corrente crítica localmente. Com o aumento de temperatura, devido à flutuações térmicas as panquecas de vórtices em uma dada linha de fluxo não são mais correlacionadas e, nesse sentido, as linhas de fluxo não mais existem. A diferença de fase entre planos condutores adjacentes torna-se completamente aleatória e a corrente crítica ao longo do eixo c praticamente desaparece. Um acréscimo na temperatura desse sistema resulta no aumento de flutuações térmicas dos vórtices, que pode levar o sistema a uma transição de fase de uma rede rígida de vórtices para um estado do tipo de líquido de linhas de vórtices. Esta transição é chamada costumeiramente de fusão da rede de vórtices [27,28]. Existe uma

temperatura característica para a qual essa transição de fase ocorre e esta temperatura depende essencialmente da anisotropia do sistema e do campo magnético aplicado. De fato, para cada material existe um valor de campo magnético característico no qual ocorre uma mudança de dimensionalidade (3D-2D) no regime de flutuações térmicas das linhas de vórtices. Este valor de campo magnético, denominado H_{cr} , é dado por [27]:

$$H_{cr} = \frac{\phi_0}{\gamma^2 d^2} \quad (4.3.2)$$

onde $\phi_0 \equiv$ *quantum* de fluxo, $d \equiv$ distância entre os planos de CuO_2 e $\gamma \equiv$ fator de anisotropia. No limite de $H \gg H_{cr}$, a temperatura para a qual ocorre a fusão da rede de vórtices é essencialmente independente do campo magnético aplicado e é dada pela expressão [27]:

$$T_m^{(2D)} = \frac{A}{8\pi\sqrt{3}} \left[\frac{d\phi_0^2}{k_B(4\pi\lambda_{ab})^2} \right], \quad (4.3.3)$$

onde $\phi_0 \equiv$ *quantum* de fluxo, $d \equiv$ distância entre os planos de CuO_2 , $\lambda_{ab} \equiv$ comprimento de penetração paralelo ao plano ab e $A \leq 1$.

Picos de dissipação da amostra S-245 e a fusão da rede de vórtices

Retomando-se a discussão com relação aos picos de dissipação da amostra S-245, é possível estimar o valor de H_{cr} usando-se os parâmetros de anisotropia $\gamma = 21$ e $d = c/2 = 6 \text{ \AA}$ [18] na equação 4.3.2, para o composto $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$. Como resultado obtém-se $H_{cr} \approx 14 \text{ T}$. Este valor é muito interessante, tendo em vista que justamente em $H \approx 14 \text{ T}$ ocorre uma mudança significativa nas curvas de $R(T,H)$ (ver figura 4.3.18 e 4.3.21) e,

conseqüentemente, em $H_{\max}(T)$, como pode ser observado no **diagrama** de fases H *versus* T da figura 4.3.23. Portanto, essa alteração nas propriedades de transporte da amostra S-245 ao redor de 14 T pode estar relacionada ao fenômeno da fusão da rede de vórtices de Abrikosov. Entretanto, como discutido anteriormente, existem fortes indícios de que os picos de dissipação dessa amostra estejam relacionados ao movimento de vórtices de Josephson pois H estaria sendo aplicado paralelamente aos planos CuO_2 , ou no plano ab . Por outro lado, convém lembrar que as redes de Abrikosov e Josephson mantêm uma interação entre si, já que as panquecas de vórtices de Abrikosov aprisionam os vórtices de Josephson [29,30]. Sendo assim, uma perturbação nas panquecas de vórtices pode levar ao movimento dos vórtices de Josephson [29,30].

A partir da equação 4.3.3, usando-se $d = 6 \text{ \AA}$ [18] e $\lambda_{ab} = 1500 \text{ \AA}$ [31] para o $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$ estimou-se que $T_m^{(2D)} \approx 12 \text{ K}$ para esse composto. Este valor de temperatura corresponde a $T/T_{ci} \approx 0.6$ para as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ investigadas nesse trabalho. Para todas essas amostras, independentemente do aparecimento ou não dos picos de dissipação nas curvas de $R(T,H)$, em $T/T_{ci} < 0.6$ a dependência da temperatura de ΔR não segue a previsão da Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos [3,16,17]. No caso dos picos de dissipação da amostra S-245, a partir da figura 4.3.20 é nítido que a dissipação muda de sinal justamente em $T/T_{ci} \sim 0.6$. Portanto, dada a correspondência dessa temperatura com $T_m^{(2D)}$, esses comportamentos devem estar relacionados a uma mudança do regime dissipativo da rede de vórtices de Abrikosov. No caso específico da amostra S-245, para uma particular orientação do campo magnético em relação à amostra, este efeito (fusão da rede de vórtices de Abrikosov), vinculado ao movimento dissipativo dos vórtices de Josephson, poderiam ter originado os picos de dissipação observados para aquela configuração.

Recentemente, foi constatado que a densidade de superfluido ou a amplitude do parâmetro de ordem decresce na fase de líquido de vórtices para os HTSC [32]. Isto significa que existe uma mudança na estrutura eletrônica dos HTSC, vinculada à fusão da rede de vórtices de Abrikosov [32]. Este fato vem corroborar a discussão feita acima, ou seja, para as amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$ aqui investigadas, $T/T_{ci} \sim 0.6$ delimita dois intervalos de temperatura para os quais a estrutura eletrônica do sistema se comporta de maneiras distintas. Além disso, esta característica é determinada possivelmente pela fusão da rede de vórtices de Abrikosov.

Conclusões preliminares

A combinação dos resultados experimentais obtidos para amostras policristalinas do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, pertencentes ao regime dielétrico de uma transição supercondutor-isolante, a partir de medidas de magnetização $M(T,H)$, para $H = 2 \text{ Oe}$ e 7 T e a partir de medidas de magneto-resistência $R(T,H)$ em campos magnéticos de até 18 T , no intervalo de temperatura $2 \leq T \leq 250 \text{ K}$, permitiu concluir que:

1) as amostras investigadas apresentam propriedades supercondutoras ou diamagnetismo em temperaturas $T < T_{ci} \sim 17.5 \text{ K}$. Entretanto, estas amostras não apresentam resistência elétrica zero, mesmo quando resfriadas a 4.2 K , em campo magnético nulo. Ao contrário, estas amostras apresentam um comportamento quase-reentrante em temperaturas logo abaixo de T_{ci} , seguido de um aumento abrupto na resistência elétrica com o decréscimo da temperatura. Para todas as amostras investigadas, a aplicação de campo magnético leva à diminuição de ΔR , definido como o excesso de resistência elétrica em relação ao valor do estado normal extrapolado a menores temperaturas. Uma vez que esse composto é constituído de ilhas supercondutoras isoladas, a magneto-resistência negativa observada em temperaturas $T < T_{ci}$ é consequência da supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor nessas ilhas pela ação do campo magnético. Isso acarreta um aumento da concentração de elétrons normais, diminuindo a resistência elétrica desse sistema supercondutor granular. Entretanto, mesmo a aplicação de um campo magnético tão alto quanto 18 T não é suficiente para suprimir completamente o *gap* supercondutor desse sistema, já que $\Delta R \neq 0$ ainda para um campo magnético dessa magnitude.

2) a temperatura $T \sim 11 \text{ K}$ ou $T/T_{ci} \sim 0.6$ define dois intervalos de temperatura nos quais ΔR apresenta comportamentos distintos:

a) no intervalo de temperatura $11 \text{ K} < T < T_{ci}$, ou $0.6 < T/T_{ci} < 1$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$, de acordo com a previsão da Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos;

b) em temperaturas $T < 11 \text{ K}$ ou $T/T_{ci} < 0.6$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, contrariando o que seria esperado dessa teoria.

3) os picos de dissipação observados em uma série de medidas de $R(T,H)$ em uma das amostras investigadas (S-245) são decorrentes de uma específica orientação do campo magnético em relação à amostra. As anomalias observadas nessas curvas em $T \sim 5 \text{ K}$, a temperatura de ordenamento anti-ferromagnético da sub-rede dos íons Sm^{+3} , indicam que, neste caso o campo magnético foi orientado paralelamente aos planos ab da estrutura cristalina desse composto. Outra evidência disso é obtida a partir dos valores de temperatura relativos ao máximo nos picos de dissipação, em função do campo magnético aplicado, quando posicionados no diagrama de fases H versus T desses compostos.

Os picos de dissipação apresentam posição, largura e intensidade dependentes do campo magnético aplicado. O fenômeno que origina os picos de dissipação aparentemente envolve uma interação entre as redes de vórtices de Josephson e de Abrikosov.

Na temperatura $T \sim 11 \text{ K}$ ou $T/T_{ci} \sim 0.6$ ocorre uma queda abrupta na magnitude da resistência elétrica desse sistema supercondutor e, em $T/T_{ci} < 0.6$ a magneto-resistência é negativa, tal como observado nas demais curvas de $R(T,H)$ que não apresentam picos de dissipação. De fato, em temperaturas $T/T_{ci} < 0.6$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, como descrito no item 2(b).

4) Há pelo menos dois fenômenos físicos acontecendo em $T \sim 11 \text{ K}$ ou $T/T_{ci} \sim 0.6$, ou uma combinação deles:

a) Mudança de dimensionalidade (3D-2D) do sistema. Com o decréscimo de T , isto é sustentado pelo valor de temperatura T/T_{ci} estimado para esse composto, no qual $\xi // c \approx d$, onde d é o espaçamento entre os planos condutores de CuO_2 . Este valor é da ordem de 0.4, o que é razoável, tendo em vista que em amostras policristalinas desses compostos existe uma larga distribuição de valores de T_{ci} ;

b) Fusão da rede de vórtices. Existem várias evidências que apontam nessa direção. Em $H = 14 \text{ T}$ existe uma mudança de comportamento dos picos de dissipação. Este valor de campo magnético corresponde ao campo característico desse sistema para o qual ocorre uma mudança de dimensionalidade (3D-2D) no regime de flutuações das linhas de vórtices para o composto investigado. Nesse regime, a temperatura na qual ocorre a fusão da rede de vórtices é estimada como sendo aproximadamente 12 K, ou $T/T_{ci} \sim 0.6$.

A hipótese de que na temperatura $T \sim 11 \text{ K}$ ou $T/T_{ci} \sim 0.6$ esteja ocorrendo a fusão da rede de vórtices é sustentada por um trabalho publicado recentemente (Phys. Rev. Lett. **82**, 1273 (1999)), o qual reporta evidência experimental de que a densidade de superfluido ou a amplitude do parâmetro de ordem supercondutor decresce na fase de líquido de vórtices nos HTSC. Isso significa que a fusão da rede de vórtices provoca uma mudança na estrutura eletrônica dos HTSC, que é justamente o que está ocorrendo no material investigado em $T/T_{ci} \sim 0.6$.

5) Investigando-se as propriedades de transporte em supercondutores granulares pertencentes ao regime dielétrico de uma transição supercondutor-isolante, no limite de altos campos magnéticos, é possível detectar mudanças no regime dissipativo da rede de vórtices de Abrikosov nas ilhas supercondutoras que constituem o material, pois essas mudanças interferem nas propriedades eletrônicas do sistema, relacionadas ao *hopping* de elétrons normais entre as ilhas supercondutoras.

REFERÊNCIAS

- [1] Y. Tokura, H. Takagi e S. Uchida, *Nature* **337**, 345 (1989).
- [2] T. C. Huang, E. Moran, A. I. Nazzal e J. B. Torrance, *Physica C* **158**, 148 (1989).
- [3] R. F. Jardim, L. Ben-Dor e M. B. Maple, *J. Alloys and Compounds* **199**, 105 (1993).
- [4] C. P. Poole Jr, H. A. Farach e R. J. Creswick, *Superconductivity* (Academic, San Diego, 1995).
- [5] A. H. Morrish, *The Physical Principles of Magnetism* (John Wiley & Sons, Inc., New York, 1965), p.7 e 643.
- [6] Y. Xu, G. Pan, Z. Mai, C. Jin, D. Dai e W. Wang, *Physica C* **200**, 242 (1992).
- [7] D. J. Bergman e D. Stroud, *Solid State Physics: Advances in Research and Applications*, editado por H. Ehrenreich e D. Turnbull (Academic, New York, 1992), Vol. 46, p. 148.
- [8] Y. Dalichaouch, B. W. Lee, C. L. Seaman, J. T. Markert e M. B. Maple, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 599 (1990).
- [9] B. Jiang, B. H. O e J. T. Markert, *Phys. Rev. B* **45**, 2311 (1992).
- [10] I. W. Sumarlin, S. Skanthakumar, J. W. Lynn, J. L. Peng, Z. Y. Li, W. Jiang e R. L. Greene, *Phys. Rev. Lett.* **68**, 2228 (1992).
- [11] M. C. de Andrade, Y. Dalichaouch e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **48**, 16737 (1993).
- [12] E. A. Early, C. C. Almasan, R. F. Jardim e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **47**, 433 (1993).
- [13] R. F. Jardim, L. Ben-Dor, D. Stroud e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **50**, 10080 (1994).
- [14] A. Gerber, T. Grenet, M. Cyrot e J. Beille, *Phys. Rev Lett.* **65**, 3201 (1990).

- [15] E. A. Early, R. F. Jardim, C. C. Almasan e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **51**, 8650 (1995).
- [16] C. J. Adkins, J. M. D. Thomas e M. W. Young, *J. Phys. C: Solid State Phys.* **13**, 3427 (1980).
- [17] B. S. Chandrasekhar, *Superconductivity Vol. 1*, editado por R. D. Parks (Dekker, New York, 1969).
- [18] Y. Hidaka e M. Suzuki, *Nature* **338**, 635 (1989).
- [19] C. C. Almasan, S. H. Han, E. A. Early, B. W. Lee, C. L. Seaman e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **45**, 1056 (1992).
- [20] C. C. Almasan, M. C. de Andrade, Y. Dalichaouch, J. J. Neumeier, C. L. Seaman, M. B. Maple, R. P. Guertin, M. V. Kuric e J. C. Garland, *Phys. Rev. Lett.* **69**, 3812 (1992).
- [21] R. F. Jardim, C. H. Westphal, C. H. Cohenca, L. Ben-Dor e M. B. Maple, *J. Appl. Phys.* **79**, 6564 (1996).
- [22] D. Zech, H. Keller, M. Warden, H. Simmler, B. Stäubli-Pümpin, P. Zimmermann, E. Kaldis e J. Karpinski, *Phys. Rev. B* **48**, 6533 (1993).
- [23] Y. Dalichaouch, B. W. Lee, C. L. Seaman, J. T. Markert e M. B. Maple, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 599 (1990).
- [24] C. C. Almasan, S. H. Han, E. A. Early, B. W. Lee, C. L. Seaman e M. B. Maple, *Phys. Rev. B* **45**, 1056 (1992).
- [25] J. R. Clem, *Supercond. Sci. Technol.* **11**, 909 (1998).
- [26] N. Y. Fogel, M. Y. Mikhailov, Y. V. Bomze e O. I. Yuzepovich, *Phys. Rev. B* **59**, 3365 (1999).
- [27] L. I. Glazman e A. E. Koshelev, *Phys. Rev. B* **43**, 2835 (1991).
- [28] N. Y. Fogel, V. G. Cherkasova, O. A. Koretzkaya e A. S. Sidorenko, *Phys. Rev. B* **55**, 85 (1997).
- [29] L. N. Bulaevskii, M. Maley, H. Safar e D. Domínguez, *Phys. Rev. B* **53**, 6634 (1996).

- [30] L. N. Bulaevskii, D. Domínguez, M. P. Maley, A. R. Bishop e B. I. Ivlev, *Phys. Rev. B* **53**, 14061 (1996).
- [31] D. H. Wu, J. Mao, S. N. Mao, J. L. Peng, X. X. Xi, T. Venkatesan, R. L. Greene, S. M. Anlage, *Phys. Rev. Lett.* **70**, 85 (1993).
- [32] T. Hanaguri, T. Tsuboi, Y. Tsuchiya, K. Sasaki e A. Maeda, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 1273 (1999).

Conclusões

Neste trabalho foram investigadas as propriedades de transporte de supercondutores granulares com composições $\text{Sm}_{2-x}\text{Ce}_x\text{CuO}_{4-y}$, $x = 0.17$ e 0.18 , e que pertencem a duas regiões de uma transição do tipo supercondutor-isolante (SI): supercondutividade global e local.

No limite de supercondutividade global, onde o estado de resistência zero dos materiais é observado via acoplamento do tipo Josephson abaixo de uma temperatura $T_{cj} \sim 10$ K, foram investigadas as correlações de fase do parâmetro de ordem supercondutor no composto $\text{Sm}_{1.82}\text{Ce}_{0.18}\text{CuO}_{4-y}$, a partir de medidas de magneto-resistência $R(T,H)$ na faixa de temperatura $4.2 \leq T \leq 30$ K, correntes de excitação no intervalo $0.25 \leq I_{ex} \leq 20$ mA e campos magnéticos H compreendidos entre 0 e 200 Oe e de curvas características I - V , em $T = 4.2$ K, no intervalo de corrente de excitação $0 < I_{ex} \leq 100$ mA, para valores fixos de $H \leq 200$ Oe. Foi obtida a dependência do campo magnético e da temperatura da energia de ativação intergranular ou de Josephson, $U_J(T,H) \propto (1-T/T_{cj})(H^{-0.6})$, a qual é formalmente similar à energia de ativação intragranular U , relativa ao movimento de vórtices de Abrikosov, obtida para os compostos monocristalinos da mesma família de óxidos supercondutores. Em $T = 4.2$ K, foi estimada a densidade de corrente crítica de Josephson, $J_{cJ} \sim 1.5$ A/cm², a qual resultou ser da ordem de 10^5 vezes menor que a densidade de corrente crítica intragranular J_{cg} . Ainda, observou-se que em $T = 4.2$ K, $J_{cJ} \sim 0$, quando o material é submetido a um campo magnético $H \approx 30$ Oe. Na temperatura $T = 4.2$ K, constatou-se que as curvas de $R(H)$, tomadas durante o aumento e decréscimo de H e, $0.5 \leq I_{ex} \leq 5$ mA, apresentam comportamento irreversível. Esse comportamento é caracterizado por um valor de campo magnético de *crossover*, $H^* \sim 30$ Oe, o qual é independente da corrente de

excitação a qual o material é submetido. Constatou-se que H^* está associado a uma área máxima A para a qual existe coerência de fase supercondutora no material, com diâmetro da ordem de $1 \mu\text{m}$. A combinação desses resultados mostrou que os contornos de grão são os sítios onde ocorre a supressão da fase do parâmetro de ordem supercondutor nesses supercondutores granulares.

No limite de supercondutividade local, foram investigados os efeitos da supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor nas propriedades de transporte de uma série de amostras do composto $\text{Sm}_{1.83}\text{Ce}_{0.17}\text{CuO}_{4-y}$, a partir de medidas de magneto-resistência $R(T,H)$ em campos magnéticos de até 18 T, no intervalo de temperatura $2 \leq T \leq 250$ K. Para todas as amostras investigadas, o aumento da resistência elétrica em temperaturas abaixo da temperatura crítica supercondutora $T_{ci} \approx 17.5$ K foi quantificado por ΔR , definido como o excesso de resistência elétrica em relação ao valor do estado normal extrapolado a menores temperaturas. Observou-se que ΔR diminui com a aplicação de um campo magnético H , como consequência da supressão da amplitude do parâmetro de ordem supercondutor nas ilhas isoladas que constituem o material. Entretanto, os resultados de $R(T,H)$ para campos magnéticos aplicados da ordem de 18 T mostram que $\Delta R \neq 0$, ou que as propriedades supercondutoras ainda são preservadas em campos dessa magnitude. Observou-se também que a temperatura $T \sim 11$ K ou $T/T_{ci} \sim 0.6$ define dois intervalos de temperatura nos quais ΔR apresenta comportamentos distintos: (a) no intervalo de temperatura compreendido entre 11 e 17.5 K, ou $0.6 < (T/T_{ci}) < 1$, onde $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-4}$, de acordo com as previsões da Teoria Semi-Fenomenológica de Dois Fluidos e (b) em temperaturas $T < 11$ K, onde $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$, contrariando o que seria esperado dessa teoria. Para uma específica orientação de campo magnético aplicado a uma das amostras, foram observados picos de dissipação nas curvas de $R(T,H)$. Com relação a essas curvas,

observou-se que na temperatura $T \sim 11$ K ocorre uma queda abrupta na magnitude da resistência elétrica desse sistema supercondutor e, em temperaturas $T/T_{ci} < 0.6$, $\Delta R \propto (T/T_{ci})^{-1/4}$. Concluiu-se que o fenômeno que origina os picos de dissipação aparentemente envolve uma interação entre as redes de Josephson e de Abrikosov. Dentro deste contexto, a temperatura $T \sim 11$ K estaria relacionada com mudanças na rede de vórtices das regiões supercondutoras como, por exemplo, a fusão da rede de vórtices de Abrikosov, a qual seria responsável pela mudança nas propriedades eletrônicas do composto investigado abaixo dessa temperatura.